

(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
2020年2月27日(27.02.2020)



(10) 国際公開番号

WO 2020/040170 A1

(51) 国際特許分類:

C01B 33/36 (2006.01) A61K 45/00 (2006.01)
A61K 9/14 (2006.01) A61K 47/02 (2006.01)
A61K 9/20 (2006.01) A61K 47/04 (2006.01)
A61K 9/26 (2006.01) A61K 47/20 (2006.01)
A61K 9/28 (2006.01) A61K 47/22 (2006.01)
A61K 31/14 (2006.01) A61P 31/00 (2006.01)
A61K 33/00 (2006.01) A61P 31/04 (2006.01)
A61K 33/30 (2006.01) C09C 1/00 (2006.01)
A61K 33/34 (2006.01) C09C 3/06 (2006.01)
A61K 33/38 (2006.01) C09C 3/08 (2006.01)

(21) 国際出願番号: PCT/JP2019/032552

(22) 国際出願日: 2019年8月21日(21.08.2019)

(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 2018-155738 2018年8月22日(22.08.2018) JP

(71) 出願人: トピー工業株式会社(TOPY KOGYO KABUSHIKI KAISHA) [JP/JP]; 〒1418634 東京都品川区大崎一丁目2番2号 Tokyo (JP).

(72) 発明者: 清家 隆一(SEIKE Ryuichi); 〒4418510 愛知県豊橋市明海町1番地 トピー工業株式

会社内 Aichi (JP). 末吉 舞(SUEYOSHI Mai); 〒4418510 愛知県豊橋市明海町1番地 トピー工業株式会社内 Aichi (JP). 林 剛芳(HAYASHI Takayoshi); 〒4418510 愛知県豊橋市明海町1番地 トピー工業株式会社内 Aichi (JP).

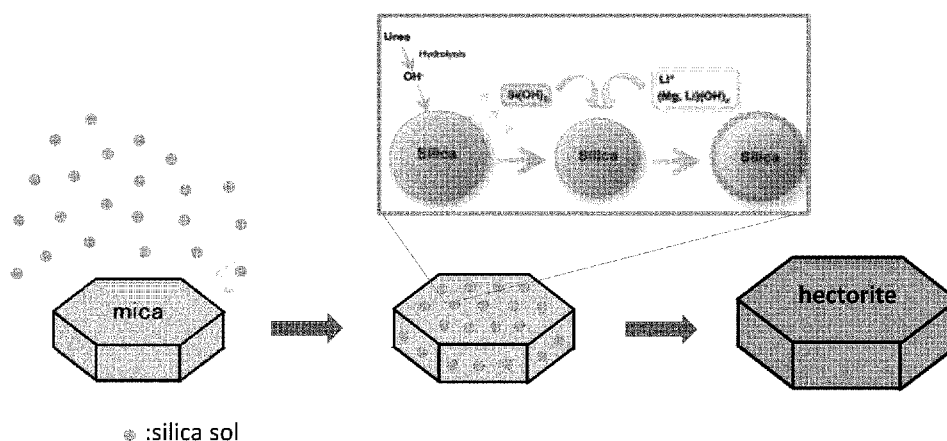
(74) 代理人: 岩橋 祐司(IWAHASHI Yuji); 〒2220033 神奈川県横浜市港北区新横浜二丁目5番地15 Kanagawa (JP).

(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, BN, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CL, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DJ, DK, DM, DO, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, GT, HN, HR, HU, ID, IL, IN, IR, IS, JO, JP, KE, KG, KH, KN, KP, KR, KW, KZ, LA, LC, LK, LR, LS, LU, LY, MA, MD, ME, MG, MK, MN, MW, MX, MY, MZ, NA, NG, NI, NO, NZ, OM, PA, PE, PG, PH, PL, PT, QA, RO, RS, RU, RW, SA, SC, SD, SE, SG, SK, SL, SM, ST, SV, SY, TH, 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, LR, LS,

(54) Title: SILICATE COATED BODY

(54) 発明の名称: ケイ酸塩被覆体



(57) Abstract: This silicate coated body comprises: mica particles; a first silicate that coats at least a portion of the mica particles; and a functional substance that is supported by the first silicate.

(57) 要約: ケイ酸塩被覆体は、マイカ粒子と、マイカ粒子の少なくとも一部を被覆する第1のケイ酸塩と、第1のケイ酸塩に担持された機能性物質と、を備える。

[続葉有]

MW, MZ, NA, RW, SD, SL, ST, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), ユーラシア (AM, AZ, BY, KG, KZ, RU, TJ, TM), ヨーロッパ (AL, 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, RS, SE, SI, SK, SM, TR), OAPI (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, KM, ML, MR, NE, SN, TD, TG).

添付公開書類：

- 一 国際調査報告（条約第21条(3)）

明 細 書

発明の名称： ケイ酸塩被覆体

関連出願

[0001] 本発明は、日本国特許出願：特願２０１８－１５５７３８号（２０１８年８月２２日出願）の優先権主張に基づくものであり、同出願の全記載内容は引用をもって本書に組み込まれているものとする。

技術分野

[0002] 本開示は、ケイ酸塩被覆体に関する。特に、本開示は、ケイ酸塩を被覆した粉体（粒子）に関する。

背景技術

[0003] スメクタイト系ケイ酸塩は、化学的安定性及び熱的安定性を有する。このため、スメクタイト系ケイ酸塩は、化粧品、塗料等の種々の用途で使用されている。

[0004] また、特許文献１には、スメクタイト粘土鉱物類の合成方法が開示されている。しかしながら、特許文献１に記載されているような方法で製造されるスメクタイト系ケイ酸塩は微小な層状形状を有するので取扱い性に問題があった。そこで、球状のシリカ粒子の表面にスメクタイトを被覆して取扱い性を高める技術が研究されている（例えば、特許文献２及び非特許文献１参照）。

[0005] 特許文献３には、スメクタイト、合成マイカ等の層状ケイ酸塩に含有されるイオン交換可能な金属の少なくとも一部を、銀、銅、及び亜鉛の中から選ばれた少なくとも一種の金属イオンとの有機配位子との配位化合物で置換してなる抗菌性ケイ酸塩が開示されている。

先行技術文献

特許文献

[0006] 特許文献１：特表平７－５０５１１２号公報

特許文献２：特開２０１４－２４７１１号公報

特許文献3：特開平3－193707号公報

- [0007] 非特許文献1：Tomohiko Okadaら、「Swellable Microsphere of a Layered Silicate Produced by Using Monodispersed Silica Particles」、J. Phys. Chem. C、2012年、第116号、p.21864-21869

発明の概要

発明が解決しようとする課題

- [0008] マイカ系及びスメクタイト系ケイ酸塩等のケイ酸塩は高い化学的安定性を有するので、その化学的な修飾及び／又は被修飾が困難である。例えば、スメクタイト系ケイ酸塩でもって、化学的安定性の高い他のケイ酸塩（例えば、マイカ）を粒子レベルで修飾することは知られていない。
- [0009] 特許文献2及び非特許文献1に記載の方法に基づいて合成されるスメクタイト被覆シリカ粒子におけるスメクタイトの形態は、基体となる球状シリカ粒子の形状及び大きさに依存することになる。そのため、スメクタイト被覆シリカ粒子の用途は限定的であった。
- [0010] また、特許文献3に記載のようなスメクタイト系ケイ酸塩は単独では凝集が生じやすい。凝集が生じると、抗菌性物質の担持にムラが生じてしまい、手触り等の感触も悪くなり、さらには取扱い性も低下してしまう。一方、マイカ系ケイ酸塩はイオン交換性が低いので、特許文献3に記載のようにイオン交換によってケイ酸塩にイオン性抗菌性物質を担持することは困難である。そのため、イオン性抗菌性物質を担持させたとしても、特許文献3に記載の抗菌性ケイ酸塩では優れた抗菌効果を得ることができない。
- [0011] そこで、ケイ酸塩の特性を有しながらも、凝集が生じにくく、機能性を有するケイ酸塩被覆体が望まれている。

課題を解決するための手段

- [0012] 本開示の第1視点によれば、マイカ粒子と、マイカ粒子の少なくとも一部を被覆する第1のケイ酸塩と、第1のケイ酸塩に担持された機能性物質と、を備える、ケイ酸塩被覆体が提供される。
- [0013] 本開示の第2視点によれば、基体と、基体上に存在するシリカ及び／又は

シリカ変性物と、シリカ及び／又はシリカ変性物を介して基体の少なくとも一部を被覆する第1のケイ酸塩と、第1のケイ酸塩に担持された機能性物質と、を備える、ケイ酸塩被覆体が提供される。

発明の効果

[0014] 本開示によれば、ケイ酸塩の特性を有しながらも、凝集が抑制されていると共に、機能性が付与されたケイ酸塩被覆体を提供することができる。

図面の簡単な説明

- [0015] [図1]本開示の第1及び第2実施形態に係るケイ酸塩被覆体のイメージ図。
[図2]本開示の第1及び第2実施形態に係るケイ酸塩被覆体のイメージ図。
[図3]本開示の第2実施形態に係るケイ酸塩被覆体の概略断面図。
[図4]本開示の第2実施形態に係るケイ酸塩被覆体の概略断面図。
[図5]本開示の第2実施形態に係るケイ酸塩被覆体の構成及び生成メカニズムを説明するための模式図。
[図6]第3実施形態に係るケイ酸塩被覆体の製造方法のフローチャート。
[図7]本開示の第5実施形態に係るケイ酸塩被覆体の概略断面図。
[図8]本開示の第5実施形態に係るケイ酸塩被覆体の概略断面図。
[図9]第6実施形態に係るケイ酸塩被覆体の製造方法のフローチャート。
[図10]本開示の第8実施形態に係るケイ酸塩被覆体の概略断面図。
[図11]本開示の第8実施形態に係るケイ酸塩被覆体の概略断面図。
[図12]第10実施形態に係るケイ酸塩被覆体の製造方法のフローチャート。
[図13]試験例1～6におけるヘクトライト被覆マイカのX線回折パターン。
[図14]試験例1におけるヘクトライト被覆マイカのX線回折パターン。
[図15]試験例1におけるヘクトライト被覆マイカ及びヘクトライトの $2\theta = 2^\circ \sim 12^\circ$ の範囲におけるX線回折パターン。
[図16]試験例2におけるヘクトライト被覆マイカ及びヘクトライトの $2\theta = 2^\circ \sim 12^\circ$ の範囲におけるX線回折パターン。
[図17]試験例3におけるヘクトライト被覆マイカ及びヘクトライトの $2\theta = 2^\circ \sim 12^\circ$ の範囲におけるX線回折パターン。

[図18]試験例4におけるヘクトライト被覆マイカ及びヘクトライトの $2\theta = 2^\circ \sim 12^\circ$ の範囲におけるX線回折パターン。

[図19]試験例5におけるヘクトライト被覆マイカ及びヘクトライトの $2\theta = 2^\circ \sim 12^\circ$ の範囲におけるX線回折パターン。

[図20]試験例6におけるヘクトライト被覆マイカ及びヘクトライトの $2\theta = 2^\circ \sim 12^\circ$ の範囲におけるX線回折パターン。

[図21]合成マイカのX線回折パターン。

[図22]ヘクトライトのX線回折パターン。

[図23]試験例1におけるヘクトライト被覆マイカのSEM画像。

[図24]試験例1におけるヘクトライト被覆マイカのSEM画像。

[図25]試験例1におけるヘクトライト被覆マイカのSEM画像。

[図26]試験例2におけるヘクトライト被覆マイカのSEM画像。

[図27]試験例2におけるヘクトライト被覆マイカのSEM画像。

[図28]試験例2におけるヘクトライト被覆マイカのSEM画像。

[図29]試験例3におけるヘクトライト被覆マイカのSEM画像。

[図30]試験例3におけるヘクトライト被覆マイカのSEM画像。

[図31]試験例3におけるヘクトライト被覆マイカのSEM画像。

[図32]試験例4におけるヘクトライト被覆マイカのSEM画像。

[図33]試験例4におけるヘクトライト被覆マイカのSEM画像。

[図34]試験例4におけるヘクトライト被覆マイカのSEM画像。

[図35]試験例5におけるヘクトライト被覆マイカのSEM画像。

[図36]試験例5におけるヘクトライト被覆マイカのSEM画像。

[図37]試験例5におけるヘクトライト被覆マイカのSEM画像。

[図38]合成マイカのSEM画像。

[図39]合成マイカのSEM画像。

[図40]合成マイカのSEM画像。

[図41]試験例5において得られた近似直線。

[図42]試験例5において得られた吸着等温線の理論曲線。

[図43]メチレンブルー水溶液に試験例の生成物を浸漬させた状態を示す写真、及び浸漬後分離した粉末の写真。

[図44]試験例7における処理物のSEM画像。

[図45]試験例7における処理物のSEM画像。

[図46]試験例8における処理物のSEM画像。

[図47]試験例8における処理物のSEM画像。

[図48]試験例9-1におけるハロー試験の写真。

[図49]試験例9-2におけるハロー試験の写真。

[図50]試験例12-1におけるハロー試験の写真。

[図51]試験例12-2におけるハロー試験の写真。

[図52]試験例13-1におけるハロー試験の写真。

[図53]試験例13-2におけるハロー試験の写真。

[図54]試験例14における着色ケイ酸塩被覆体の写真。

[図55]試験例15における着色ケイ酸塩被覆体の写真。

[図56]試験例16における着色ケイ酸塩被覆体の写真。

[図57]試験例17における着色ケイ酸塩被覆体の写真。

[図58]試験例18における着色ケイ酸塩被覆体の写真。

[図59]試験例19における着色ケイ酸塩被覆体の写真。

[図60]試験例19及び比較例の着色過程における遠心分離脱水前の混合液を静置した状態の写真。

発明を実施するための形態

[0016] 上記各視点の好ましい形態を以下に記載する。

[0017] 上記第1視点の好ましい形態によれば、マイカ粒子と少なくとも一部の第1のケイ酸塩とはシリカ及び／又はシリカ変性物を介して接合されている。

[0018] 上記第1視点の好ましい形態によれば、マイカ粒子のメジアン粒子径は、 $0.1\mu\text{m} \sim 10\text{mm}$ である。

[0019] 上記第1視点の好ましい形態によれば、ケイ酸塩被覆体は、マイカ粒子を被覆する中間層をさらに含む。少なくとも一部の第1のケイ酸塩は中間層を

介してマイカ粒子を被覆する。

[0020] 上記第1視点の好ましい形態によれば、中間層は干渉色を発現する被覆である。

[0021] 上記第1視点の好ましい形態によれば、中間層は2以上の屈折率を有する金属酸化物を含む。

[0022] 上記第1視点の好ましい形態によれば、中間層は、酸化チタン、酸化鉄、又はこれらの組合せを含む。

[0023] 上記第2視点の好ましい形態によれば、基体は第2のケイ酸塩粒子を含む。

[0024] 上記第2視点の好ましい形態によれば、基体は、薄片状及び／又は板状マイカ粉体である。

[0025] 上記第2視点の好ましい形態によれば、第1のケイ酸塩と、シリカ及び／又はシリカ変性物とは一体的である。

[0026] 上記第2視点の好ましい形態によれば、ケイ酸塩被覆体は、基体を被覆する中間層をさらに含む。シリカ及び／又はシリカ変性物は中間層の少なくとも一部の表面に付着している。少なくとも一部の第1のケイ酸塩は中間層並びに／又はシリカ及び／もしくはシリカ変性物を介して基体を被覆する。

[0027] 上記第2視点の好ましい形態によれば、中間層は干渉色を発現する被覆である。

[0028] 上記第2視点の好ましい形態によれば、中間層は2以上の屈折率を有する金属酸化物を含む。

[0029] 上記第2視点の好ましい形態によれば、中間層は、酸化チタン、酸化鉄、又はこれらの組合せを含む。

[0030] 上記第1視点及び第2視点の好ましい形態によれば、第1のケイ酸塩は、スメクタイト系ケイ酸塩を含む。

[0031] 上記第1視点及び第2視点の好ましい形態によれば、スメクタイト系ケイ酸塩はヘクトライトを含む。

[0032] 上記第1視点及び第2視点の好ましい形態によれば、機能性物質はイオン

性である。

- [0033] 上記第1視点及び第2視点の好ましい形態によれば、機能性物質は抗菌性物質、殺菌性物質、滅菌性物質、及び消毒性物質の少なくとも1つを含む。
- [0034] 上記第1視点及び第2視点の好ましい形態によれば、機能性物質は、金属イオン、イオン性金属錯体及びカチオン性界面活性剤のうちの少なくとも1つから選択される。
- [0035] 上記第1視点及び第2視点の好ましい形態によれば、機能性物質は、銀イオン、亜鉛イオン、銅イオン、ジアンミン銀イオン、ベンザルコニウムイオン、ベンゼトニウムイオン、テトラエチルアンモニウムイオン、及びジデシルジメチルアンモニウムイオンのうちの少なくとも1つから選択される。
- [0036] 上記第1視点及び第2視点の好ましい形態によれば、ケイ酸塩被覆体は、多価カチオンをさらに備える。機能性物質がアニオン性機能性物質及び両性機能性物質のうち少なくとも1つを含む。
- [0037] 上記第1視点及び第2視点の好ましい形態によれば、ケイ酸塩被覆体は、第1のケイ酸塩に付着されたイオン性有機色素をさらに備える。
- [0038] 上記第1視点及び第2視点の好ましい形態によれば、ケイ酸塩被覆体は、多価カチオンをさらに備える。イオン性有機色素がアニオン性有機色素及び両性有機色素のうち少なくとも1つを含む。
- [0039] 上記第1視点及び第2視点の好ましい形態によれば、イオン性有機色素は、アマランス、ニューコクシン、フロキシシンB、ローズベンガル、アシッドレッド、タートラジン、サンセットイエロー、ファストグリーン、ブリリアントブルー、インジゴカルミン、リソールルビンB、リソールルビンBCA、メチレンブルー、ローダミンB、及びエリスロシンBのうちの少なくとも1つを含む。
- [0040] 上記第1視点及び第2視点の好ましい形態によれば、多価カチオンは、マグネシウムイオン、カルシウムイオン、アルミニウムイオン、及びバリウムイオンのうちの少なくとも1つである。
- [0041] 以下の説明において、図面参照符号は発明の理解のために付記しているも

のであり、図示の態様に限定することを意図するものではない。また、図面は、本開示のケイ酸塩被覆体についての理解を助けるためのものであって、図示の形状、寸法、縮尺等図面の形態にケイ酸塩被覆体を限定することを意図するものではない。各実施形態において、同じ要素には同じ符号を付してある。

[0042] 本開示の第1実施形態に係るケイ酸塩被覆体について説明する。

[0043] 本開示のケイ酸塩被覆体は、基体と、基体の少なくとも一部を被覆する第1のケイ酸塩と、第1のケイ酸塩に担持された機能性物質と、を有する。本開示において、用語「機能性物質」は、化合物の形態、イオン化前の塩の形態及び電離後のイオンの形態のいずれの形態を指すものとする。

[0044] 基体は、第1のケイ酸塩を生成するための生成条件に耐え得るものであると好ましい。基体は、後述する付着剤が物理的及び／又は化学的に付着可能な材料であると好ましい。基体は、第1のケイ酸塩を生成するための反応容器内に入れることができる大きさを有すると好ましい。基体は粉体の形態を採ることができる。

[0045] 基体が粉体である場合、基体粒子は、例えば、球状形状、（回転）楕円体形状、薄片形状、板状形状、不定形等の形状を採ることができる。基体粒子の大きさは、後述する付着剤よりも大きいと好ましい。基体粒子の大きさは、0.1 μm 以上、2 μm 以上、5 μm 以上、及び7 μm 以上とすることができる。また、基体粒子の大きさは、10 mm以下、1 mm以下、500 μm 以下、200 μm 以下、100 μm 以下、50 μm 以下、40 μm 以下、30 μm 以下及び25 μm 以下とすることができる。基体粒子の大きさは、メジアン粒子径（粒子径の中央値）であると好ましい。メジアン粒子径は、例えば、レーザー回折式粒度分布測定によって測定することができる。

[0046] 基体粒子が薄片状又は板状である場合、基体粒子の平均厚さは、0.05 μm 以上、0.1 μm 以上、及び0.3 μm 以上とすることができる。また、基体粒子の平均厚さは、2 μm 以下、1 μm 以下、0.5 μm 以下、0.3 μm 以下とすることができる。平均厚みの測定方法は、特に限定されない

が、例えば、電子顕微鏡の傾斜観察によって任意の個数の粒子の厚みを測定し、それらの平均値として算出することができる。

[0047] 基体粒子のアスペクト比（メジアン粒子径／平均厚さ）は、10以上、好ましくは50以上、より好ましくは70以上とすることができる。また、基体粒子のアスペクト比は、150以下、好ましくは100以下、より好ましくは90以下とすることができる。アスペクト比の決定方法は、特に限定されないが、例えば、電子顕微鏡の傾斜観察によって決定した任意の個数の粒子の粒子径と厚みを測定し、得られたメジアン粒子径の値を平均厚みの値で割ることで算出することができる。

[0048] 基体としては、例えば、第2のケイ酸塩、酸化アルミニウム（アルミナ）、ガラス等を挙げることができる。第2のケイ酸塩は、第1のケイ酸塩とは異なる層状ケイ酸塩とすることができる。第2のケイ酸塩は、水に対して膨潤性を有しないと好ましい。第2のケイ酸塩としては、例えば、マイカ（雲母）、タルク等を挙げることができる。

[0049] 基体として使用可能なマイカについて詳述する。マイカは、天然マイカ及び／又は合成マイカとすることができる。化学的安定性、不純物の少なさ及び平面の平滑性の観点からは合成マイカを使用すると好ましい。合成マイカとしては、例えば、カリウム金マイカ $[\text{KMg}_3(\text{AlSi}_3\text{O}_{10})\text{F}_2]$ 、カリ四ケイ素マイカ $[\text{KMg}_{2.5}(\text{Si}_4\text{O}_{10})\text{F}_2]$ 、カリウムテニオライト $[\text{KMg}_2\text{Li}(\text{Si}_4\text{O}_{10})\text{F}_2]$ 、ナトリウム金マイカ $[\text{NaMg}_3(\text{AlSi}_3\text{O}_{10})\text{F}_2]$ 、ナトリウムテニオライト $[\text{NaMg}_2\text{Li}(\text{Si}_4\text{O}_{10})\text{F}_2]$ 、ナトリウム四ケイ素マイカ $[\text{NaMg}_{2.5}(\text{Si}_4\text{O}_{10})\text{F}_2]$ 、ナトリウムヘクトライト $[\text{Na}_{1/3}\text{Mg}_{2.2/3}\text{Li}_{1/3}(\text{Si}_4\text{O}_{10})\text{F}_2]$ 等が挙げられる。

[0050] 合成マイカとしては、熔融法、水熱法、固体間反応法など何れの製法で得られたものでも使用できる。例えば、合成マイカ粉体は、カリウム、ナトリウム、マグネシウム、アルミニウム、ケイ素、フッ素等を含有する化合物を一定の割合で混合し、これを熔融、晶出、冷却後、機械的粉碎を行い、熱処

理、水洗、乾燥することにより得ることができる。例えば、合成フッ素金マイカ（カリウム金マイカ）の場合、無水ケイ酸、酸化マグネシウム、酸化アルミニウム及びケイフッ化カリウムを上記組成になる様に秤量し混合した後、 $1,400 \sim 1,500^{\circ}\text{C}$ で熔融し、室温まで冷却して合成フッ素金マイカを得ることができる。得られた合成フッ素金マイカの鉱塊を粉碎し、必要とすれば分級して合成マイカ粉体を得ることができる。

[0051] 第1のケイ酸塩は、基体を部分的に被覆してもよいし、基体全体を被覆してもよい。第1のケイ酸塩は、スメクタイト系ケイ酸塩を含むことができる。スメクタイト系ケイ酸塩は、例えば、ヘクトライトとすることができる。ヘクトライトの理想組成は、 $[\text{Li}_x(\text{Mg}_{6-x}\text{Li}_x\text{Si}_8\text{O}_{20}(\text{OH})_4 \cdot n\text{H}_2\text{O})]$ と表すことができる。

[0052] 基体表面上における第1のケイ酸塩の厚さは、 5 nm 以上、好ましくは 10 nm 以上とすることができる。また、基体表面上における第1のケイ酸塩の厚さは、 100 nm 以下、好ましくは 50 nm 以下とすることができる。第1のケイ酸塩の厚さは、透過型電子顕微鏡（TEM）によって確認することができる。

[0053] ケイ酸塩被覆体における第1のケイ酸塩の含有率は、ケイ酸塩被覆体の質量に対して $10\text{ 質量}\%$ 以上、又は $15\text{ 質量}\%$ 以上とすることができる。また、第1のケイ酸塩の含有率は、ケイ酸塩被覆体の質量に対して $30\text{ 質量}\%$ 以下、又は $25\text{ 質量}\%$ 以下とすることができる。

[0054] ケイ酸塩被覆体における第1のケイ酸塩の含有率は、例えば、ラングミュア（Langmuir）の吸着等温式から算出することができる。ラングミュアの吸着等温式は数1のように表すことができる。数1において、 q ：色素吸着量、 q_m ：最大色素吸着量（飽和吸着量）、 K ：平衡定数、及び C ：添加した色素濃度（平衡濃度）である。まず、一定量（例えば x グラム）の第1のケイ酸塩（例えばヘクトライト）と色素（例えばメチレンブルー）とを水中で混合し、上澄み液における第1のケイ酸塩に対する色素の吸着量 q を求める。色素の添加量 C を変えながらこれを繰り返し行い、各色素添加量 C に対する

色素の吸着量 q を求める。数 1 は、数 2 のように変形することができる。数 2 に従い、横軸を色素添加量 C 、縦軸を色素添加量／吸着量 C/q として測定値をプロットして、傾き $(1/q_m)$ と切片 $(1/q_m K)$ から第 1 のケイ酸塩への第 1 の最大色素吸着量 q_m 及び第 1 の平衡係数 K を求める。次に、同様にして、第 1 のケイ酸塩の代わりに一定量（例えば x グラム）の本開示のケイ酸塩被覆体について（すなわち、ケイ酸塩被覆体に含まれる第 1 のケイ酸塩について）色素添加量 C 及び色素の吸着量 q を測定して、第 2 の最大色素吸着量 q_m 及び第 2 の平衡係数 K を求める。そして、第 1 の最大色素吸着量 q_m と第 2 の最大色素吸着量 q_m とを比較することによって、ケイ酸塩被覆体における第 1 のケイ酸塩の含有率を求めることができる。

[0055] [数1]

$$q = \frac{q_m \cdot K \cdot C}{1 + K \cdot C}$$

[0056] [数2]

$$\frac{C}{q} = \frac{1}{q_m} \cdot C + \frac{1}{q_m \cdot K}$$

[0057] 第 1 のケイ酸塩は、後述する製造方法のように、基体面に合成することができる。第 1 のケイ酸塩の組成、構成、特性等について直接特定できない場合には、製造方法に基づいて特定することができる。

[0058] 機能性物質は、水にイオンの形態で溶解する物質であると好ましい。機能性物質は、無機化合物であってもよいし、有機化合物であってもよい。機能性物質は、カチオン性物質、アニオン性物質、両性物質、酸性物質、及び塩基性物質のうちのいずれであってもよい。機能性物質は、第 1 のケイ酸塩に含まれていると考えられる。機能性物質は第 1 のケイ酸塩と複合体を形成していると考えられる。機能性物質は、イオンの相互作用及び／又は静電的な相互作用により第 1 のケイ酸塩に吸着していると考えられる。

[0059] 機能性物質としては、例えば、抗菌、殺菌、滅菌、消毒等の作用を有する物質（抗菌剤、殺菌剤、滅菌剤、消毒剤等）を用いることができる。このような機能性物質としては、例えば、銀イオン、亜鉛イオン、銅イオン等の金

属イオン；銀イオン、亜鉛イオン、銅イオン等の金属イオンを含むイオン性金属錯体（例えば、ジアンミン銀イオン等）；第四級アンモニウム塩等のカチオン性界面活性剤（例えば、ベンザルコニウムイオン、ベンゼトニウムイオン、テトラエチルアンモニウムイオン、ジデシルジメチルアンモニウムイオン等）を挙げることができる。

[0060] 機能性物質がアニオン性物質及び／又は両性物質である場合、ケイ酸塩被覆体は、多価イオンをさらに含む。多価イオンは、2価以上のカチオンとすることができる。多価イオンとしては、例えば、アルカリ土類金属のイオン、金属イオン等を挙げることができる。多価カチオンとしては、例えば、マグネシウムイオン (Mg^{2+})、カルシウムイオン (Ca^{2+})、アルミニウムイオン (Al^{3+})、バリウムイオン (Ba^{2+}) 等を挙げることができる。多価カチオンには、ヘキサアクアアルミニウムイオン ($[\text{Al}(\text{H}_2\text{O})_6]^{3+}$) のような錯イオンも含まれ得る。

[0061] 以下に、第1のケイ酸塩が、スメクタイト系ケイ酸塩のように層状構造を有するケイ酸塩である場合を例にして、本開示に係るケイ酸塩被覆体の構造について説明する。図1及び図2に、本開示に係るケイ酸塩被覆体のイメージ図を示す。図1は、機能性物質がカチオン性物質である場合のイメージ図である。図2は、機能性物質がアニオン性物質及び／又は両性物質である場合のイメージ図である。ただし、以下に示す構造が実際の構造と異なっても実際の構造は本開示の範囲から外れるものではない。

[0062] 機能性物質32がカチオン性物質である場合、図1に示すように、スメクタイト系ケイ酸塩中の交換性陽イオンとのイオン交換によって第1のケイ酸塩に取り込まれていると考えられる。機能性物質32のイオン性部位と、第1のケイ酸塩のシート構造31とのイオンの／静電的な相互作用によって、機能性物質32は第1のケイ酸塩に吸着していると考えられる。

[0063] 機能性物質32がアニオン性物質及び／又は両性物質である場合、図2に示すように、機能性物質32は多価カチオン33を介在させて第1のケイ酸塩に取り込まれていると考えられる。機能性物質32は、第1のケイ酸塩の

シート構造 3 1 と同じ電荷を有するので、スメクタイト系ケイ酸塩中の交換性陽イオンとの直接的なイオン交換によって第 1 のケイ酸塩に取り込まれることはできない。そこで、シート構造 3 1 とは反対の電荷を有する多価カチオン 3 3 を機能性物質 3 2 と第 1 のケイ酸塩のシート構造 3 1 との間に介在させることによって、機能性物質 3 2 のイオン性官能基、多価カチオン 3 3 及び第 1 のケイ酸塩のシート構造 3 1 とのイオンの／静電的な相互作用により機能性物質 3 2 は第 1 のケイ酸塩に吸着していると考えられる。

[0064] 多価カチオン 3 3 は、第 1 のケイ酸塩のシート構造 3 1 の電荷と、シート構造 3 1 に対向する機能性物質 3 2 のイオン性官能基の電荷（あるいは機能性物質全体の電荷）と理論上等価である必要があるので、2 価以上の価数（例えば、2 価、3 価等）を有する必要がある。

[0065] 機能性物質の含有率は、目的とする用途、特性等に応じて、適宜設定することができる。

[0066] 機能性物質がカチオン性物質である場合、機能性物質の含有率は、例えば、ケイ酸塩被覆体の質量に対して、0.05 質量%以上、0.1 質量%以上、0.5 質量%以上、1 質量%以上、3 質量%以上、又は 5 質量%以上とすることができる。また、機能性物質の含有率は、例えば、ケイ酸塩被覆体の質量に対して、15 質量%以下、12 質量%以下、又は 10 質量%以下とすることができる。

[0067] 機能性物質がアニオン性物質である場合、機能性物質の含有率は、例えば、ケイ酸塩被覆体の質量に対して、0.05 質量%以上、0.1 質量%以上、0.5 質量%以上、1 質量%以上、3 質量%以上、又は 5 質量%以上とすることができる。また、機能性物質の含有率は、例えば、ケイ酸塩被覆体の質量に対して、10 質量%以下、8 質量%以下、又は 5 質量%以下とすることができる。

[0068] 多価カチオンの含有率は、アニオン性物質の含有率に応じて適宜設定することができる。多価カチオンの含有率は、例えば、ケイ酸塩被覆体の質量に対して、0.1 質量%以上、0.5 質量%以上、又は 1 質量%以上とするこ

とができる。多価カチオンの含有率は、例えば、ケイ酸塩被覆体の質量に対して、10質量%以下、8質量%以下、又は6質量%以下とすることができる。

[0069] ケイ酸塩被覆体における機能性物質の吸着量は、例えば、誘導結合質量分析（ICP-MS；Inductively Coupled Plasma-Mass Spectrometry）によって測定することができる。

[0070] 第1実施形態に係るケイ酸塩被覆体によれば、第1のケイ酸塩が、例えばヘクトライトのように、単独では微小なものであっても、表面上で第1のケイ酸塩の作用を発現させながら基体の大きさで取り扱うことができ、取扱い容易性を高めることができる。また、第1のケイ酸塩単体よりも第1のケイ酸塩の利用性を高めることができる。

[0071] 例えば、第1のケイ酸塩がスメクタイト系ケイ酸塩である場合、イオン交換によって、ケイ酸塩被覆体に機能性物質を担持させることができる。特に、基体（例えばマイカ）の層間イオンがカリウム等のイオン交換性の低い層間イオンであり、基体のイオン交換性が低い場合であっても、基体に機能性物質を担持させることができる。これにより、ケイ酸塩被覆体は、担持されている機能性物質に起因する作用を有することができる。例えば、抗菌性物質が担持されている場合、ケイ酸塩被覆体は、抗菌作用を有することができる。

[0072] 第1実施形態に係るケイ酸塩被覆体によれば、基体の選択によって第1のケイ酸塩単独である場合よりも表面積を大きくすることができる。これにより、例えば、ケイ酸塩被覆体を陽イオン吸着剤として使用する場合には、第1のケイ酸塩単独の場合よりも吸着効率を高めることができる。さらに、対象物を吸着した後のケイ酸塩被覆体の回収も容易となる。

[0073] 第1実施形態に係るケイ酸塩被覆体によれば、基体の選択によって第1のケイ酸塩の形状に多様性を持たせることができる。例えば、板状又は薄片状の基体を選択した場合には、第1のケイ酸塩も実質的に板状又は薄片状の形態で 사용할 ことができる。

- [0074] 第1実施形態によれば、ケイ酸塩被覆体の凝集を抑制することができる。これにより、機能性物質をケイ酸塩被覆体に均一に担持させることができる。ケイ酸塩被覆体は、基体（例えばマイカ系ケイ酸塩）に由来する良好な感触を有すると共に、高い取扱い性を有する。したがって、ケイ酸塩被覆体は、種々の用途に適用することができる。
- [0075] 第1実施形態に係るケイ酸塩被覆体によれば、第1のケイ酸塩の作用と基体の作用を併せ持つものを得ることができる。あるいは、第1のケイ酸塩によって基体の作用を調整ないし改善することができる。基体及び第1のケイ酸塩の機能を相互利用することによって、基体及び／又は第1のケイ酸塩の機能を調整、拡張及び／又は改善したりすることができる。
- [0076] 基体を金マイカ粉体、第1のケイ酸塩をヘクトライトとしたヘクトライト被覆マイカ粉体を例に挙げて説明する。ヘクトライト被覆マイカ粉体においては、金マイカ単体では成し得なかったカチオン交換性を金マイカに付与することができる。ヘクトライト被覆マイカ粉体は、例えば、別種金属陽イオン、有機物陽イオン、金属酸化物を吸着できるようになる。この機能を利用することにより、着色性イオンであれば、金マイカの色調を変化させることができ、機能性イオンであれば、金マイカに新たな機能を付与することが可能になる。この機能を活用することで、化粧品用途、工業用途において、着色板状顔料、機能性板状粉体として活用可能となる。機能性の付与形態としては、例えば、ヘクトライト中のイオンを別種金属カチオンもしくは金属酸化物に交換することによって、金マイカ表面に屈折率の異なる被膜を生成させ、意匠性等を付与することができる。また一方で、金マイカにヘクトライトを被覆することによって、金マイカ単独よりも体積及び比表面積を大きくことができ、吸油性を高めることができる。吸油性を高めることによって、皮脂崩れの抑制や化粧料に添加する油性成分を多くすることができる。また金マイカへのヘクトライトの被覆により粉体表面の性状を変更することで、光反射性・拡散性を調整することができる。
- [0077] 本開示の第2実施形態に係るケイ酸塩被覆体について説明する。図3及び

図4に、第2実施形態に係るケイ酸塩被覆体の概略断面図を示す。

[0078] 本開示のケイ酸塩被覆体10、20は、第1実施形態における基体1、第1のケイ酸塩2及び機能性物質4に加えて、付着剤3をさらに有する。付着剤3は、基体1上に存在することができる。少なくとも一部の第1のケイ酸塩2は、付着剤3を介して基体1を被覆することができる。第1のケイ酸塩2は、付着剤3の配列に沿って存在することができる。付着剤3は、基体1に第1のケイ酸塩2を付着させることができると好ましい。付着剤3は、第1のケイ酸塩を合成するための原料であると好ましい。第1のケイ酸塩2は、付着剤3と一体的に形成されていると好ましい。

[0079] 付着剤3は、例えば、シリカ及び／又はシリカ変性物であると好ましい。シリカ及び／又はシリカ変性物には、シリカの表面が改質された化合物も含まれ得る。シリカ変性物には、シリカ由来の化合物、反応過程中にシリカから生成した化合物等が含まれ得る。以下において、シリカ及び／又はシリカ変性物を「シリカ」と簡略的に称する。

[0080] シリカは粉体の形態を採ると好ましい。シリカ粒子は、基体表面に付着できるように基体より小さいと好ましい。シリカ粒子の平均粒径は、50nm以下であると好ましく、30nm以下であるとより好ましく、20nm以下であるとさらに好ましい。50nmを超えると、基体表面にシリカが付着しにくくなり、基体表面へのヘクトライトの生成が起こりにくくなると考えられる。

[0081] シリカ粒子の基体の大きさに対する比は、シリカ粒子の平均粒径と1としたとき、基体のメジアン粒径は、10以上、好ましくは50以上、より好ましくは100以上である。シリカ粒子が基体に対して相対的に大きくなると、基体への付着数が少なくなり、第1のケイ酸塩の被覆が少なくなってしまうからである。

[0082] 第2実施形態に係るケイ酸塩被覆体も第1実施形態に係るケイ酸塩被覆体と同様の効果を有することができる。付着剤を存在させることによって、第1のケイ酸塩と基体との接合性を高めることができる。

[0083] 本開示のケイ酸塩被覆体における上述以外の特徴は、本開示のケイ酸塩被覆体の構造又は特性により直接特定することが困難なものもあり、その場合には後述の製造方法によって特定することが有用である。例えば、付着剤の形態、組成、存在、分布、含有率等を直接特定できない場合には、後述の製造方法によってこれらを特定することが有用である。

[0084] 本開示の第3実施形態として、第1及び第2実施形態に係るケイ酸塩被覆体の製造方法について説明する。図5に、第2実施形態に係るケイ酸塩被覆体の構成及び生成メカニズムを説明するための模式図を示す。以下に説明する方法は一形態であって、本開示のケイ酸塩被覆体の製造方法は、以下の製造方法に限定されるものではない。また、以下の説明に含まれる反応メカニズムは補足的なものであって、本開示の製造方法を限定することを意図しない。すなわち、実際の反応メカニズムが後述のメカニズムと異なることが判明したとしても、以下の製造方法に影響するものではない。

[0085] 図6に、第3実施形態に係る製造方法のフローチャートを示す。

[0086] 第1のケイ酸塩を構成する元素を含む原料、原料の少なくとも一部を溶解させる溶解剤、及び基体を溶媒に添加した混合液を作製する（S11；第1の混合工程）。溶媒としては、例えば、水を使用することができる。混合液に超音波を付与することによって、添加物を溶媒中に分散させると好ましい。

[0087] 基体としては、第1実施形態において説明した基体を使用することができる。基体は、その表面にシリカ（二酸化ケイ素、無水ケイ酸； SiO_2 ）粒子を付着可能なものであると好ましい。

[0088] 第1のケイ酸塩を構成する元素を含む原料は、シリカ粉体（ゾル形態、ゲル形態含む）を含む。シリカ粉体は、第1のケイ酸塩の原料となると共に、基体に第1のケイ酸塩を被覆するための起点となり得る。第1のケイ酸塩がヘクトライト等のスメクタイト系ケイ酸塩である場合、原料は、リチウム化合物、マグネシウム化合物等を含むと好ましい。

[0089] シリカ粒子の形状は、特に限定されない。例えば、シリカ粒子は、例えば

、球形状、板状、鱗片状、不定形状等を有することができる。シリカは、多孔体であってもよいし、非多孔体であってもよい。シリカの表面は親水性であると好ましい。

[0090] シリカ粒子の大きさは、基体面に付着できるように基体（基体粒子含む）の大きさよりも小さいと好ましい。シリカ粒子の基体の大きさに対する比は、シリカ粒子の平均粒径と1としたとき、基体のメジアン粒径は、10以上であると好ましく、50以上であるとより好ましく、100以上であるとさらに好ましい。シリカ粒子が基体に対して相対的に大きくなると、基体への付着数が少なくなり、第1のケイ酸塩の被覆が少なくなってしまうからである。

[0091] シリカ粒子の粒径は、ケイ酸塩被覆粉体の表面積の設計に応じて適宜設定することができる。シリカ粉体の平均粒径は、例えば、5 nm以上、及び10 nm以上とすることができる。また、シリカ粉体の平均粒径は、例えば、2 μ m以下、1 μ m以下、500 nm以下、200 nm以下、100 nm以下、50 nm以下、及び20 nm以下とすることができる。

[0092] シリカ粉体の配合比は、基体1質量部に対して、0.02質量部以上であると好ましく、0.05質量部以上であるとより好ましく、0.08質量部以上であるとより好ましく、0.1質量部以上であるとより好ましく、0.15質量部以上であるとさらに好ましい。0.02質量部未満であると、スメクタイトの形成が不十分となってしまう。また、シリカ粉体の配合比は、0.7質量部以下であると好ましく、0.5質量部以下であるとより好ましく、0.3質量部以下であるとより好ましく、0.25質量部以下であるとさらに好ましい。0.7質量部を超えると、基体が凝集し、ヘクトライトによる被覆が困難となる。

[0093] リチウム化合物は、スメクタイトに含まれるリチウム元素の原料となり得るものであればよい。リチウム化合物としては、例えば、フッ化リチウム（LiF）、塩化リチウム（LiCl）等を使用することができる。

[0094] マグネシウム化合物は、スメクタイトに含まれるマグネシウム元素の原料

となり得るものであればよい。マグネシウム化合物としては、例えば、塩化マグネシウム (MgCl_2)、水酸化マグネシウム (Mg(OH)_2)、酸化マグネシウム (MgO) 等を使用することができる。

[0095] 溶解剤としては、シリカ粒子の表面部分を溶解可能な化合物であると好ましい。溶解剤としては、例えば、水酸化ナトリウム (NaOH)、加水分解によって水酸化物イオン (OH^-) を生成する化合物、例えば、尿素 ($\text{CO(NH}_2)_2$) 等を使用することができる。

[0096] 次に、混合液を加熱する (S12; 加熱工程)。加熱は加圧しながら行うと好ましい。例えば、混合液をオートクレーブで加熱及び加圧することができる。混合液は、例えば、 80°C 以上、好ましくは 100°C 以上で、30時間以上、好ましくは40時間以上加熱すると好ましい。

[0097] 加熱後、反応生成物を冷却する (S13; 冷却工程)。冷却は急冷で行うと好ましい。冷却後、反応生成物中の固形分を分離する (S14; 第1の分離工程)。分離は、遠心分離処理等によって行うことができる。次に、分離物を乾燥すること (S15; 第1の乾燥工程) によって、機能性物質担持前のケイ酸塩被覆体を得ることができる。適宜、洗浄工程等を設けることができる。

[0098] 第1の分離工程 (S14) 及び第1の乾燥工程 (S15) は、ケイ酸塩被覆体を単離しない場合には行う必要はない。

[0099] 図3は、基体としてマイカ粒子の面上に、ヘクトライトが被覆される過程を示す。ヘクトライトの被覆メカニズムは以下のものであると考えられる。まず、マイカ粒子表面に、シリカ粒子が付着する。次に、マイカ粒子表面に付着したシリカ粒子に、溶解剤である尿素が加水分解することによって生じた水酸化物イオンが攻撃する。この攻撃によってシリカ粒子の表層が溶解する。シリカ表層の溶解によって生じたケイ素化合物と、原料として添加したリチウム化合物及びマグネシウム化合物が反応して、シリカ粒子表面にヘクトライトが形成され、これによって、マイカ粒子にヘクトライトが被覆されることが考えられる。

- [0100] 基体面に第1のケイ酸塩が生成されているかどうかは、例えば、X線回折測定により確認することができる。また、陽イオン性色素（例えば、メチレンブルー）によって生成物が着色可能かどうかによっても確認することができる。
- [0101] 次に、水を含む水性溶媒、S15において作製したケイ酸塩被覆体、及び機能性物質を混合する（S16；第2の混合工程）。水性溶媒は、機能性物質を電離させることができると共に、機能性物質のケイ酸塩被覆体への吸着を阻害しないものであればよい。ケイ酸塩被覆体と機能性物質の添加順序はいずれが先でもよいし、同時でもよい。機能性物質は、別途、水に溶解させた水溶液をケイ酸塩被覆体の分散媒体に添加してもよい。機能性物質は、水性溶媒中においてイオン化しているものと考えられる。機能性物質としては上述のものを使用することができる。機能性物質は1種類であってもよいし、複数種類であってもよい。
- [0102] ケイ酸塩被覆体の添加率は適宜設定することができる。また、機能性物質の添加率は、所望の用途、特性に応じて適宜設定することができる。
- [0103] 機能性物質がアニオン性物質である場合には、電離によって多価カチオンを生成可能な塩や化合物（多価カチオン源）を水性溶媒に溶解させる。多価カチオン源としては、例えば、多価カチオンの塩化物、水酸化物等が挙げられる。例えば、多価カチオン源として、塩化カルシウム（ CaCl_2 ）、塩化マグネシウム（ MgCl_2 ）、塩化バリウム（ BaCl_2 ）、塩化アルミニウム水和物（ $[\text{Al}(\text{H}_2\text{O})_6]\text{Cl}_3$ ）等を挙げることができる。多価カチオン源は1種類であってもよいし、複数種類であってもよい。
- [0104] 担持速度を高めるため、ケイ酸塩被覆体及び機能性物質を含有する水性溶媒は攪拌すると好ましい。
- [0105] 機能性物質の添加量は、目的とする用途に応じて適宜設定することができる。機能性物質の添加割合は、例えば、S16において添加した未担持のケイ酸塩被覆体100質量部に対して、0.01質量部以上、0.1質量部以上、0.2質量部以上又は0.5質量部以上とすることができる。また、機

能性物質の添加割合は、例えば、未担持のケイ酸塩被覆体 100 質量部に対して、2 質量部以下、1.5 質量部以下、又は 1 質量部以下とすることができる。

[0106] 多価カチオン源の添加量は、アニオン性物質の添加量に応じて適宜設定することができる。多価カチオン源の添加割合は、例えば、S 16 において添加した未担持のケイ酸塩被覆体 100 質量部に対して、0.5 質量部以上、1 質量部以上、又は 2 質量部以上とすることができる。また、多価カチオン源の添加割合は、例えば、未担持のケイ酸塩被覆体 100 質量部に対して、12 質量部以下、10 質量部以下、又は 8 質量部以下とすることができる。

[0107] 次に、機能性物質を担持させたケイ酸塩被覆体を水性溶媒からろ過等により分離する（S 17；第 2 の分離工程）。次に、分離したケイ酸塩被覆体を乾燥させる（S 18；第 2 の乾燥工程）。これにより、ケイ酸塩被覆体を得ることができる。ケイ酸塩被覆体を単離する必要がある場合には第 2 の分離工程（S 17）及び第 2 の乾燥工程（S 18）を行わなくてもよい。適宜、洗浄工程等を設けることができる。

[0108] 通常、基体（例えばマイカ）と機能性物質とを混合するだけでは基体そのものに機能性物質を担持させることはできない。しかしながら、第 3 実施形態に係る製造方法によれば、直接的に機能性物質を担持させることが困難な基体に対しても機能性物質を簡易な方法で担持させることができる。

[0109] 第 3 実施形態に係る製造方法によれば、機能性物質がアニオン性及びカチオン性のいずれであっても基体に担持させることができる。機能性物質の選択及び組み合わせによってケイ酸塩被覆体に所望の機能を付与することができる。

[0110] 第 3 実施形態に係る製造方法によれば、第 1 実施形態及び第 2 実施形態に係るケイ酸塩被覆体を製造することができる。第 1 のケイ酸塩と基体との間に付着性・接合性がない場合であっても、本開示の製造方法によれば基体に第 1 のケイ酸塩を被覆することができる。また、基体が粉体であっても、粒子レベルで第 1 のケイ酸塩を被覆させることができる。本開示の製造方法に

よれば、第1のケイ酸塩の設計自由度を高めると共に、その用途を拡張することができる。

[0111] 本開示の第4実施形態として、第1実施形態及び第2実施形態に係るケイ酸塩被覆体の製造方法について説明する。第3実施形態においては、基体を第1のケイ酸塩で被覆してケイ酸塩被覆体を作製した後に機能性物質の担持を行ったが、第4実施形態においては、基体を第1のケイ酸塩で被覆すると同時に機能性物質を担持させる。

[0112] 第4実施形態においては、第3実施形態における第1の混合工程（S11）において機能性物質をさらに添加する。すなわち、第2の混合工程（S16）を第1の混合工程（S11）を同時に行う。アニオン性物質を用いる場合には、多価カチオン源となる塩も一緒に添加する。機能性物質及び多価カチオン源の添加以外は、第3実施形態と同様とすることができる。第3実施形態における第2の分離工程（S17）及び第2の乾燥工程（S18）も省略することができる。

[0113] 第4実施形態によれば、第3実施形態よりも簡略化した工程でケイ酸塩被覆体を得ることができる。第4実施形態は、機能性物質が加熱工程に耐え得ることができ、また機能性物質の凝集等の不具合が生じない場合に有用である。

[0114] 本開示の第5実施形態に係るケイ酸塩被覆体について説明する。第5実施形態に係るケイ酸塩被覆体は、第1、第2及び第7実施形態に係るケイ酸塩被覆体の着色形態に関する。図7及び図8に、第5実施形態に係るケイ酸塩被覆体の概略断面図を示す。図7及び図8は、第2実施形態に係るケイ酸塩被覆体の着色形態を示す。第1、第2及び第7実施形態に係るケイ酸塩被覆体については本開示の記載を援用し、ここでの説明は省略する。本開示において、用語「イオン性有機色素」は、イオン化前の塩の形態及び電離後のイオンの形態のいずれの形態を指すものとする。

[0115] 第5実施形態に係るケイ酸塩被覆体40、50は、第1、第2及び第7実施形態に係るケイ酸塩被覆体に対して、イオン性有機色素5をさらに含む。

イオン性有機色素5は、水にイオンの形態で溶解する有機化合物をいう。イオン性有機色素5としては、所望の色に応じて、カチオン性有機色素、アニオン性有機色素、両性色素、酸性有機色素、及び塩基性有機色素のうちの少なくとも1つを使用することができる。イオン性有機色素5は、第1のケイ酸塩2に含まれていると考えられる。イオン性有機色素5は第1のケイ酸塩2と複合体を形成していると考えられる。イオン性有機色素5は、イオンの相互作用及び／又は静電的な相互作用により第1のケイ酸塩2に吸着していると考えられる。

[0116] イオン性有機色素としては、例えば、「医薬品等に使用することができるタール色素を定める省令」に規定されているタール色素（法定色素）を使用することができる。イオン性有機色素としては、例えば、グループIに属する色素：例えば、アマランス（赤色2号）、エリスロシン（erythrosine）（赤色3号、テトラヨードフルオレセインナトリウム）、ニューコクシン（赤色102号）、フロキシシンB（赤色104号）、ローズベンガル（赤色105号）、アシッドレッド（赤色106号）、タートラジン（tartrazine）（黄色4号）、サンセットイエロー（黄色5号）、ファストグリーン（緑色3号）、ブリリアントブルー（青色1号、エリオグラウシンA、アシッドブルー9）及びインジゴカルミン（青色2号）、並びにグループIIに属する色素：例えば、リソールルビンB（赤色201号）、リソールルビンBCA（赤色202号）及びローダミン（rhodamine）B（赤色213号、ベーシックバイオレット10）のうちの少なくとも1つを挙げることができる。

[0117] カチオン性有機色素としては、例えば、メチレンブルー、ローダミンB等を使用することができる。アニオン性有機色素としては、例えば、エリスロシンB、タートラジン、サンセットイエローFCF、ブリリアントブルーFCF、アマランス、ニューコクシン、フロキシシンB、ローズベンガル、インジゴカルミン、サンセットイエロー、リソールルビンB等を使用することができる。両性有機色素としては、例えば、アシッドレッド、ファストグリーンFCF等を使用することができる。

- [0118] 有機色素がカチオン性とアニオン性のいずれであるかは対イオンで判断することができる。対イオンがアニオンである場合、有機色素は、その反対電荷であるカチオン性となる。対イオンがカチオンである場合、有機色素は、その反対電荷であるアニオン性となる。両性は、分子中にプラス電荷とマイナス電荷が分かれて存在し、分子全体の電荷がゼロである場合である。
- [0119] イオン性有機色素がアニオン性有機色素及び／又は両性有機色素である場合、ケイ酸塩被覆体は、多価イオンをさらに含む。多価イオンは、2価以上のカチオンとすることができる。多価イオンとしては、例えば、アルカリ土類金属のイオン、金属イオン等を挙げることができる。多価カチオンとしては、例えば、マグネシウムイオン (Mg^{2+})、カルシウムイオン (Ca^{2+})、アルミニウムイオン (Al^{3+})、バリウムイオン (Ba^{2+}) 等を挙げることができる。多価カチオンには、ヘキサアクアアルミニウムイオン ($[Al(H_2O)_6]^{3+}$) のような錯イオンも含まれ得る。
- [0120] イオン性有機色素は、図1及び図2に示す機能性物質と同様の形態で第1のケイ酸塩に担持されていると考えられる。すなわち、図1及び図2に示すイメージ図を第5実施形態に転用することができ、符号32をイオン性有機色素に置き換えることができる。
- [0121] イオン性有機色素の含有率は、目的とする色調に応じて、適宜設定することができる。
- [0122] イオン性有機色素がカチオン性色素である場合、イオン性有機色素の含有率は、例えば、ケイ酸塩被覆体の質量に対して、0.05質量%以上、0.1質量%以上、0.5質量%以上、1質量%以上、3質量%以上、又は5質量%以上とすることができる。また、イオン性有機色素の含有率は、例えば、ケイ酸塩被覆体の質量に対して、15質量%以下、12質量%以下、又は10質量%以下とすることができる。
- [0123] イオン性有機色素がアニオン性色素である場合、イオン性有機色素の含有率は、例えば、ケイ酸塩被覆体の質量に対して、0.05質量%以上、0.1質量%以上、0.5質量%以上、1質量%以上、3質量%以上、又は5質

量%以上とすることができる。また、イオン性有機色素の含有率は、例えば、ケイ酸塩被覆体の質量に対して、10質量%以下、8質量%以下、又は5質量%以下とすることができる。

[0124] 多価カチオンの含有率は、アニオン性有機色素の含有率に応じて適宜設定することができる。多価カチオンの含有率は、例えば、ケイ酸塩被覆体の質量に対して、0.1質量%以上、0.5質量%以上、又は1質量%以上とすることができる。多価カチオンの含有率は、例えば、ケイ酸塩被覆体の質量に対して、10質量%以下、8質量%以下、又は6質量%以下とすることができる。

[0125] ケイ酸塩被覆体におけるイオン性有機色素の吸着量は、例えば、分光分析による吸収波長解析によって測定することができる。着色ケイ酸塩被覆体のピーク強度と、濃度を規定した色素溶液のピーク強度とを比較することによって色素吸着量を確認することができる。

[0126] 第5実施形態に係るケイ酸塩被覆体によれば、上記実施形態の効果と同様の効果を得ることができる。本開示の第5実施形態に係るケイ酸塩被覆体は、例えば、顔料等として利用することができる。第1のケイ酸塩に吸着したイオン性有機色素は脱離しにくく、色落ちや色移りが起こりにくい。安全性の高いイオン性有機色素を用いることによって、安全性の高い着色ケイ酸塩被覆体を得ることができる。着色ケイ酸塩被覆体は、凝集しにくく使いやすい。したがって、例えば、着色ケイ酸塩被覆体は、化粧品等に適用することができる。

[0127] 本開示の第5実施形態に係るケイ酸塩被覆体によれば、イオン性有機色素の安定性を高めて褪色を抑制することができる。未吸着のイオン性有機色素には、光、熱、酸素等によって分解されやすいものが存在する。イオン性有機色素の分解が進行すると、褪色が生じることになる。しかしながら、イオン性有機色素を第1のケイ酸塩に吸着させることによってイオン性有機色素の分解を抑制することができる。したがって、着色ケイ酸塩被覆体をイオン性有機色素の代替物として用いることにより、発色の耐久性を高めることが

できる。

[0128] 本開示の第5実施形態に係るケイ酸塩被覆体は、顔料として高い使用性を有する。化粧品等に使用される通常の染料／顔料は、一般的に、乾燥工程を経て製造されるため凝集している。このため、通常の染料／顔料は、使用時に様々な方法で凝集を解砕させて使用されている。一方、本開示のケイ酸塩被覆体は凝集しにくい。このため、本開示の着色ケイ酸塩被覆体は、分散工程が不要となるため使用性が高いものとなっている。また、通常の染料／顔料が凝集すると発色変化や感度低下が生じるが、本開示のケイ酸塩被覆体によれば発色変化や感度低下を抑制することができる。

[0129] イオン性有機色素の選択によって、本開示の着色ケイ酸塩被覆体は、基体（例えばマイカ）単体では通常有しえない色を有することができる。

[0130] 本開示の第6実施形態として、第5実施形態に係るケイ酸塩被覆体の製造方法について説明する。図9に、第6実施形態に係る製造方法のフローチャートを示す。

[0131] イオン性有機色素は、上記実施形態における機能性物質と同様にして、第1のケイ酸塩に付着させることができる。すなわち、第6実施形態に係る製造方法は、上記実施形態に加えて、水を含む水性溶媒、いずれかの実施形態に係るケイ酸塩被覆体、及びイオン性有機色素を混合する工程（S21；第3の混合工程）をさらに含む。第6実施形態に係るケイ酸塩の被覆体の製造方法は、第3の混合工程後に、後述する第3の分離工程（S22）及び第3の乾燥工程（S23）をさらに含むこともできる。

[0132] 機能性物質とイオン性有機色素を第1のケイ酸塩に付着させる順序は、お互いの作用を阻害しない限り、いずれであってもよい。すなわち、第3の混合工程は、各工程を阻害しない限り、第3実施形態及び第4実施形態のいずれの工程に設けてもよい。例えば、第3の混合工程から第3の乾燥工程までを第1の乾燥工程（S15）後に行ってもよいし、第2の乾燥工程（S18）後に行ってもよい。また、第3の混合工程は、第1の混合工程（S15）と同時に行ってもよいし、第2の混合工程（S18）と同時に行ってもよい。

。

[0133] 水性溶媒は、イオン性有機色素を電離させることができると共に、イオン性有機色素のケイ酸塩被覆体への吸着を阻害しないものであればよい。ケイ酸塩被覆体とイオン性有機色素の添加順序はいずれが先でもよいし、同時でもよい。イオン性有機色素は、別途、水に溶解させた水溶液をケイ酸塩被覆体の分散媒体に添加してもよい。イオン性有機色素は、水性溶媒中においてイオン化しているものと考えられる。イオン性有機色素としては上述のものを使用することができる。イオン性有機色素は1種類であってもよいし、複数種類であってもよい。

[0134] ケイ酸塩被覆体の添加率は適宜設定することができる。また、イオン性有機色素の添加率は、着色の所望の濃淡に応じて適宜設定することができる。

[0135] イオン性有機色素がアニオン性有機色素である場合には、電離によって多価カチオンを生成可能な塩や化合物（多価カチオン源）を水性溶媒に溶解させる。多価カチオン源としては、例えば、多価カチオンの塩化物、水酸化物等が挙げられる。例えば、多価カチオン源として、塩化カルシウム（ CaCl_2 ）、塩化マグネシウム（ MgCl_2 ）、塩化バリウム（ BaCl_2 ）、塩化アルミニウム水和物（ $[\text{Al}(\text{H}_2\text{O})_6]\text{Cl}_3$ ）等を挙げることができる。多価カチオン源は1種類であってもよいし、複数種類であってもよい。

[0136] 着色速度を高めるため、ケイ酸塩被覆体及びイオン性有機色素を含有する水性溶媒は攪拌すると好ましい。

[0137] イオン性有機色素の添加量は、目的とする色調に応じて適宜設定することができる。イオン性有機色素の添加割合は、例えば、着色前のケイ酸塩被覆体100質量部に対して、0.01質量部以上、0.1質量部以上、0.2質量部以上又は0.5質量部以上とすることができる。また、イオン性有機色素の添加割合は、例えば、着色前のケイ酸塩被覆体100質量部に対して、2質量部以下、1.5質量部以下、又は1質量部以下とすることができる。

[0138] 多価カチオン源の添加量は、アニオン性有機色素の添加量に応じて適宜設

定することができる。多価カチオン源の添加割合は、例えば、着色前のケイ酸塩被覆体100質量部に対して、0.5質量部以上、1質量部以上、又は2質量部以上とすることができる。また、多価カチオン源の添加割合は、例えば、着色前のケイ酸塩被覆体100質量部に対して、12質量部以下、10質量部以下、又は8質量部以下とすることができる。

[0139] 次に、所望の程度まで着色したらろ過等により着色ケイ酸塩被覆体を水性溶媒から分離する（S22；第3の分離工程）。次に、分離した着色ケイ酸塩被覆体を乾燥させる（S23；第3の乾燥工程）。これにより、着色ケイ酸塩被覆体を得ることができる。着色ケイ酸塩被覆体を単離する必要がない場合には分離工程及び乾燥工程を行わなくてもよい。

[0140] 通常、基体（例えばマイカ）とイオン性有機色素とを混合するだけでは基体そのものに着色することはできない。しかしながら、第6実施形態に係る製造方法によれば、直接的に着色することが困難な基体に対しても着色する（発色させる）ことができる。また、簡易な方法で基体に着色することができる。

[0141] 第6実施形態に係る製造方法によれば、イオン性有機色素がアニオン性、カチオン性及び両性のいずれであっても基体に着色することができる。イオン性有機色素の選択及び組み合わせによって基体を所望の色に着色することができる。特に、基体単体では通常有しえない色を基体に着色することができる。

[0142] 本開示の第7実施形態に係るケイ酸塩被覆体について説明する。

[0143] 第7実施形態に係るケイ酸塩被覆体は、第1、第2及び第5実施形態のうちの1つの形態に係るケイ酸塩被覆体に対して、基体の少なくとも一部を被覆する中間層をさらに有する。第1、第2及び第5実施形態に係るケイ酸塩被覆体については本開示の記載を援用し、ここでの説明は省略する。

[0144] 中間層は、基体に物理的及び／又は化学的に付着可能な材料であると好ましい。中間層は、第1のケイ酸塩を生成するための生成条件に耐え得るものであると好ましい。中間層は、後述する付着剤が物理的及び／又は化学的に

付着可能な材料であると好ましい。中間層は、第1のケイ酸塩を生成するための反応容器内に入れることができる大きさを有すると好ましい。

[0145] 中間層としては、例えば、金属酸化膜を挙げることができる。例えば、中間層としては、基体上に干渉色を発現可能な金属酸化物、パール色（真珠光沢）を基体に着色可能な金属酸化物等を挙げることができる。例えば、干渉色を発現可能な金属酸化物としては、屈折率が高い金属酸化物が好ましい。例えば、2以上、好ましくは2.4以上、より好ましくは2.6以上の屈折率を有する金属酸化物を選択することができる。具体的には、金属酸化膜としては、酸化チタン膜、酸化鉄膜等を挙げることができる。酸化チタンの結晶構造は、ルチル型であってもよいし、アナターゼ型であってもよい。

[0146] 中間層は、基体を部分的に被覆してもよいし、基体全体を被覆してもよい。中間層の被覆割合は、ケイ酸塩被覆体の用途に応じて適宜設定することができる。例えば、中間層で干渉色を出したい場合には、中間層は基体全体を被覆すると好ましい。

[0147] 基体上における中間層の厚さは、所望の反射色になるように変更することができる。例えば、中間層がルチル型の酸化チタンである場合、厚さ50nm～70nmにするとシルバー色とすることができる。厚さ80nm～100nmにするとイエロー色とすることができる。厚さ105nm～125nmにするとレッド色とすることができる。厚さ135nm～155nmにするとブルー色とすることができる。厚さ160nm～180nmにするとグリーン色とすることができる。

[0148] 第7実施形態に係るケイ酸塩被覆体において、第1のケイ酸塩は、中間層の少なくとも一部を被覆する。中間層が基体全体を被覆している場合、第1のケイ酸塩は、中間層を介して基体を被覆することになる。

[0149] 第7実施形態に係るケイ酸塩被覆体によれば、上記実施形態の効果と同様の効果を得ることができる。また、第7実施形態によれば、例えば、基体とは異なる外観を呈する中間層を設けることによって、上記実施形態とは異なる外観を有するケイ酸塩被覆体を得ることができる。また、基体とは異なる

性質（例えば、化学的性質、物理的性質）を有する中間層を設けることによって、上記実施形態とは異なる性質（例えば、化学的性質、物理的性質）を得たり、基体を外的作用から保護したりすることができる。

[0150] 本開示の第8実施形態に係るケイ酸塩被覆体について説明する。図10及び図11に、第8実施形態に係るケイ酸塩被覆体の概略断面図を示す。第8実施形態に係るケイ酸塩被覆体は、第2実施形態と第7実施形態の組合せの形態とすることができる。

[0151] 本開示のケイ酸塩被覆体60、70は、第7実施形態における基体1、中間層6、第1のケイ酸塩2、及び機能性物質4に加えて、付着剤3をさらに有する。図10及び図11は、中間層6が基体1全面を被覆する形態を示すが、上述のように、基体1の一部を被覆するものでもよい。付着剤3は、中間層6及び／又は基体1上に存在することができる。少なくとも一部の第1のケイ酸塩2は、付着剤3を介して中間層6及び／又は基体1を被覆することができる。付着剤3を含むそれ以外の形態は、上記実施形態と同様であるので、上記記載を援用し、ここでの説明は省略する。

[0152] 第8実施形態に係るケイ酸塩被覆体も上記実施形態に係るケイ酸塩被覆体と同様の効果を有することができる。付着剤を存在させることによって、第1のケイ酸塩と中間層及び／又は基体との接合性を高めることができる。

[0153] 本開示の第9実施形態に係るケイ酸塩被覆体について説明する。第9実施形態は、第5実施形態と、第7実施形態及び／又は第8実施形態との組み合わせとすることができる。

[0154] 第9実施形態に係るケイ酸塩被覆体は、第7及び第8実施形態の各形態に加えて、イオン性有機色素をさらに含む。イオン性有機色素の形態は、第1のケイ酸塩との関連とも含めて、上記実施形態と同様であるので、上記記載を援用し、ここでの説明は省略する。また、イオン性有機色素がアニオン性有機色素である場合の多価カチオンについても、上記実施形態と同様であるので、上記記載を援用し、ここでの説明は省略する。

[0155] 第9実施形態によれば、第5実施形態と同様の効果を得ることができる。

特に、中間層が干渉色やパール色を有する場合には、イオン性有機色素の発色と組み合わせた外観を有するケイ酸塩被覆体を得ることができる。

[0156] 本開示の第10実施形態として、第7～第9実施形態に係るケイ酸塩被覆体の製造方法について説明する。図12に、第10実施形態に係る製造方法のフローチャートを示す。

第3実施形態においては、基体に第1のケイ酸塩を被覆していたが、第7～第9実施形態においては、中間層が被覆された基体に第1のケイ酸塩を被覆する。

[0157] 第10実施形態に係る製造方法は、第3実施形態における第1の混合工程（S11）の前に、基体に中間層を被覆する工程（中間層形成工程）S31をさらに含む。すなわち、第1の混合工程（S32）においては、基体の代わりに、中間層で被覆された基体を使用する。第10実施形態における他の工程については、上記実施形態と同様とすることができるので、上記記載を援用し、ここでの説明は省略する。上記実施形態に係るケイ酸塩被覆体を製造する場合には、冷却工程（S34）の後に、各実施形態に係る各工程を行えばよい。

[0158] 中間層形成工程（S31）における基体への中間層の被覆方法は、いずれの方法であってもよい。例えば、基体への中間層の被覆方法は、物理的方法であってもよいし、化学的方法であってもよい。例えば、中間層が金属酸化膜である場合、公知の方法を用いて、基体上に金属酸化物を被覆することができる。

[0159] 例えば、基体としてマイカを使用し、中間層としてマイカに酸化チタンを被覆する場合、マイカを水中に分散させた状態において、四塩化チタンを加水分解することによって、マイカ上に酸化チタン前駆化合物を析出させる。次に、単離した生成物を焼成することによって、酸化チタンが被覆されたマイカを得ることができる。

[0160] 例えば、基体としてマイカを使用し、中間層としてマイカに酸化鉄（ Fe_2O_3 、 Fe_3O_4 ）を被覆する場合、マイカを水中に分散させた状態において、

2価の鉄イオン (Fe^{2+}) を酸化することによって、マイカ上に酸化鉄 (Fe_3O_4) を析出させることができる。また、任意に、単離した生成物を焼成することによって、酸化鉄 (Fe_2O_3) が被覆されたマイカを得ることができる。

[0161] 第10実施形態に係る製造方法によれば、第7～第9実施形態に係るケイ酸塩被覆体を製造することができる

[0162] 本開示のケイ酸塩被覆体はその組成、構造、特性等によって直接特定することが困難であるか、又はおよそ实际的ではない場合がある。このような場合には、その製造方法によって本開示のケイ酸塩被覆体物を特定することが許されるべきものである。

実施例

[0163] 以下に、本開示のケイ酸塩被覆体及びその製造方法について、例を挙げて説明する。しかしながら、ケイ酸塩被覆体及びその製造方法は、以下の例に限定されるものではない。

[0164] [試験例1～6]

[ヘクトライト被覆マイカの作製]

基体としてマイカを有し、第1のケイ酸塩としてヘクトライトを有するケイ酸塩被覆マイカを作製した。合成マイカ (金雲母; $\text{KMg}_3\text{AlSi}_3\text{O}_{10}\text{F}_2$)、シリカゾル、 LiF 、 MgCl_2 及び尿素を水に入れ、これらを超音波で分散させた。合成マイカは、メジアン粒子径 $12\mu\text{m}$ 、平均厚さ $0.3\mu\text{m}$ のものを用いた。シリカゾルは、平均粒径 10nm のものを用いた。シリカ粒子は球形状、非多孔質及び親水性であった。シリカ (純分) の配合比は、合成マイカ 1g に対して、 0.1g (試験例1)、 0.2g (試験例2)、 0.3g (試験例3)、 0.4g (試験例4)、 0.5g (試験例5) 及び 1g (試験例6) と変化させた。シリカゾル、 LiF 、 MgCl_2 及び尿素の配合比は、モル比で、 $\text{Si元素}:\text{Li元素}:\text{Mg元素}:\text{尿素}=40:7:28:255$ とした。次に、混合液をオートクレーブにて 100°C で 48 時間加熱加圧処理した。次に、反応生成物を急冷させた後、遠心分離処理に

よって固形分を分離し、分離した固形分を乾燥させた。得られた固形分について分析を行った。

[0165] [X線回折測定]

試験例1～6の反応生成物のX線回折測定を行った（CuK α 線；Rigaku RINT 2200V/PC）。図13に、試験例1～6で得られた反応生成物のX線回折パターンを示す。図13に示すパターンは、上から順に試験例1～6のパターンを示す。比較対照として、図21に、合成マイカ単独のX線回折パターンを示す。図22に、ヘクトライト単独のX線回折パターンを示す。図13に示すいずれのX線回折パターンにもヘクトライトのピークが現れている。したがって、試験例1～6においてはヘクトライトが生成されていると考えられる。図21に示すマイカのパターンには、例えば、 2θ が約 9° 、 27° 及び 45° の位置にピークが存在するが、図13に示すパターンにも同じ位置にピークが存在している。これより、生成物にはマイカが残存していることも分かる。

[0166] 反応生成物のX線回折パターンとヘクトライトのX線回折パターンとを対比することによって、ヘクトライトの生成の有無についてより詳細に検討する。図14に、試験例1に係る反応生成物のX線回折パターンを示す。図15に、図14及び図22に示すパターンのうち、 $2\theta = 2^\circ \sim 12^\circ$ の範囲を拡大した生成物及びヘクトライトのX線回折パターンを示す。図22に示すヘクトライトのパターンには、 $2\theta = 2^\circ \sim 8^\circ$ にかけてブロードなピークが存在する。一方、図21に示すマイカのパターンには、 $2\theta = 2^\circ \sim 8^\circ$ にはピークが存在していない。そこで、反応生成物の $2\theta = 2^\circ \sim 8^\circ$ のピークに着目してヘクトライトの生成の有無を確認することができる。

[0167] 図15に示す試験例1に係るパターンを見ると、ヘクトライトのパターンと同様に $4^\circ \sim 8^\circ$ にかけてブロードな弱いピークが存在している。このピークはヘクトライトに由来するピークと考えられる。すなわち、反応生成物はヘクトライトを有していると考えられる。図15において、試験例1のピークは、ヘクトライトのピークよりも高角側に存在している。これは、

ヘクトライトの層間に水が入り込むことによって、試験例 1 のピークが高角側にシフトしたものと考えられる。

[0168] 図 16～図 20 に、図 15 と同様の、 $2\theta = 2^\circ \sim 12^\circ$ の範囲における試験例 2～6 の生成物及びヘクトライトの X 線回折パターンをそれぞれ示す。X 線回折パターンによれば、試験例 2～6 においてもヘクトライトは生成していると考えられる。しかしながら、試験例 4～6 においては、シリカの添加量が増えるにつれてヘクトライトのピーク強度が弱くなる傾向が見受けられた。したがって、シリカの添加量の増加に伴い、ヘクトライトの生成量は減少していると考えられる。

[0169] [走査型電子顕微鏡 (SEM) 観察]

試験例 1～5 における生成物について電界放出型走査型電子顕微鏡 (Hitachi SU-8000) を用いて粒子の外観及び表面を観察した。図 23～図 25 に、試験例 1 における生成物の SEM 画像を示す。図 26～図 28 に、試験例 2 における生成物の SEM 画像を示す。図 29～図 31 に、試験例 3 における生成物の SEM 画像を示す。図 32～図 34 に、試験例 4 における生成物の SEM 画像を示す。図 35～図 37 に、試験例 5 における生成物の SEM 画像を示す。比較対照として、図 38～図 40 に、合成マイカ単独の SEM 画像を示す。

[0170] 図 23～図 37 の画像において、平板状の粒子 (基体粒子) はマイカ粒子である。図 38～図 40 に示すマイカ単独の SEM 画像によれば、マイカの表面は平滑となっている。一方、図 23～図 37 に示された粒子の表面は平滑ではない (例えば、微細な凸凹が存在する)。したがって、図 23～図 37 の画像において、粒子の表面の平滑でない領域に存在する物質 (繊維状の隆起物ないし付着物) は、ヘクトライト及び／又はシリカであると考えられる。したがって、試験例 1～5 のいずれにおいてもヘクトライト被覆マイカを形成することができたと考えられる。また、例えば、図 27 に示す粒子において、平滑に見える領域は、マイカが露出している部分と考えられる。一方で、シリカの添加量が多くなるにつれて、マイカ粒子の凝集及び固化が観

察された。

[0171] [吸着等温線の作成]

試験例 1 ～ 5 の生成物にメチレンブルーを吸着させて反応生成物に色素沈着が生じるかを確認した。また、メチレンブルーの吸着量からヘクトライトの生成量を測定した。

[0172] メチレンブルーの濃度が異なる 6 種類のメチレンブルー水溶液を調製した。各濃度のメチレンブルー水溶液 25 mL に、各試験例の生成物 50 mg を浸漬させ、25℃で24時間水溶液を往復振盪させた。振盪させた水溶液を遠心分離処理（3krpm、10分間）し、上澄み液の吸光度（ $\lambda = 665 \text{ nm}$ ）を測定した。得られた吸光度から、生成物 1 g 当たりのメチレンブルー吸着量 $q \text{ (mmol/g)}$ を算出した。そして、横軸をメチレンブルー濃度（平衡濃度） $C \text{ (mmol/L)}$ 、縦軸をメチレンブルー濃度／メチレンブルー吸着量 $C/q \text{ (g/L)}$ として測定値をプロットし、近似直線を求めた。また、近似直線の傾きの逆数からメチレンブルーの飽和（最大）吸着量 $q_m \text{ (mmol/g)}$ 、切片から平衡係数 $K \text{ (L/mol)}$ を求めた。そして、得られた最大吸着量 q_m 及び平衡係数 K から吸着等温線の理論曲線を求めた。表 1 に、調製したメチレンブルー水溶液の濃度 C を示す。表 2 に、算出された飽和吸着量 q_m 、平衡係数 K 、及び近似直線の相関係数を示す。例として、図 4 1 及び図 4 2 に、試験例 5 に係る近似直線及び吸着等温線の理論曲線を示す。図 4 3 に、メチレンブルー水溶液に生成物を浸漬させた直後の状態を示す写真、浸漬後 3 時間の状態を示す写真、並びに 24 時間後に水溶液から分離して、洗浄及び乾燥させた写真を示す。

[0173] 図 4 3 に示すように、メチレンブルー水溶液への添加によって生成物は青色に着色された。ヘクトライトにはメチレンブルーは吸着するが、マイカ及びシリカにはメチレンブルーは吸着しないことから、試験例 1 ～ 5 の生成物にはヘクトライトが形成されていると考えられる。また、分離した粉末には色むらが観察されなかったことから、ヘクトライトはマイカ粉末にまんべんなく付着しているものと考えられる。

[0174] 試験例 1 ～ 5 の順にシリカの添加量を増やしているが、表 2 に示すように、試験例 1 から試験例 2 までは飽和吸着量 q_m の増加が確認された。しかしながら、試験例 2 ～ 5 においては、飽和吸着量 q_m の増加は確認されなかった。これより、ヘクトライトの生成量はシリカの添加量に依存すると考えられる。

[0175] [表1]

	メチレンブルー濃度 C (mmol/L)
試験例 1	0.065, 0.130, 0.195, 0.26, 0.325, 0.390
試験例 2 ～ 5	0.14, 0.28, 0.42, 0.56, 0.7, 0.84

[0176] [表2]

	飽和吸着量 q_m (mmol/g)	平衡係数 K (10 ⁵ L/mol)	相関係数 r^2
試験例 1	0.11	8.4	0.99
試験例 2	0.24	0.34	0.95
試験例 3	0.24	0.26	0.95
試験例 4	0.10	-	-
試験例 5	0.22	0.94	0.99

[0177] 以上より、X線回折測定、SEM画像分析、及び可視紫外分光分析を総合すれば、試験例 1 ～ 5 においては、マイカ粒子の少なくとも一部にヘクトライトを被覆させたヘクトライト被覆マイカを生成できたと考えられる。ただし、シリカの添加量を多くすると、シリカが接着剤として作用してマイカ粒子同士を凝集させたり、シリカ重合体が生成し、マイカ表面を覆ったりすることによって、ヘクトライトの生成ないし被覆が阻害されることが考えられる。これより、マイカにヘクトライトを好適に付着させる条件は、マイカ 1 g に対してシリカ 0.1 g 以上、好ましくは 0.15 g 以上が好ましいと考えられる。また、粉末の凝集・固化を抑制するためには、マイカ 1 g に対してシリカ 0.3 g 以下、好ましくは 0.25 g 以下が好ましいと考えられる。

[0178] [試験例 7]

試験例 1 ～ 6 において得られた生成物について、ヘクトライト、マイカ及びシリカの関係を確認するため、マイカに対してヘクトライトが直接付着するかを確認した。具体的には、シリカ、マグネシウム化合物及びリチウム化

合物を含有していない合成マイカ、ヘクトライト及び尿素の混合物について試験例 1～6 と同様の試験を行った。すなわち、合成マイカ、ヘクトライト、及び尿素を水に分散させて、試験例 1～6 と同条件で加熱加圧処理を行い、処理物を回収した。

[0179] 得られた処理物の SEM 画像を撮影した。図 4 4 及び図 4 5 に、処理物の SEM 画像を示す。SEM 画像によれば、マイカとヘクトライトとは分離しており、マイカとヘクトライトの付着は確認されなかった。一方で、ヘクトライトの凝集が確認された。これより、試験例 1～6 においても、生成されたヘクトライトの大部分は、マイカ上には直接付着していないと考えられる。

[0180] [試験例 8]

試験例 1～6 において得られた生成物について、ヘクトライト、マイカ及びシリカの関係を確認するため、マイカに対してシリカが直接付着するかを確認した。具体的には、マグネシウム化合物及びリチウム化合物を含有していない合成マイカ、シリカ及び尿素の混合物について試験例 1～6 と同様の試験を行った。すなわち、合成マイカ、シリカゾル、及び尿素を水に分散させて、試験例 1～6 と同条件で加熱加圧処理を行い、処理物を回収した。

[0181] 得られた処理物の SEM 画像を撮影した。図 4 6 及び図 4 7 に、処理物の SEM 画像を示す。SEM 画像によれば、マイカ表面にシリカ粒子が付着していることが確認された。これより、試験例 1～6 において得られた生成物においても、マイカ上にはシリカが付着しているものと考えられる。

[0182] 試験例 7 によれば、ヘクトライトはマイカに吸着しない。試験例 8 によれば、シリカはマイカに吸着する。上記特許文献 2 及び非特許文献 1 によれば、ヘクトライトはシリカ上に生成される。これより、ヘクトライト被覆過程においては、まず、マイカにシリカ（及び／又はシリカ由来のケイ素化合物）が付着する。そして、付着したシリカの表面の一部が水酸化物イオンによって攻撃され、他の原料と反応することによってシリカを起点にしてヘクトライトが形成され、この結果、ヘクトライトがマイカを被覆すると考えられ

る。

[0183] これより、本開示の方法によれば、ヘクトライトとの付着性が低い基体であっても、シリカを付着可能な基体であれば、ヘクトライト等のスメクタイト系ケイ酸塩で被覆可能であると考えられる。

[0184] [試験例 9 ～ 13]

試験例 1 において作製したケイ酸塩被覆体に、機能性物質として抗菌性物質（抗菌剤）を担持させた。抗菌剤としては、塩化ジアンミン銀（試験例 9）、硝酸銀（試験例 10）及び酢酸銀（試験例 11）を用いた。

[0185] 試験例 9 においては、まず、塩化銀 0.1 g、水 10 g、及び 25%アンモニア水 0.2 g を混合し、塩化ジアンミン銀水溶液を作製した。試験例 1 において作製したケイ酸塩被覆体 30 g と水 270 g とを混合した。ケイ酸塩被覆体の分散液に塩化ジアンミン銀水溶液を徐々に添加し、30 分以上攪拌混合した。次に、分散液中の粉末を脱水ろ過により単離し、再度水に分散させて洗浄した。次に、粉末を脱水ろ過により単離し、110℃で一晩乾燥させた。

[0186] 試験例 10 においては、まず、水 300 g に 0.5 M 硝酸銀溶液 2.5 g を添加し、室温で 10 分間攪拌した。この硝酸銀水溶液に、試験例 1 において作製したケイ酸塩被覆体 15 g 添加して、室温で 1.5 時間攪拌した。次に、脱水ろ過により粉体を単離し、110℃で一晩乾燥させた。

[0187] 試験例 11 においては、まず、水 300 g に 97%酢酸銀水溶液 0.2 g を添加し、室温で 10 分間攪拌した。この酢酸銀水溶液に、試験例 1 において作製したケイ酸塩被覆体 15 g 添加して、室温で 1.5 時間攪拌した。次に、脱水ろ過により粉体を単離し、110℃で一晩乾燥させた。

[0188] 試験例 9 ～ 11 において、抗菌剤がケイ酸塩被覆体に担持されているかどうか、また、ケイ酸塩被覆体が抗菌作用を有するかどうかを確認する試験を行った。ケイ酸塩被覆体の抗菌性試験は、JIS L 1902（2015）「繊維製品の抗菌性試験方法及び抗菌効果」におけるハロー法を参考にして行った。試験菌株は、黄色ブドウ球菌（*Staphylococcus aureus* subsp. *aureus*）

NBRC 12732) 及び大腸菌 (*Escherichia coli* NBRC 3301) を用いた。比較対照として、試験例 12 及び 13 においては、比較対照として、合成金マイカ (ケイ酸塩被覆無し) 及び試験例 1 において作製したケイ酸塩被覆体 (抗菌剤担持無し) についても抗菌性試験を行った。表 3 に、条件及び結果を示す。表 3 に示すペレット中のケイ酸塩被覆体の濃度「4 g / 10 g」とは、ケイ酸塩被覆体と精製水の混合物 10 g 中にケイ酸塩被覆体が 4 g 含まれていることを示す。図 48 に、試験例 9-1 におけるハロー試験の写真を示す。図 49 に、試験例 9-2 におけるハロー試験の写真を示す。図 50 に、試験例 12-1 におけるハロー試験の写真を示す。図 51 に、試験例 12-2 におけるハロー試験の写真を示す。図 52 に、試験例 13-1 におけるハロー試験の写真を示す。図 53 に、試験例 13-2 におけるハロー試験の写真を示す。

[0189] 図 50～図 53 に示すように、試験例 12 の合成マイカ及び試験例 13 の抗菌剤無担持のケイ酸塩被覆体の試料周囲にはハロー (生育阻止帯) の形成は認められなかった。一方、試験例 9～11 においては、図 48 及び図 49 に示すように、いずれも試料周囲にハローの形成が認められた。

[0190] これより、ケイ酸塩被覆体における第 1 のケイ酸塩には、イオン交換により、抗菌性物質等のイオン性機能性物質を担持できることが分かった。例えば、試験例 9～11 においては、抗菌性物質としてジアンミン銀イオン又は銀イオンが第 1 のケイ酸塩に担持されていると考えられる。

[0191] ケイ酸塩被覆体における第 1 のケイ酸塩に機能性物質を担持させることによって、機能性物質に基づく機能を発揮できることが分かった。例えば、ケイ酸塩被覆体における第 1 のケイ酸塩に抗菌性物質を担持させることによって、ケイ酸塩被覆体に抗菌作用を付与できることが分かった。

[0192]

[表3]

	試料	抗菌剤原料	濃度	試験菌	菌濃度 (/ml)	ハローの幅(mm)
試験例9-1	抗菌剤担持	塩化ジア ンミン銀	4g/10g	黄色ぶどう球菌	6.2×10^6	2.5
試験例9-2	ケイ酸塩被覆体			大腸菌	9.5×10^6	3.0
試験例10-1	抗菌剤担持	硝酸銀	4g/10g	黄色ぶどう球菌	5.0×10^6	1.6
試験例10-2	ケイ酸塩被覆体			大腸菌	7.4×10^6	1.6
試験例11-1	抗菌剤担持	酢酸銀	4g/10g	黄色ぶどう球菌	5.0×10^6	1.3
試験例11-2	ケイ酸塩被覆体			大腸菌	7.4×10^6	1.8
試験例12-1	合成マイカ	-	4g/10g	黄色ぶどう球菌	4.7×10^6	-
試験例12-2				大腸菌	5.2×10^6	-
試験例13-1	無担持	-	4g/10g	黄色ぶどう球菌	4.7×10^6	-
試験例13-2	ケイ酸塩被覆体			大腸菌	5.2×10^6	-

[0193] [試験例 1 4 ~ 1 9]

イオン性有機色素で着色した着色ケイ酸塩被覆体を作製した。試験例 1 で作製したケイ酸塩被覆体を原料として用いた。カチオン性有機色素としては、メチレンブルー（試験例 1 4 及び 1 5）及びローダミン B（試験例 1 6）を用いた。アニオン性有機色素として、ブリリアントブルー F C F（試験例 1 7）、エリスロシン B（試験例 1 8）及びタートラジン（試験例 1 9）を用いた。試験例 1 4 及び 1 5 においてはメチレンブルーの量を変えた。得られた着色ケイ酸塩被覆体について C I E 1 9 7 6 L * a * b * 色空間（J I S Z 8 7 8 1）を測定した。色空間は、粉体セルに試料を 0. 7 g 充填し、コニカミノルタ社製色差計 C R - 4 0 0 を用いて測定した。表 4 に、イオン性有機色素の添加率及び着色ケイ酸塩被覆体の色調を示す。表 4 に示す添加割合は、着色前のケイ酸塩被覆体 1 0 0 質量部に対する添加割合（質量部）である。各試験例の詳細を以下に説明する。

[0194] [表4]

	イオン性有機色素		カチオン源 (質量部)	色調		
	名称	質量部		L *	a *	b *
試験例 1 4	メチレンブルー	0.05	-	82.95	-9.18	-10.95
試験例 1 5	メチレンブルー	0.90	-	54.23	3.61	-20.24
試験例 1 6	ローダミン B	0.27	-	74.62	36.81	-13.82
試験例 1 7	ブリリアントブルー F C F	0.20	4	74.33	-11.87	-20.40
試験例 1 8	エリスロシン B	0.20	4	77.80	31.84	-0.07
試験例 1 9	タートラジン	0.40	6	90.70	-3.37	33.15

[0195] 試験例 1 4 及び 1 5 においては、試験例 1 ～ 5 における上述の吸着等温線の作成のために着色試料を作製した方法と同様の方法でメチレンブルーを着色前のケイ酸塩被覆体に吸着させた。図 5 4 及び図 5 5、試験例 1 4 及び 1 5 で得られた着色ケイ酸塩被覆体の写真をそれぞれ示す。図 5 4 に示すように、メチレンブルー濃度の薄い試験例 1 4 おいては薄い青色に着色されたケイ酸塩被覆体を得ることができ、図 5 5 に示すように、メチレンブルー濃度の濃い試験例 1 5 においては濃い青色に着色されたケイ酸塩被覆体を得ることができた。これより、イオン性有機色素の添加割合に応じてイオン性有機色素の吸着量を変化させることによって、着色ケイ酸塩被覆体の色調の濃淡を調節することができることが分かった。

[0196] 試験例 1 6 においては、着色前のケイ酸塩被覆体を 1 0 質量%となるように水に添加した。次に、表 4 に示す添加割合でローダミン B を添加して混合物を 1 時間攪拌した。次に、遠心分離で生成物体を脱水ろ過した後、1 0 0 °C で乾燥させた。乾燥物を 1 2 0 メッシュの篩でふるい分けして着色ケイ酸塩被覆体を得た。図 5 6 に、試験例 1 6 で得られた着色ケイ酸塩被覆体の写真を示す。ピンク色に着色されたケイ酸塩被覆体を得ることができた。

[0197] 試験例 1 7 ～ 1 9 においては、それぞれ、着色前のケイ酸塩被覆体を 1 0 質量%となるように水に添加した。次に、表 4 に示す添加割合で各有機色素を添加した。次に、多価カチオン源として塩化アルミニウム水和物を表 4 に示す添加割合で添加して 1 時間以上攪拌した。次に、遠心分離で生成物体を脱水ろ過した後、1 0 0 °C で乾燥させた。乾燥物を 1 2 0 メッシュの篩でふるい分けして着色ケイ酸塩被覆体を得た。図 5 7 ～ 図 5 9 に、試験例 1 7 ～ 1 9 で得られた着色ケイ酸塩被覆体の写真を示す。試験例 1 7 においては青色に着色されたケイ酸塩被覆体を得ることができた。試験例 1 8 においては赤色に着色されたケイ酸塩被覆体を得ることができた。試験例 1 9 においては黄色に着色されたケイ酸塩被覆体を得ることができた。

[0198] 試験例 1 9 の比較例として、被着色体として、着色前のケイ酸塩被覆体の代わりに、同じ粒子径の合成マイカを使用した以外は試験例 1 9 と同じ方法

で着色工程を行った。図60に、試験例19と比較例の着色過程における遠心分離脱水前の混合液を静置した状態を示す。被着色体としてケイ酸塩被覆体を用いた混合液（右側）では上澄み液が透明になった。一方、被着色体として合成マイカを用いた混合液（左側）では上液が濁ったままであった。すなわち、合成マイカに色素吸着が生じなかったことが示された。これより、イオン性有機色素はヘクトライトに吸着しているものと考えられる。

[0199] これより、本開示の方法がマイカの着色に有用であることが分かった。また、イオン性有機色素を用いることによって所望の色に着色したマイカ等の基体を得ることができることが分かった。

[0200] 試験例14～19において作製した着色ケイ酸塩被覆体からの色素の脱着の有無を確認した。また、着色ケイ酸塩被覆体及びイオン性有機色素について、肌に対する除去容易性を比較した。試験例14～19の着色ケイ酸塩被覆体及びイオン性有機色素をそれぞれ肌に塗布した後、水で軽く洗い流すことによって肌から色が落ちるかを目視で確認した。色落ちの評価基準を以下に示す。結果を表5に示す。

A：軽く水を流すだけで肌から色を落とすことができる；

B：軽く水を流すだけでは肌に色が残る。

[0201] イオン性有機色素そのものを肌に塗布すると、水で流しても皮溝に色素が入り込み、肌に色が残ってしまった。一方、着色ケイ酸塩被覆体は水を流すだけで肌から容易に色を落とすことができた。これにより、着色ケイ酸塩被覆体に吸着したイオン性有機色素は、ケイ酸塩被覆体から容易に脱着しないことが確認された。また、着色ケイ酸塩被覆体は、除去容易性が高いことが確認された。

[0202]

[表5]

塗布物	色落ち評価
試験例 1 4 の着色ケイ酸塩被覆体	A
試験例 1 5 の着色ケイ酸塩被覆体	A
試験例 1 6 の着色ケイ酸塩被覆体	A
試験例 1 7 の着色ケイ酸塩被覆体	A
試験例 1 8 の着色ケイ酸塩被覆体	A
試験例 1 9 の着色ケイ酸塩被覆体	A
メチレンブルー	B
ローダミンB	B
ブリリアントブルーFCF	B
エリスロシンB	B
タートラジン	B

[0203] [試験例 20～28]

イオン性有機色素で着色した着色ケイ酸塩被覆体を作製した。イオン性有機色素の付着方法は、基本的に試験例 16～19と同様である。試験例 1 で作製した着色前のケイ酸塩被覆体を 10 質量%となるように水に添加した。表 6 に、使用したイオン性有機色素及びその添加割合を示す。表 6 に示す添加割合は、着色前のケイ酸塩被覆体 100 質量部に対する添加割合（質量部）である。

[0204] 試験例 20～23 においては、次に、多価カチオン源として塩化アルミニウム水和物を 4 質量部添加して攪拌した。次に、色素イオンの吸着を促進するために水酸化ナトリウムを 0.8 質量部添加して 1 時間以上攪拌した。次に、多価カチオン源として塩化アルミニウム水和物をさらに 0.7 質量部添加して 1 時間以上攪拌した。

[0205] 試験例 24～26 においては、次に、多価カチオン源として塩化アルミニウム水和物を 4 質量部添加して攪拌した。

[0206] 試験例 27～28 においては、次に、多価カチオン源として塩化アルミニウム水和物を 6 質量部添加して攪拌した。次に、色素イオンの吸着を促進するために水酸化ナトリウムを 0.8 質量部添加して 1 時間以上攪拌した。次に、多価カチオン源として塩化アルミニウム水和物をさらに 0.7 質量部添加して 1 時間以上攪拌した。

[0207] 試験例 20～28 において、次に、遠心分離で生成物を脱水ろ過した後、

100℃で乾燥させた。乾燥物を120メッシュの篩でふるい分けして着色ケイ酸塩被覆体を得た。

[0208] 試験例20～28のいずれにおいても、各色素の色にケイ酸塩被覆体を着色することができ、発色もムラがなく鮮明であった。試験例20～28において作製された着色ケイ酸塩被覆体は、試験例14～19において作製された着色ケイ酸塩被覆体と同様にして、着色ケイ酸塩被覆体からの接触面への色移りは観察されなかった。また、着色ケイ酸塩被覆体の凝集が抑制されており、着色ケイ酸塩被覆体の粉末の手触りは良好な感触であった。

[0209] [表6]

	イオン性有機色素		カチオン源 (質量部)	アルカリ源 (質量部)
	名称	質量部		
試験例20	アマランス	0.1	4+0.7	0.8
試験例21	ニューコクシン	0.2	4+0.7	0.8
試験例22	フロキシシンB	0.2	4+0.7	0.8
試験例23	ローズベンガル	0.2	4+0.7	0.8
試験例24	アシッドレッド	0.1	4	-
試験例25	ファストグリーンFCF	0.2	4	-
試験例26	インジゴカルミン	0.1	4	-
試験例27	サンセットイエローFCF	0.3	6+0.7	0.8
試験例28	リゾールルビンB	0.4	6+0.7	0.8

[0210] [試験例29]

複数のイオン性有機色素で着色した着色ケイ酸塩被覆体を作製した。試験例1で作製したケイ酸塩被覆体を原料として用いた。カチオン性有機色素としては、メチレンブルー及びローダミンBを用いた。

[0211] まず、ケイ酸塩被覆マイカと水を固形分濃度が4質量%になるように混合した。次に、ケイ酸塩被覆マイカ100質量部に対し0.3質量部のメチレンブルーを投入し、攪拌した。次に、ケイ酸塩被覆マイカ100質量部に対し0.2質量部のローダミンBを投入し、攪拌した。1時間以上攪拌を継続した後、脱水ろ過により水を分離した。得られた粉体を100℃で乾燥し、120メッシュ篩で篩い、結果物を得た。

[0212] 結果物は、メチレンブルーとローダミンBの色を併せ持つ紫色を有する粉体となった。これより、複数の有機色素を組み合わせることにより、所望の

色にケイ酸塩被覆体を着色できることが分かった。

[0213] [試験例 30]

中間層を被覆した基体に第1のケイ酸塩を被覆したケイ酸塩被覆体を作製した。基体として合成マイカを用いた。中間層として酸化チタンを合成マイカに被覆した。第1のケイ酸塩としてはヘクトライトを合成した。

[0214] 合成マイカ50gを1Lのイオン交換水に攪拌しながら分散させ、75℃に加熱した。この分散液のpHを20%塩酸を用いて1.6に調節した。次に、塩酸を3g加えた10%塩化スズ(SnCl₄)水溶液15gを30分間かけて分散液に添加し、この間20%水酸化ナトリウム水溶液を用いてpHを1.6に維持した。添加終了後、さらに20分間攪拌した。この後、40%四塩化チタン水溶液110gを30g/hの速度で分散液に添加しながら、20%水酸化ナトリウム水溶液を用いてpHを1.6に維持した。その後、20%水酸化ナトリウム水溶液を用いて分散液をpH7まで中和した。次に、この分散液を脱水洗浄し、乾燥して、800℃で焼成した。この結果、酸化チタンで被覆された金色の干渉色(真珠光沢)を有する中間層被覆基体を得られた。

[0215] 得られた中間層被覆基体1g、ヘクトライトの出発物質(LiF:0.015g、MgCl₂:0.47g、シリカ:0.1g)及び尿素0.64gを水中に、超音波を用いて分散させた。混合液をオートクレーブ内に入れ、水熱処理(100℃48h)を実施した。急冷した後、遠心分離機(3000rpm)を用いて、洗浄及び固液分離を3回行った。分離した固形分を乾燥機にて乾燥(50℃24h)し、中間層を有するケイ酸塩被覆体を得た。

[0216] 金属酸化膜の中間層が基体に被覆されている場合であっても、第1のケイ酸塩を被覆することができた。第1のケイ酸塩が被覆された状態においても、粉末の外観に、中間層に基づく干渉色は表れていた。

[0217] [試験例 31]

試験例30において作製した、中間層を有するケイ酸塩被覆体を、イオン性有機色素で着色した着色ケイ酸塩被覆体を作製した。着色方法は、試験例

16～28と同様にした。具体的には、試験例30において作製したケイ酸塩被覆体と水を固形分濃度が10%になるように混合する。次に、ケイ酸塩被覆体100質量部に対し、0.27質量部のローダミンBを混合物に添加した。1時間以上攪拌し、脱水ろ過により粉体を単離した。得られた粉体を100℃で乾燥し、120メッシュ篩で篩い、着色ケイ酸塩被覆体を得た。

[0218] 得られた着色ケイ酸塩被覆体は、上記試験例において作製した着色ケイ酸塩被覆体と同様に着色されていた。これより、中間層を有する場合であっても着色可能であることが分かった。また、パール色（干渉色）を有する粉末に着色することによって、パール色（干渉色）と、イオン性有機色素の発色とが組み合わされた粉末を得ることができた。

[0219] 本発明のケイ酸塩被覆体及びその製造方法は、上記実施形態及び実施例に基づいて説明されているが、上記実施形態及び実施例に限定されことなく、本発明の範囲内において、かつ本発明の基本的技術思想に基づいて、各開示要素（請求の範囲、明細書及び図面に記載の要素を含む）に対し種々の変形、変更及び改良を含むことができる。また、本発明の請求の範囲の範囲内において、各開示要素の多様な組み合わせ・置換ないし選択が可能である。

[0220] 本発明のさらなる課題、目的及び形態（変更形態含む）は、請求の範囲を含む本発明の全開示事項からも明らかにされる。

[0221] 本書に記載した数値範囲については、別段の記載のない場合であっても、当該範囲内に含まれる任意の数値ないし範囲が本書に具体的に記載されているものと解釈されるべきである。

産業上の利用可能性

[0222] 本開示のケイ酸塩被覆体は、例えば、化粧料、塗料、金属イオン吸着剤、フィルム、ナノコンポジット材等に適用することができる。

[0223] ヘクトライト被覆マイカ粉体を例えばナノコンポジット材としてフィルム（例えばガスバリアフィルム）に用いる場合、ヘクトライトでマイカ粒子の表面積を高めることによって、フィルムとの密着性、バリア性、引張強度等の機械的特性等を高めることができる。

符号の説明

[0224]	1	基体	
	2	付着剤	
	3	第1のケイ酸塩	
	4	機能性物質	
	5	イオン性有機色素	
	6	中間層	
	10, 20, 40, 50, 60, 70		ケイ酸塩被覆体
	31	シート構造	
	32	機能性物質、イオン性有機色素	
	33	多価カチオン	

請求の範囲

- [請求項1] マイカ粒子と、
 前記マイカ粒子の少なくとも一部を被覆する第1のケイ酸塩と、
 前記第1のケイ酸塩に担持された機能性物質と、
 を備える、ケイ酸塩被覆体。
- [請求項2] 前記マイカ粒子と少なくとも一部の前記第1のケイ酸塩とはシリカ
 及び／又はシリカ変性物を介して接合されている、請求項1に記載の
 ケイ酸塩被覆体。
- [請求項3] 前記マイカ粒子のメジアン粒子径は、 $0.1\mu\text{m} \sim 10\text{mm}$ である
 、請求項1又は2に記載のケイ酸塩被覆体。
- [請求項4] 前記マイカ粒子を被覆する中間層をさらに含み、
 少なくとも一部の前記第1のケイ酸塩は前記中間層を介して前記マ
 イカ粒子を被覆する、請求項1～3のいずれか一項に記載のケイ酸塩
 被覆体。
- [請求項5] 前記中間層は干渉色を発現する被覆である、請求項4に記載のケイ
 酸塩被覆体。
- [請求項6] 前記中間層は2以上の屈折率を有する金属酸化物を含む、請求項4
 又は5に記載のケイ酸塩被覆体。
- [請求項7] 前記中間層は、酸化チタン、酸化鉄、又はこれらの組合せを含む、
 請求項4～6のいずれか一項に記載のケイ酸塩被覆体。
- [請求項8] 基体と、
 前記基体上に存在するシリカ及び／又はシリカ変性物と、
 前記シリカ及び／又はシリカ変性物を介して前記基体の少なくとも
 一部を被覆する第1のケイ酸塩と、
 前記第1のケイ酸塩に担持された機能性物質と、
 を備える、ケイ酸塩被覆体。
- [請求項9] 前記基体は第2のケイ酸塩粒子を含む、請求項8に記載のケイ酸塩
 被覆体。

- [請求項10] 前記基体は、薄片状及び／又は板状マイカ粉体である、請求項8又は9に記載のケイ酸塩被覆体。
- [請求項11] 前記第1のケイ酸塩と、前記シリカ及び／又はシリカ変性物とは一体的である、請求項8～10のいずれか一項に記載のケイ酸塩被覆体。
- [請求項12] 前記基体を被覆する中間層をさらに含み、
前記シリカ及び／又はシリカ変性物は前記中間層の少なくとも一部の表面に付着し、
少なくとも一部の前記第1のケイ酸塩は前記中間層並びに／又は前記シリカ及び／もしくはシリカ変性物を介して前記基体を被覆する、請求項8～11のいずれか一項に記載のケイ酸塩被覆体。
- [請求項13] 前記中間層は干渉色を発現する被覆である、請求項12に記載のケイ酸塩被覆体。
- [請求項14] 前記中間層は2以上の屈折率を有する金属酸化物を含む、請求項12又は13に記載のケイ酸塩被覆体。
- [請求項15] 前記中間層は、酸化チタン、酸化鉄、又はこれらの組合せを含む、請求項12～14のいずれか一項に記載のケイ酸塩被覆体。
- [請求項16] 前記第1のケイ酸塩は、スメクタイト系ケイ酸塩を含む、請求項1～15のいずれか一項に記載のケイ酸塩被覆体。
- [請求項17] 前記スメクタイト系ケイ酸塩はヘクトライトを含む、請求項16に記載のケイ酸塩被覆体。
- [請求項18] 前記機能性物質はイオン性である、請求項1～17のいずれか一項に記載のケイ酸塩被覆体。
- [請求項19] 前記機能性物質は抗菌性物質、殺菌性物質、滅菌性物質、及び消毒性物質の少なくとも1つを含む、請求項1～18のいずれか一項に記載のケイ酸塩被覆体。
- [請求項20] 前記機能性物質は、金属イオン、イオン性金属錯体及びカチオン性界面活性剤のうちの少なくとも1つから選択される、請求項1～19

のいずれか一項に記載のケイ酸塩被覆体。

[請求項21] 前記機能性物質は、銀イオン、亜鉛イオン、銅イオン、ジアンミン銀イオン、ベンザルコニウムイオン、ベンゼトニウムイオン、テトラエチルアンモニウムイオン、及びジデシルジメチルアンモニウムイオンのうちの少なくとも1つから選択される、請求項1～20のいずれか一項に記載のケイ酸塩被覆体。

[請求項22] 多価カチオンをさらに備え、
前記機能性物質がアニオン性機能性物質及び両性機能性物質のうち少なくとも1つを含む、請求項1～21のいずれか一項のいずれか一項に記載のケイ酸塩被覆体。

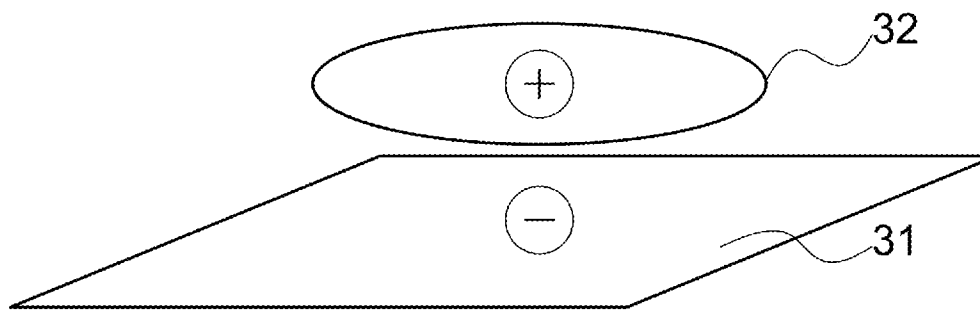
[請求項23] 前記第1のケイ酸塩に付着されたイオン性有機色素をさらに備える、請求項1～22のいずれか一項に記載のケイ酸塩被覆体。

[請求項24] 多価カチオンをさらに備え、
前記イオン性有機色素がアニオン性有機色素及び両性有機色素のうち少なくとも1つを含む、請求項23に記載のケイ酸塩被覆体。

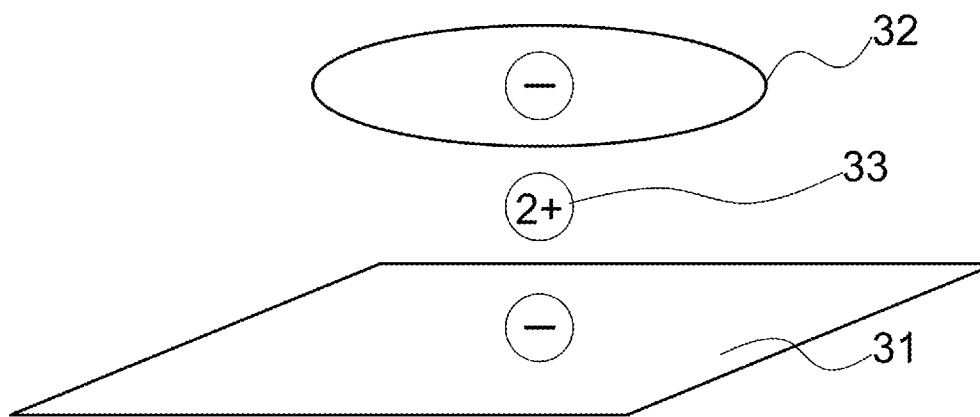
[請求項25] 前記多価カチオンは、マグネシウムイオン、カルシウムイオン、アルミニウムイオン、及びバリウムイオンのうちの少なくとも1つである、請求項24に記載のケイ酸塩被覆体。

[請求項26] 前記イオン性有機色素は、アマランス、ニューコクシン、フロキシンB、ローズベンガル、アシッドレッド、タートラジン、サンセットイエロー、ファストグリーン、ブリリアントブルー、インジゴカルミン、リソールルビンB、リソールルビンBCA、メチレンブルー、ローダミンB、及びエリスロシンBのうちの少なくとも1つを含む、請求項23～25のいずれか一項に記載のケイ酸塩被覆体。

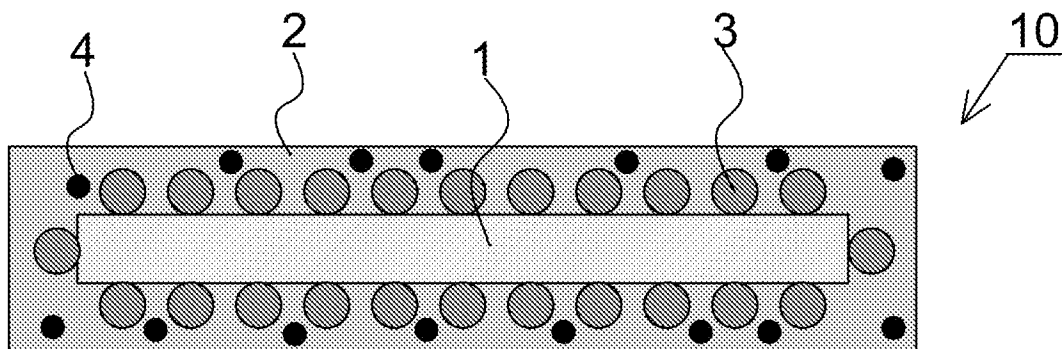
[図1]



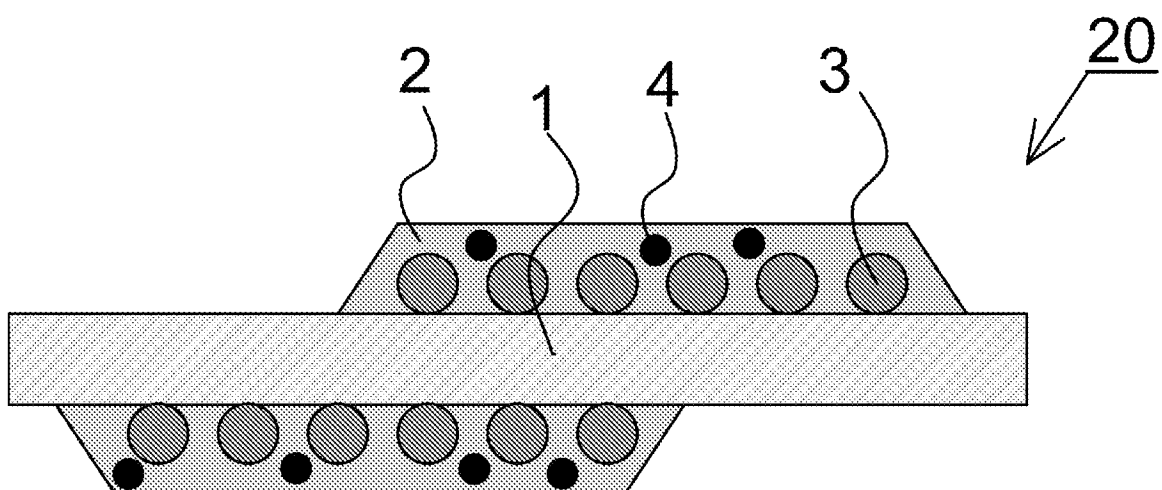
[図2]



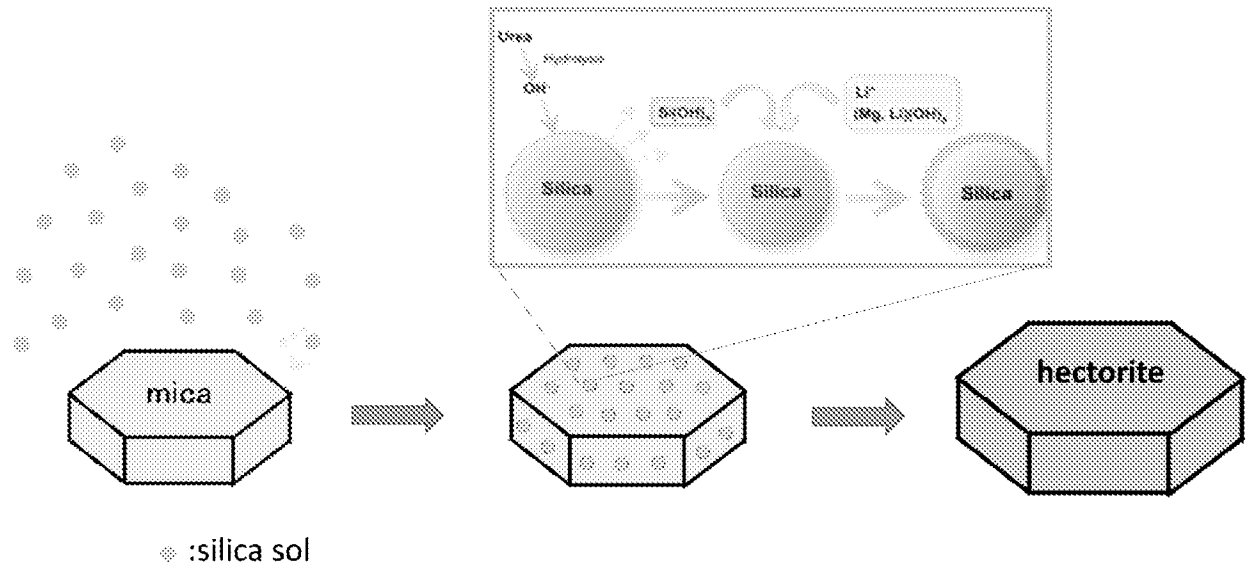
[図3]



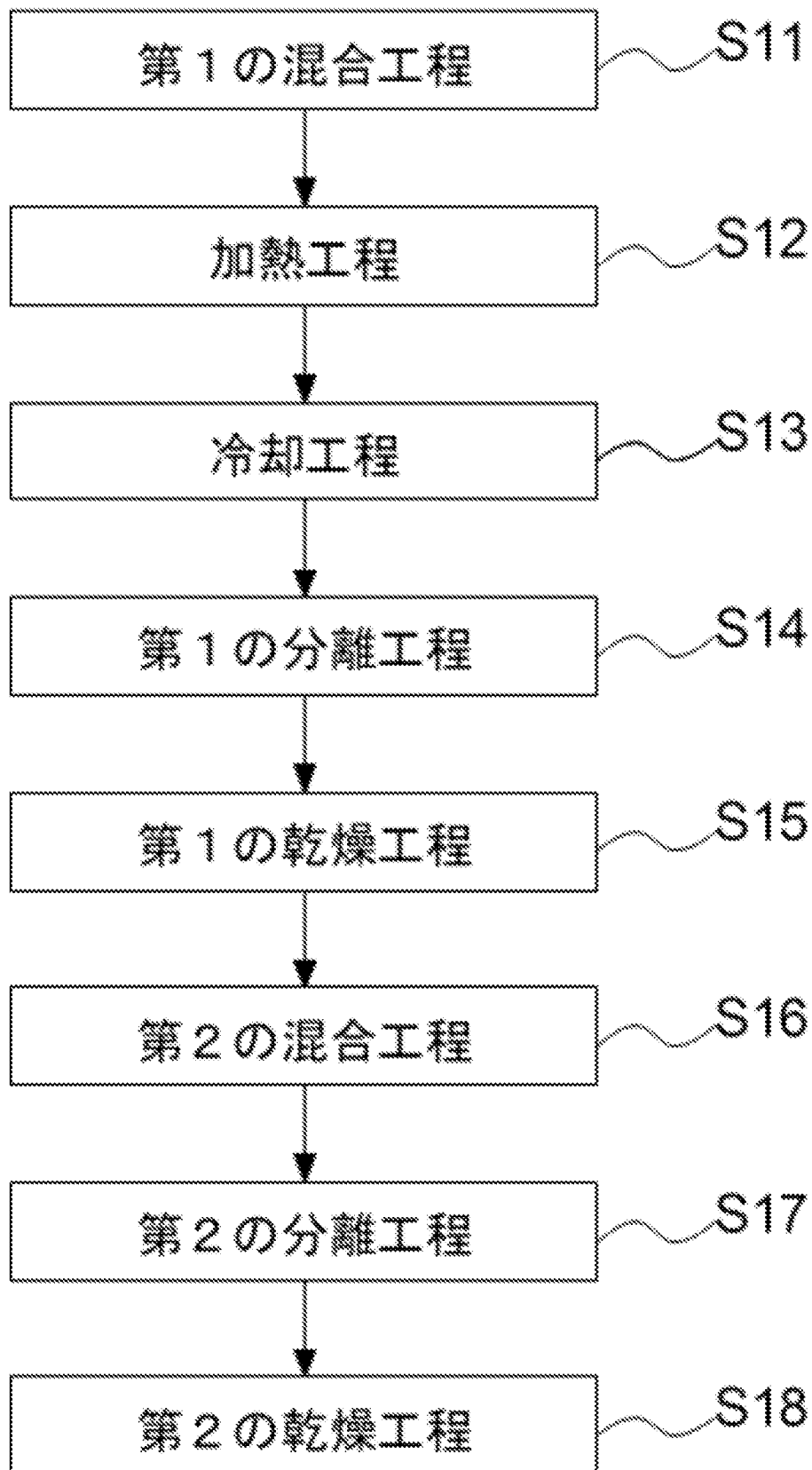
[図4]



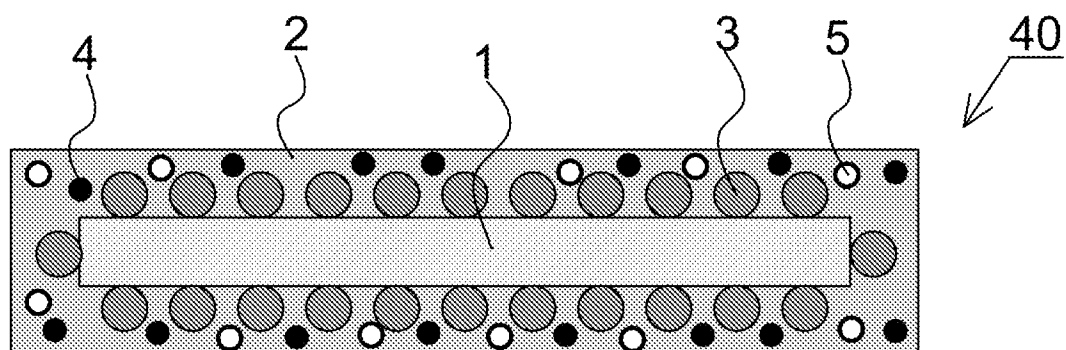
[図5]



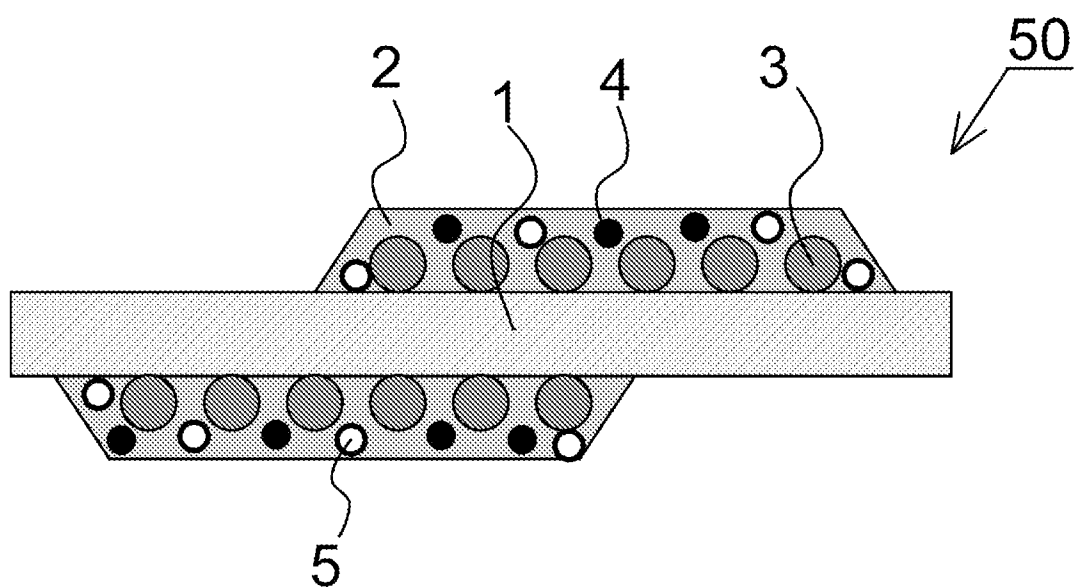
[図6]



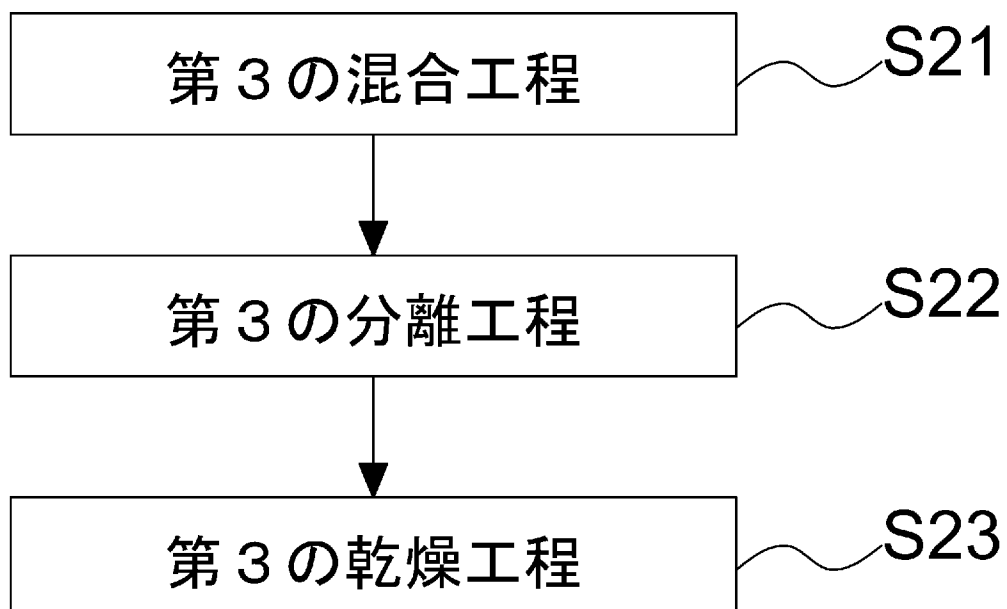
[図7]



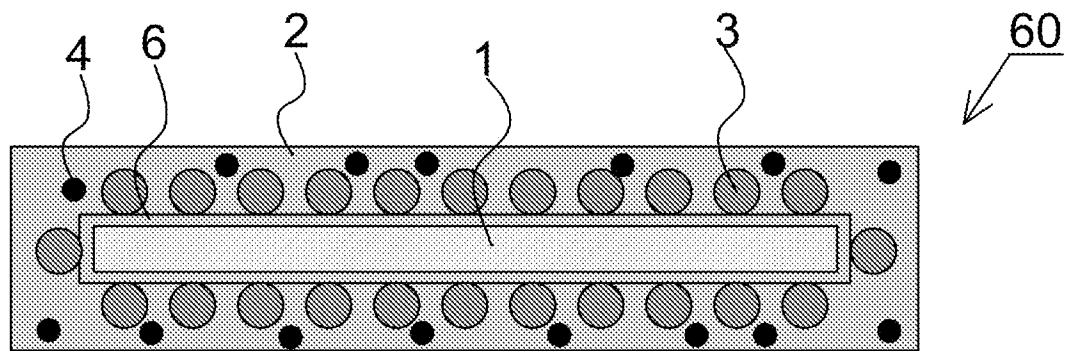
[図8]



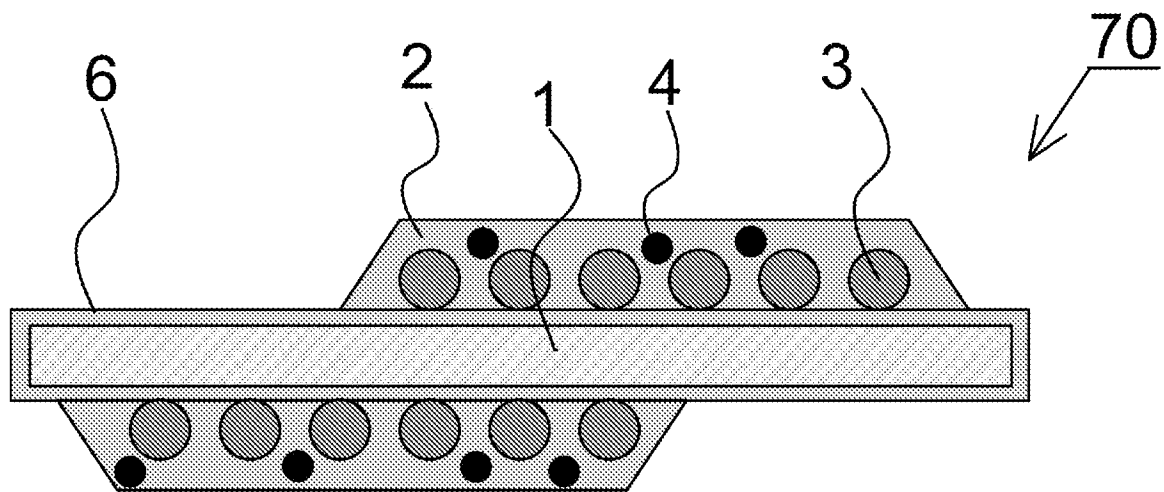
[図9]



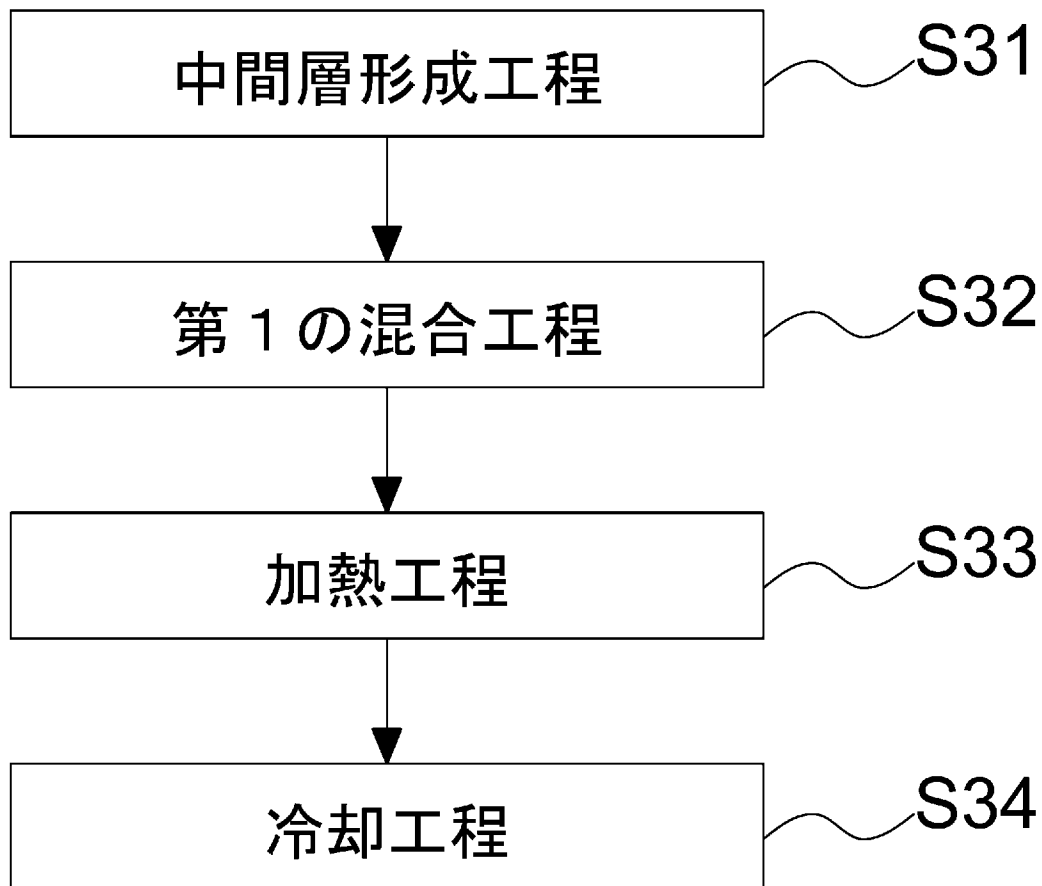
[図10]



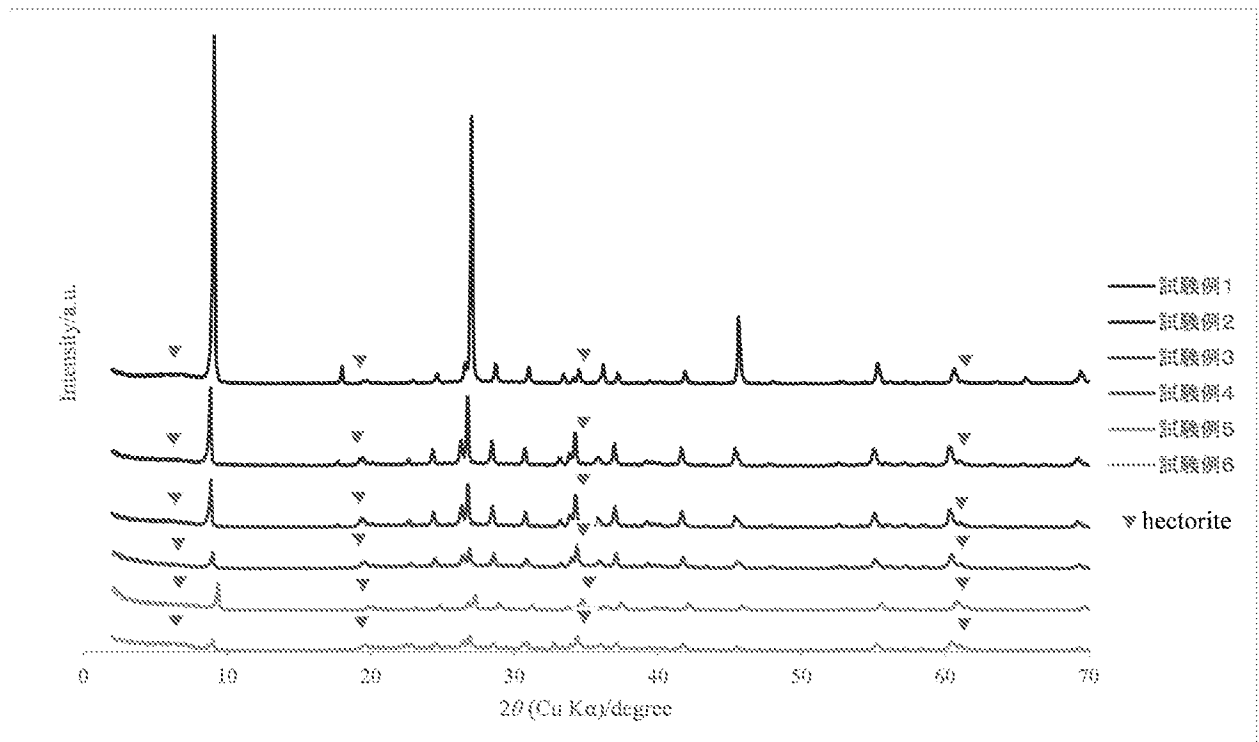
[図11]



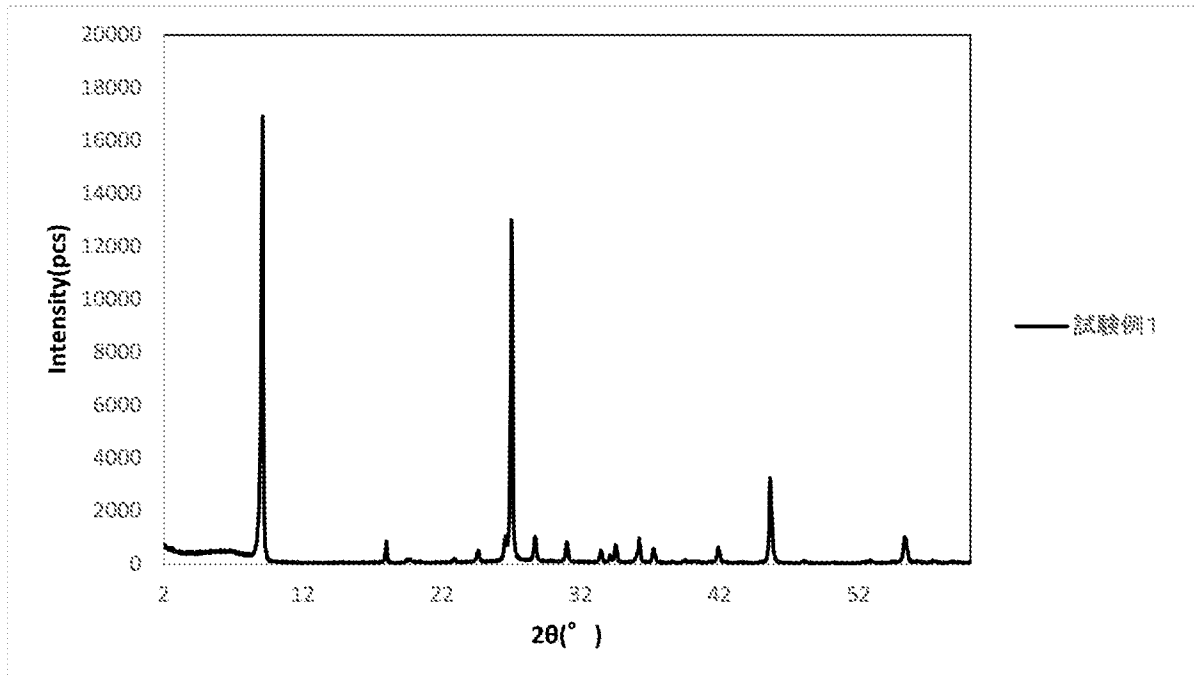
[図12]



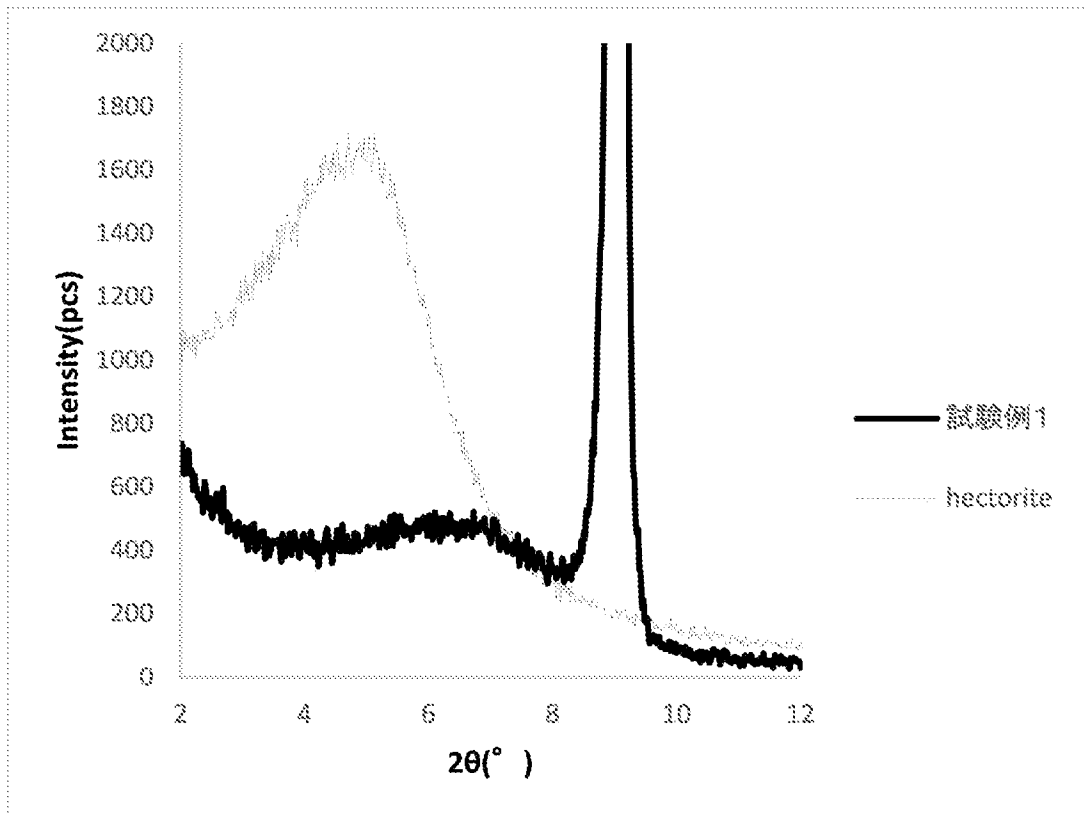
[図13]



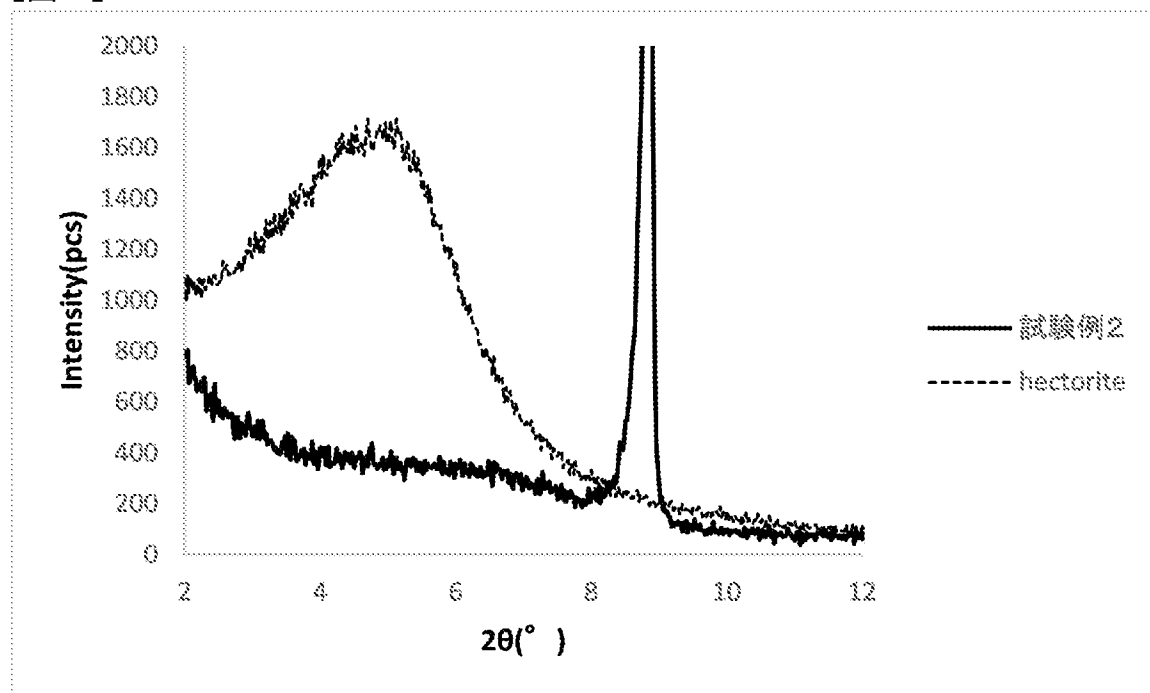
[図14]



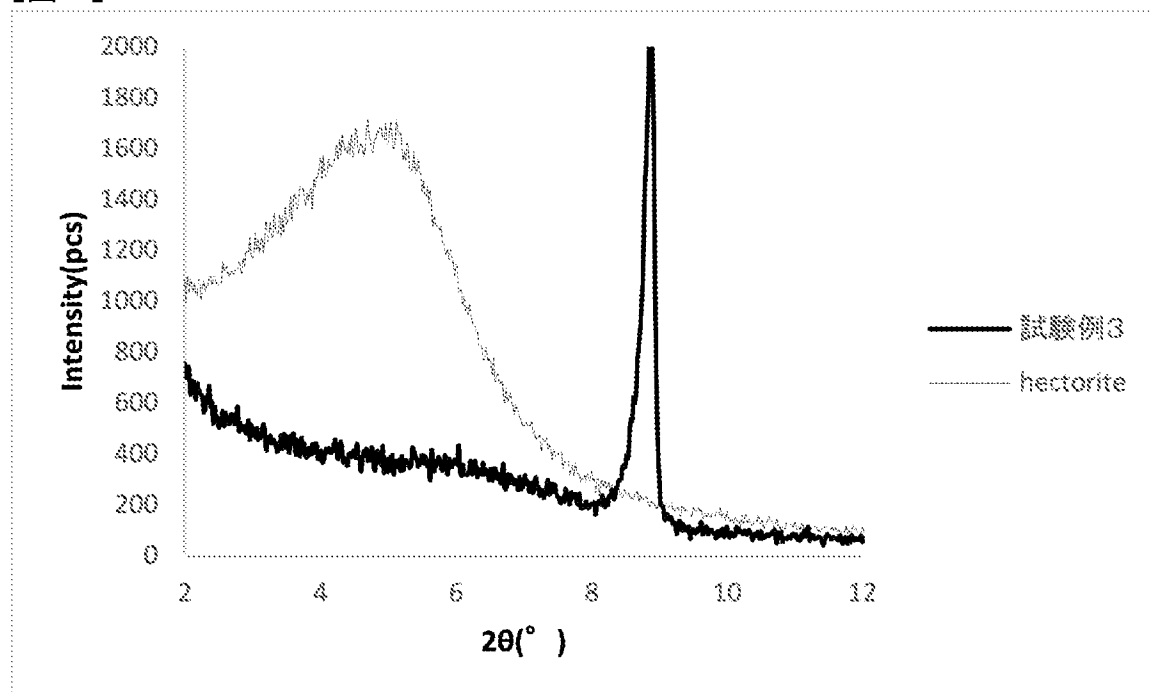
[図15]



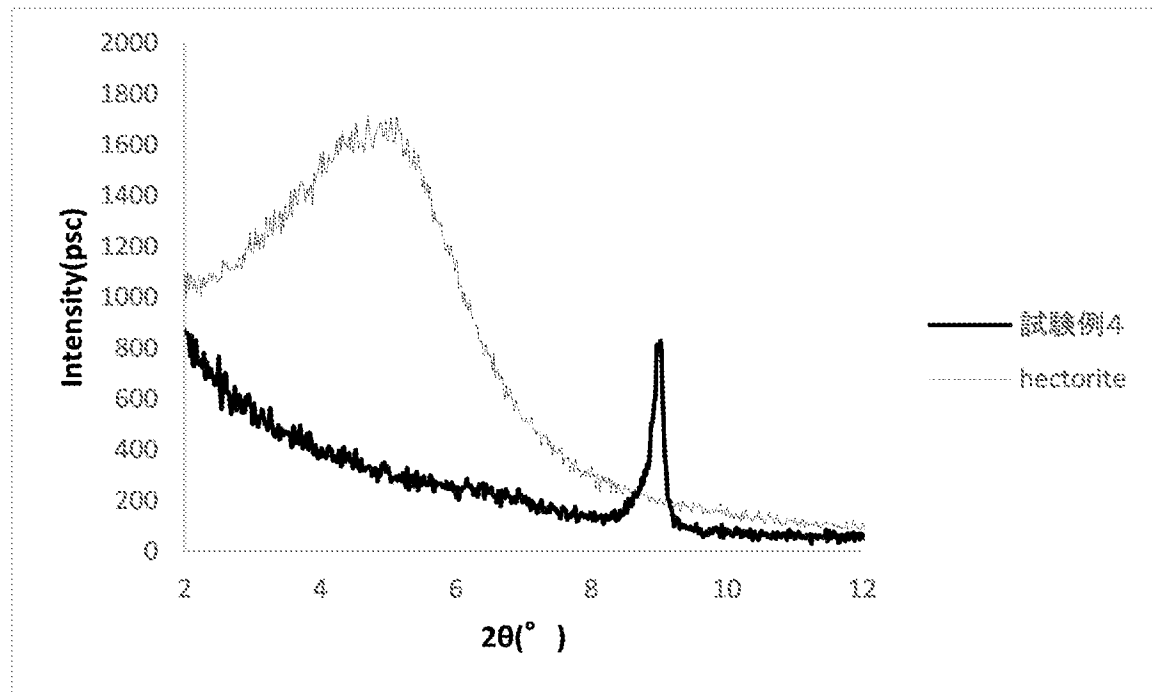
[図16]



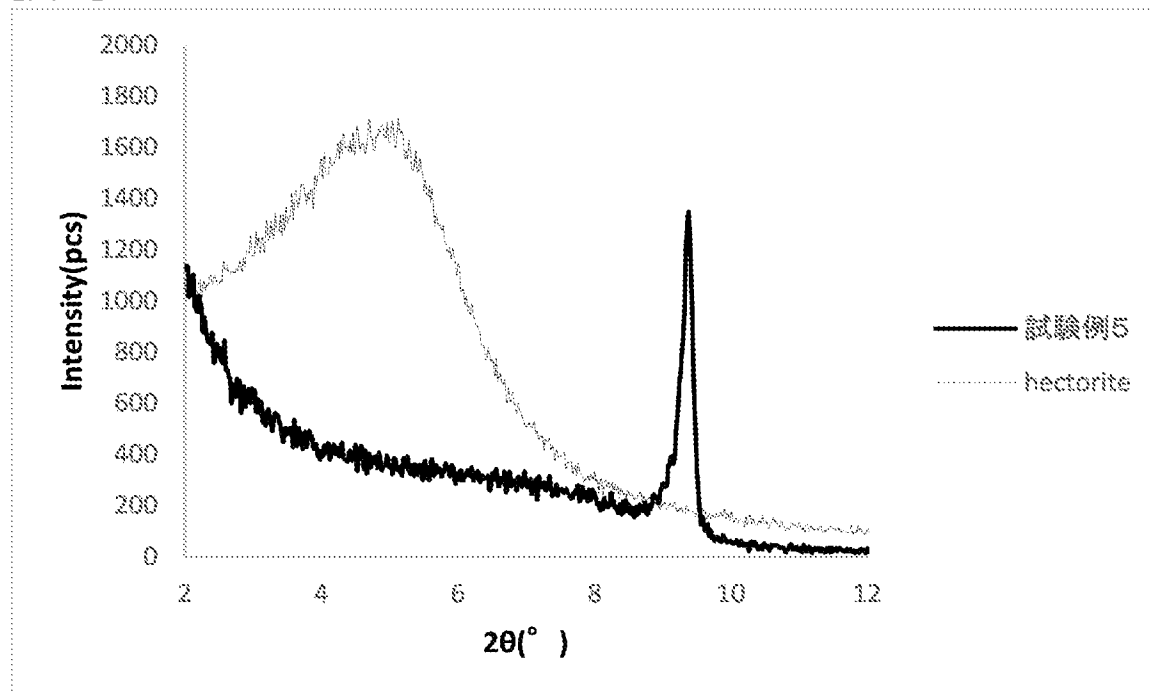
[図17]



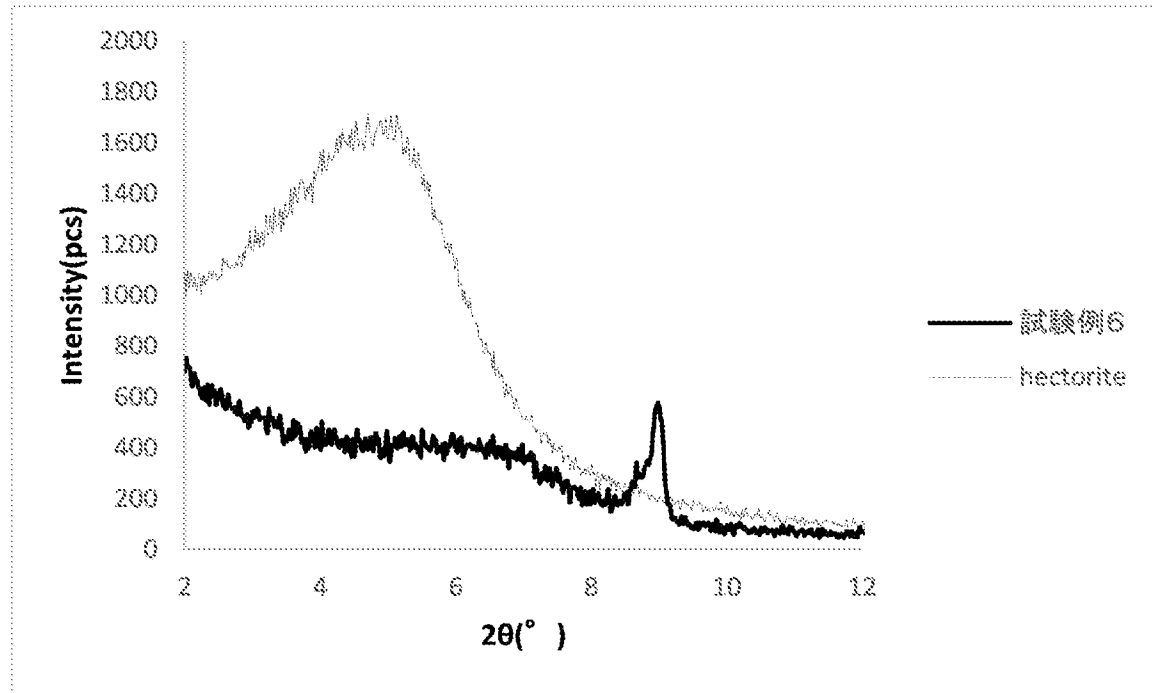
[図18]



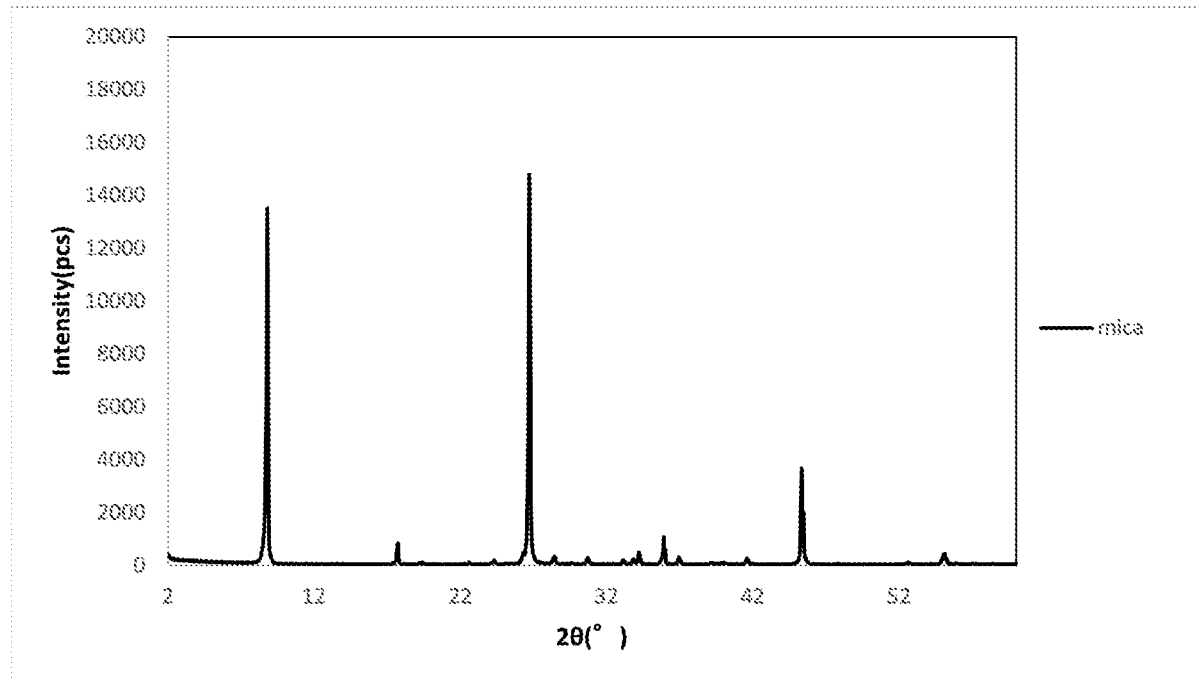
[図19]



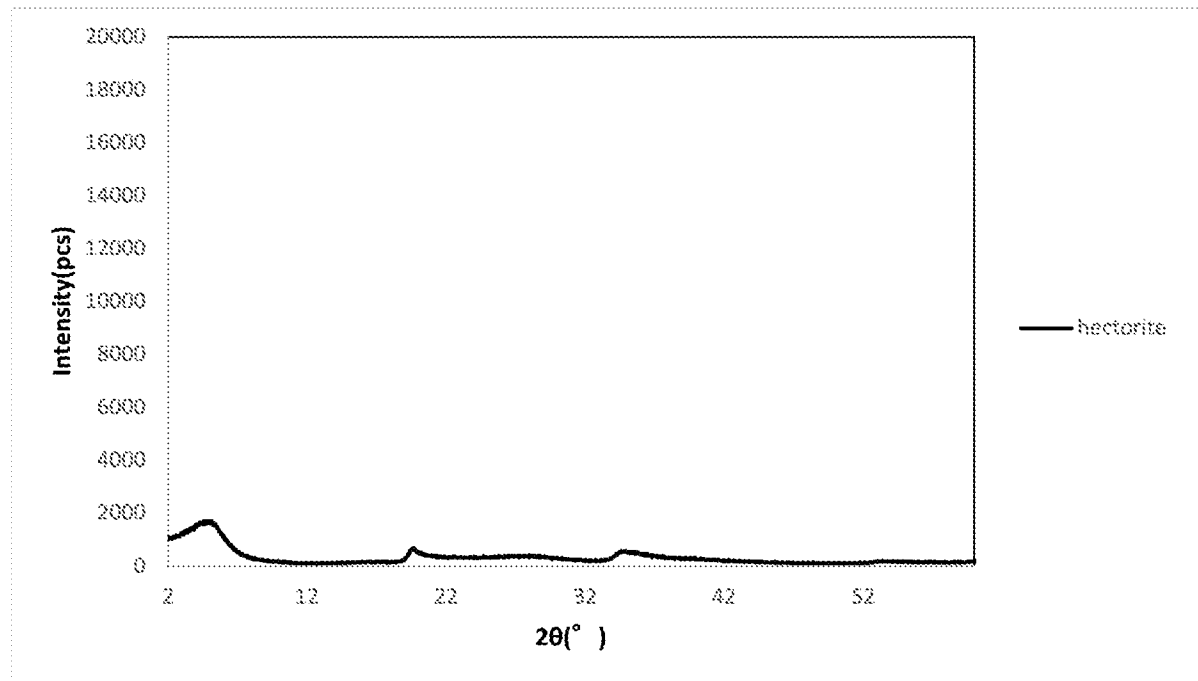
[図20]



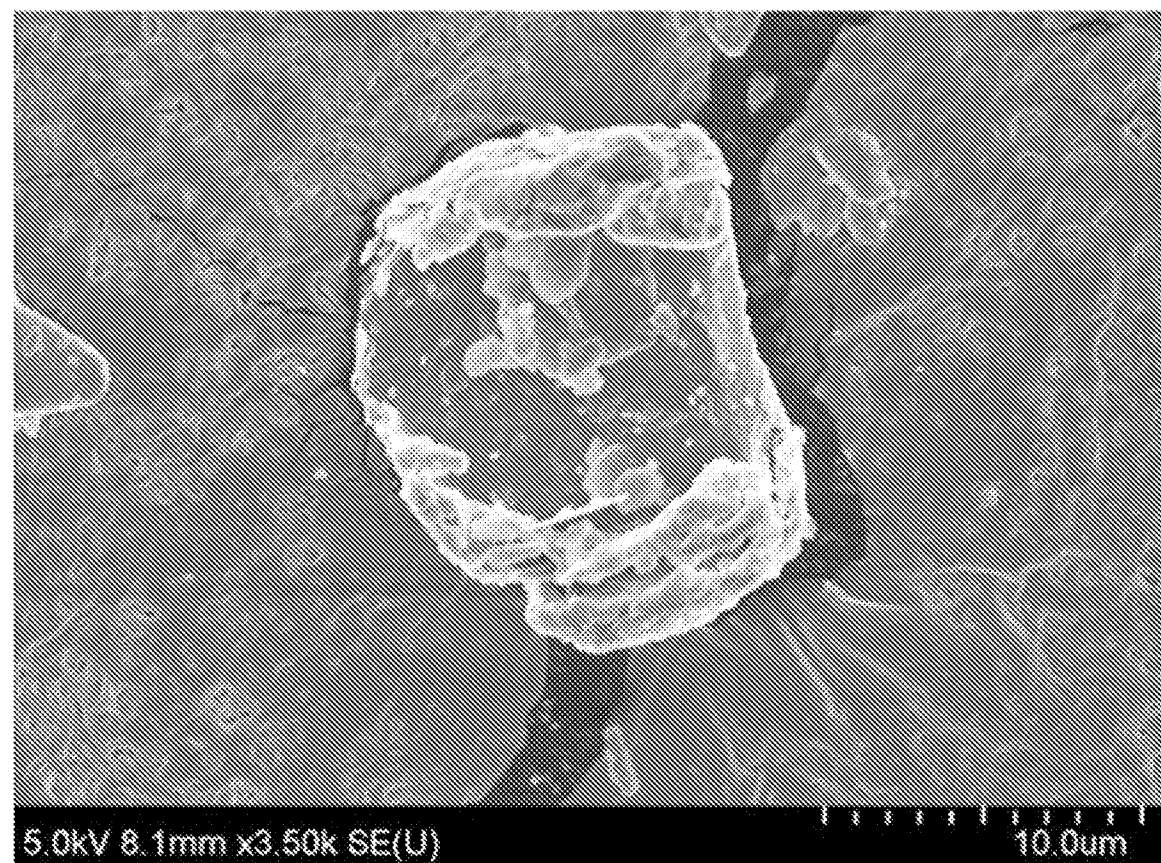
[図21]



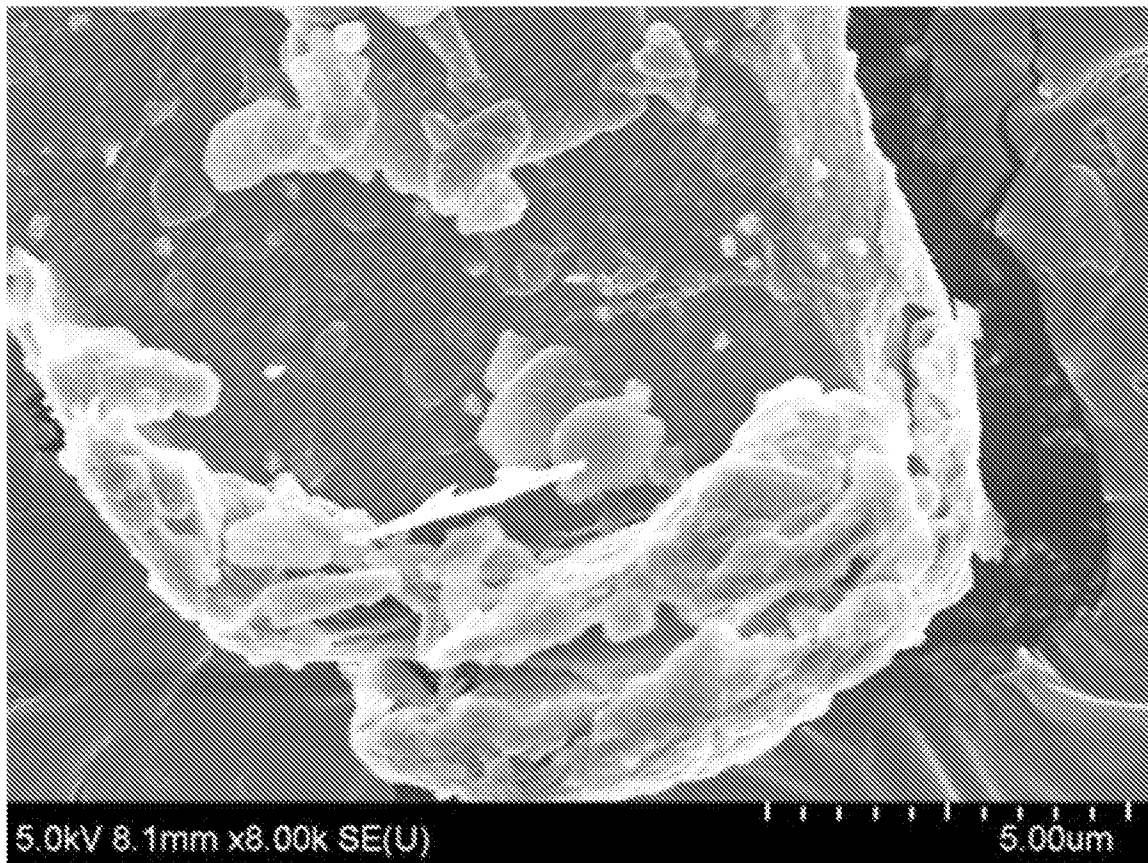
[図22]



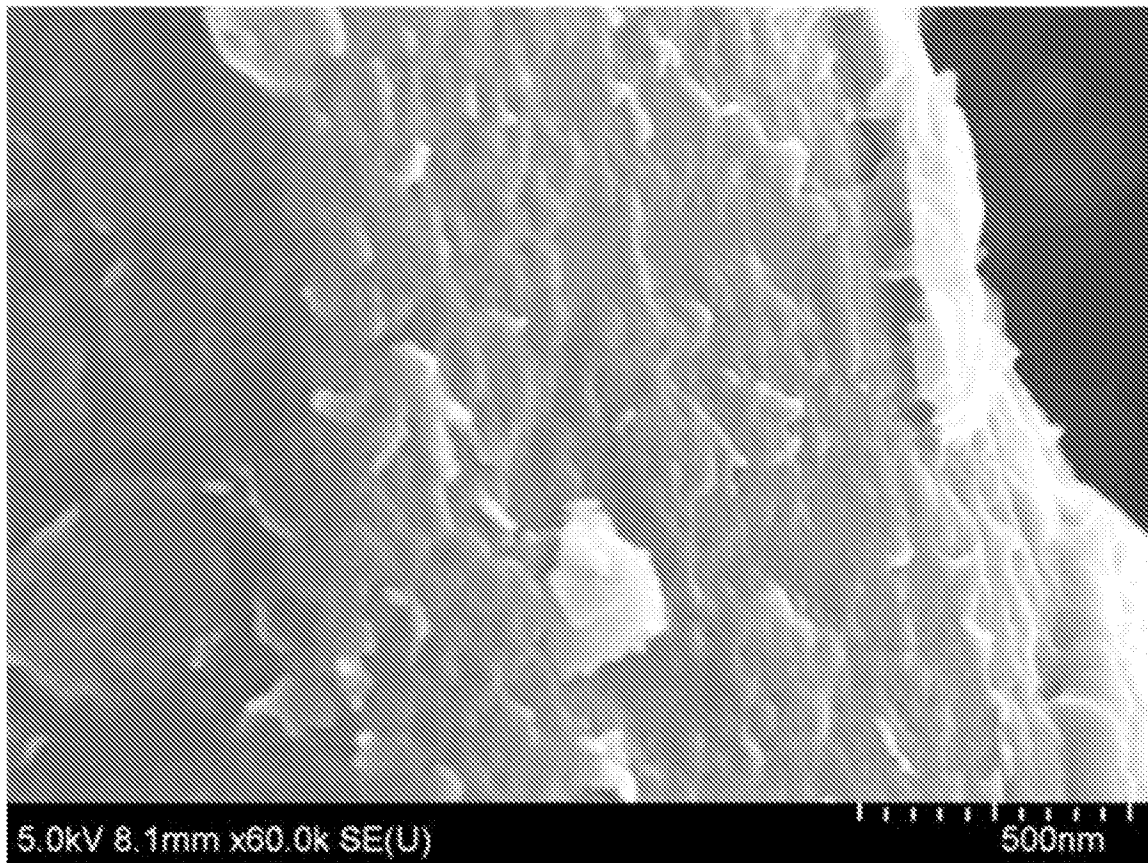
[図23]



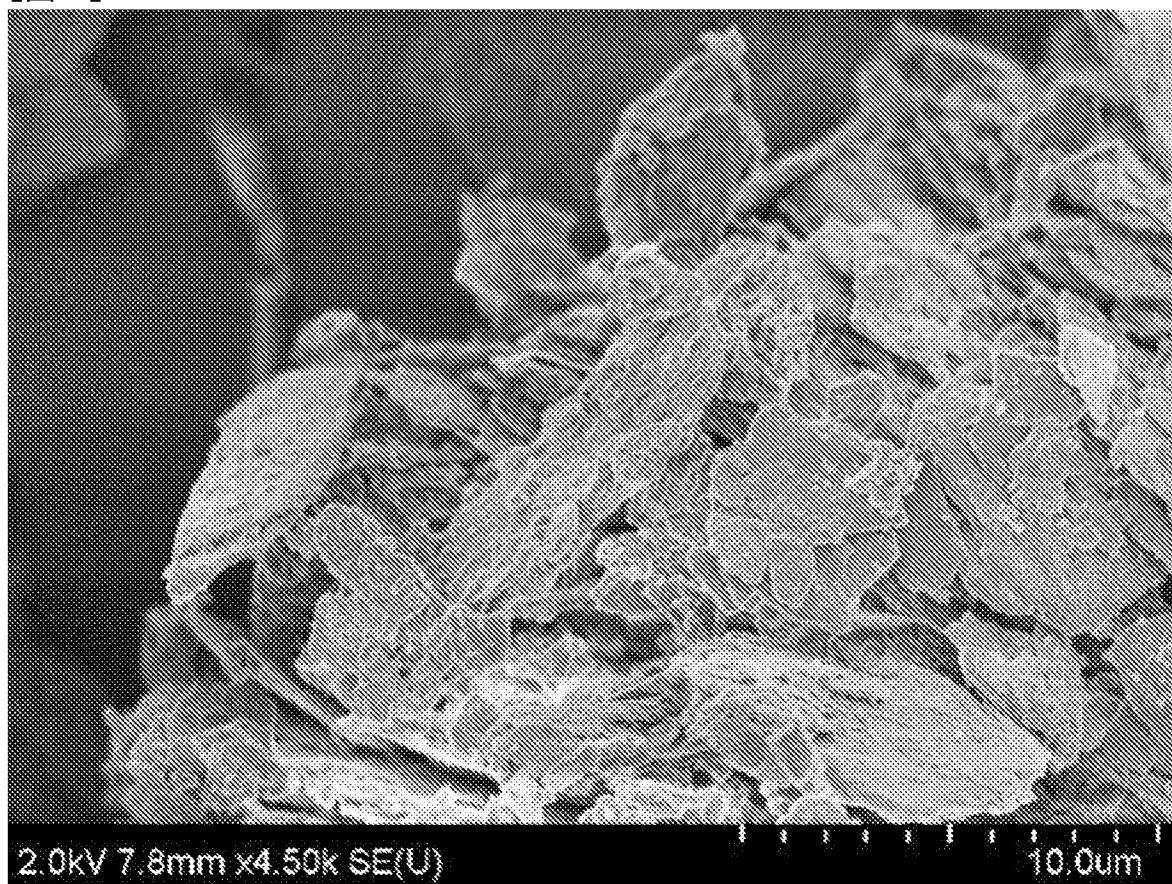
[図24]



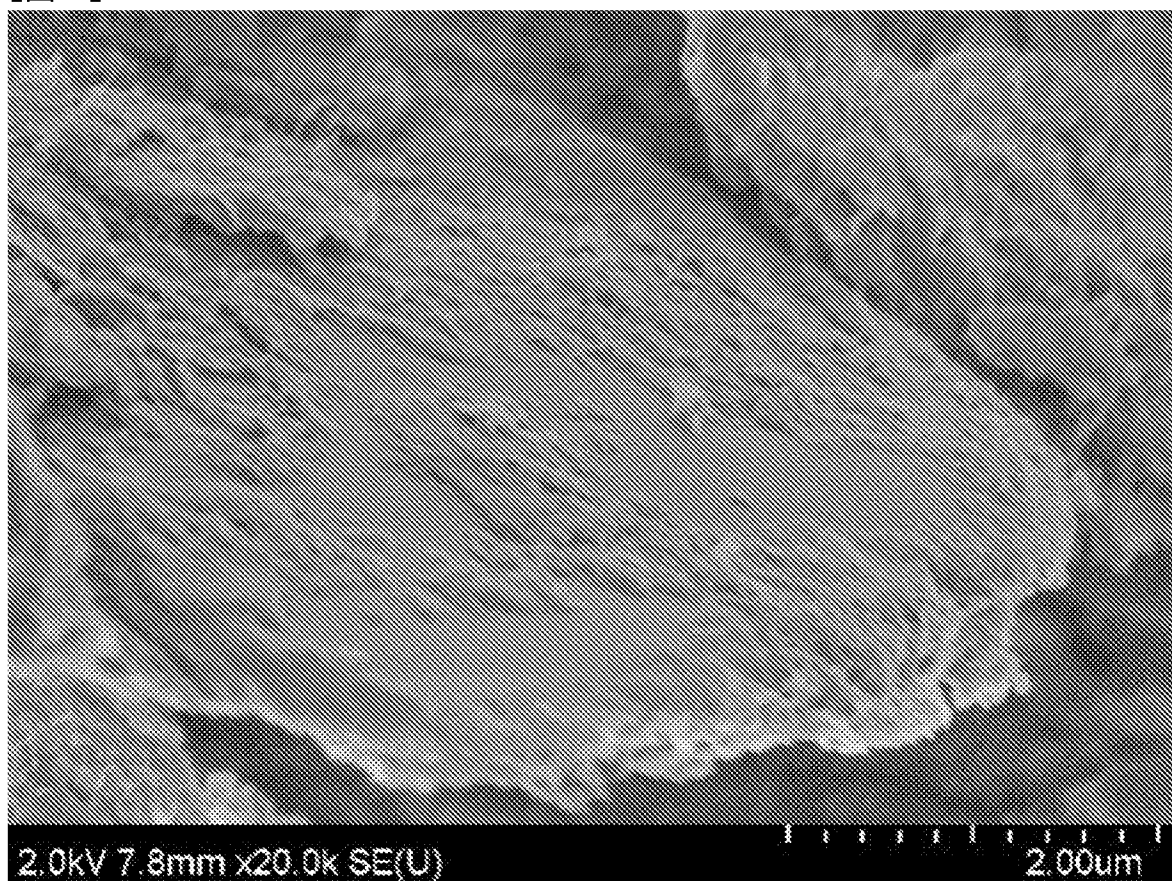
[図25]



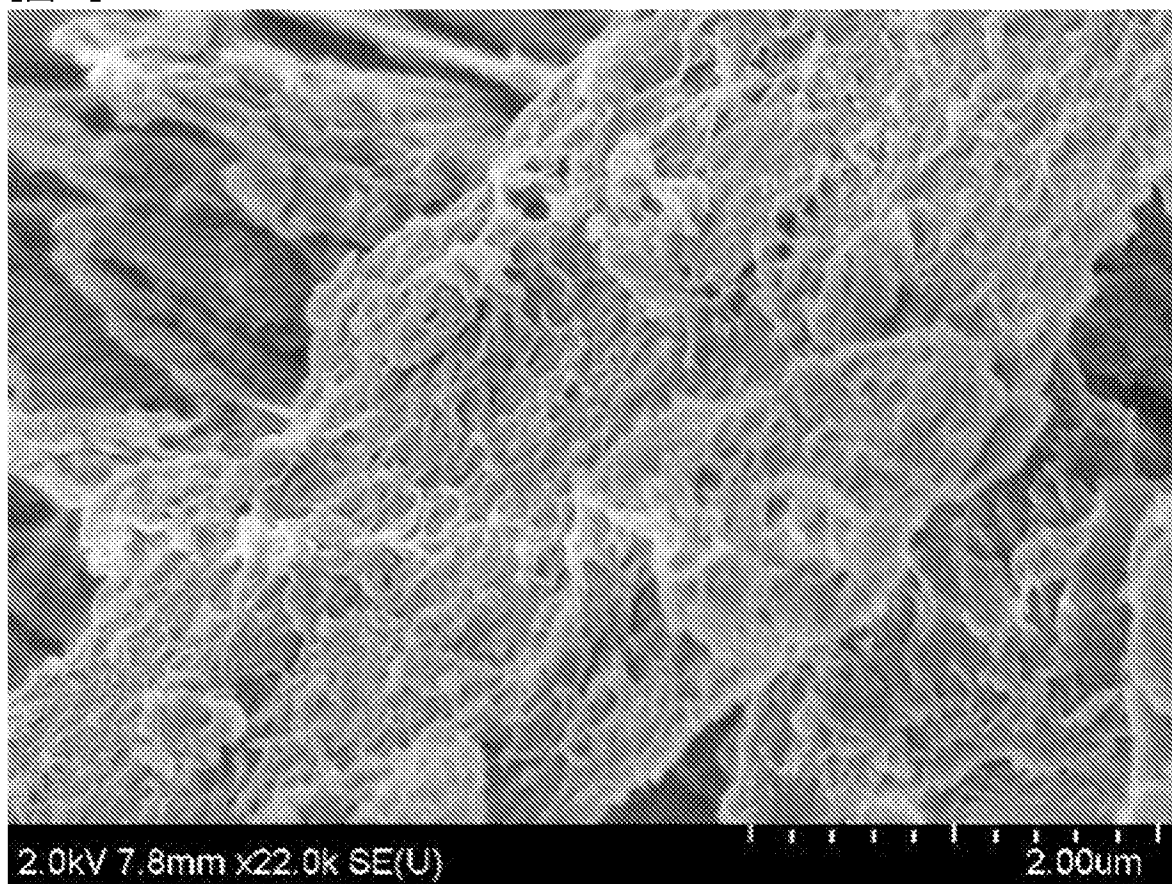
[図26]



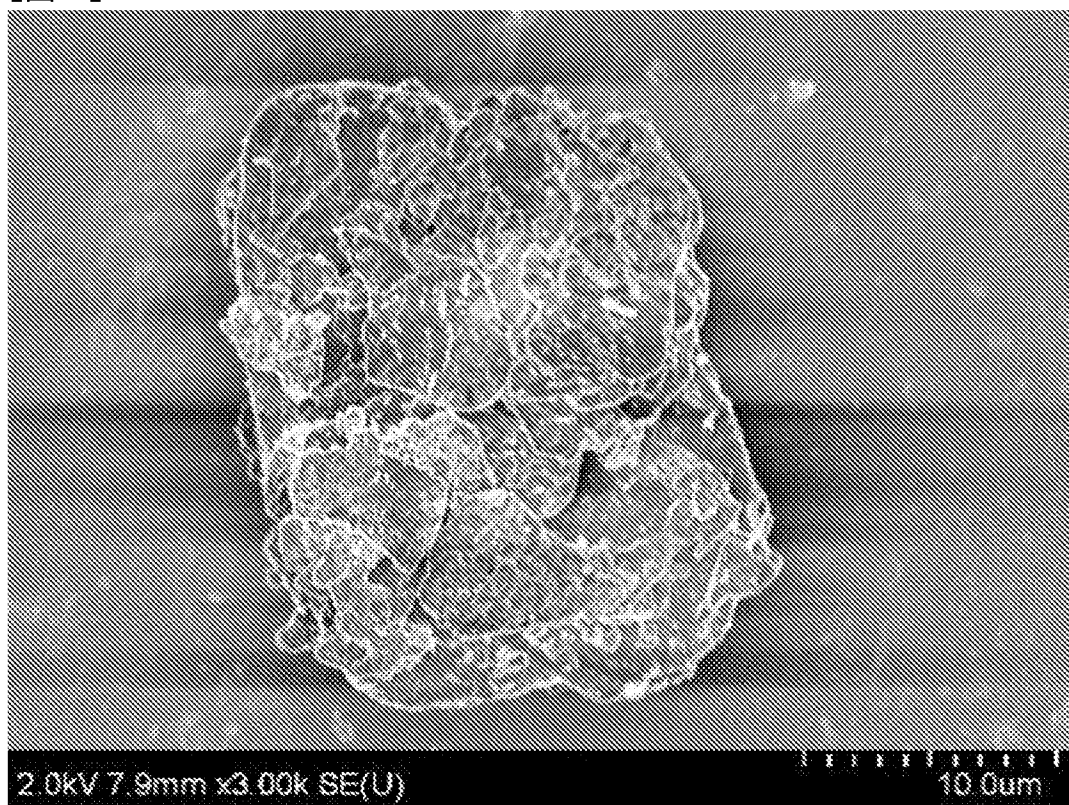
[図27]



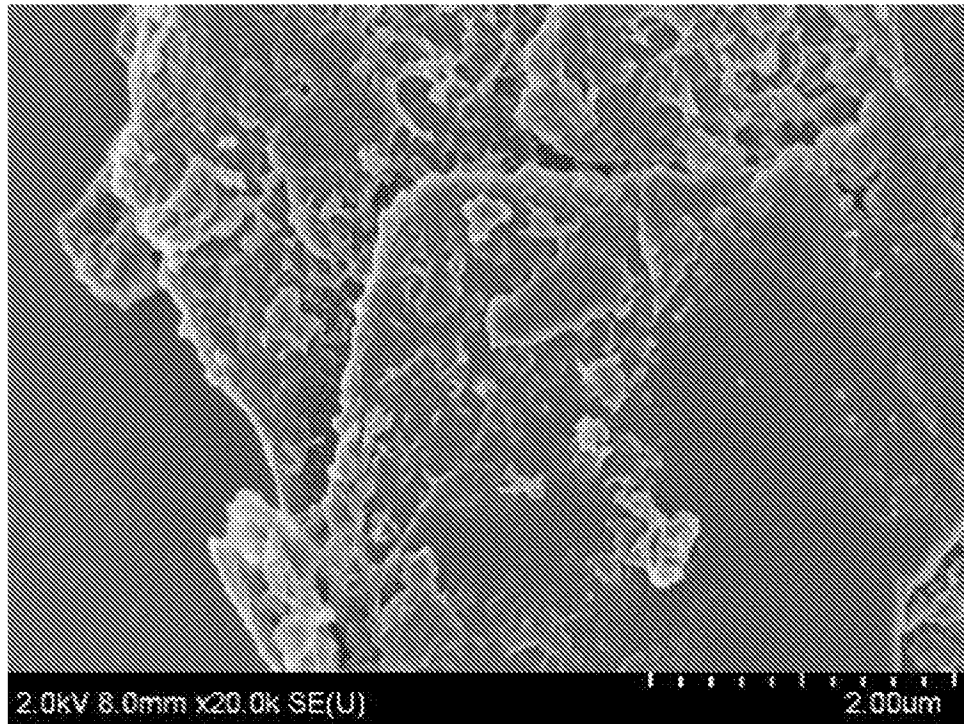
[図28]



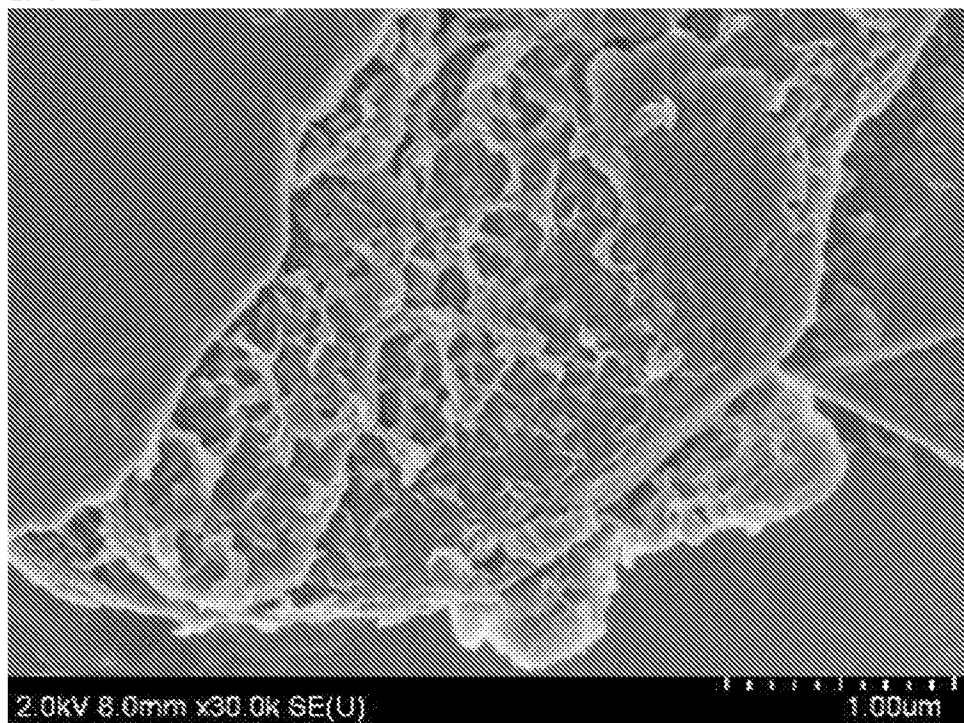
[図29]



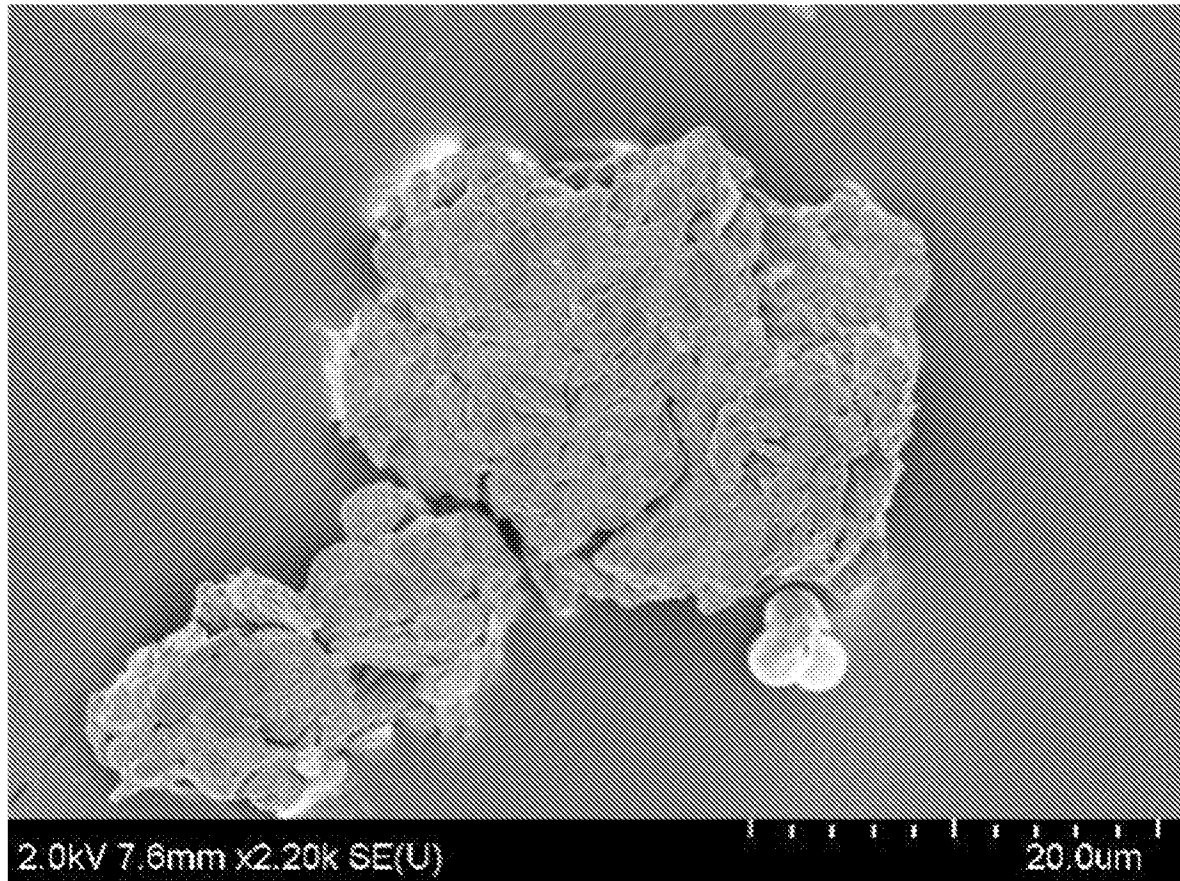
[図30]



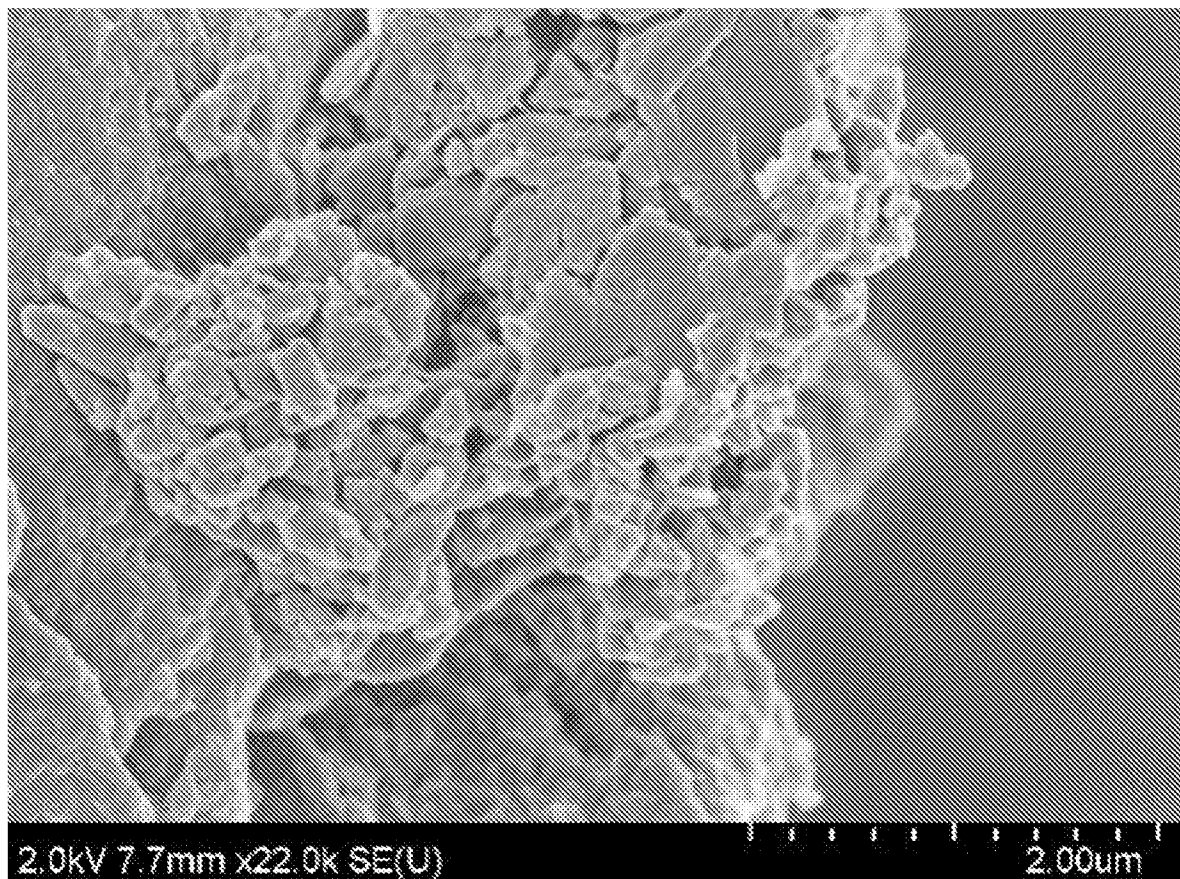
[図31]



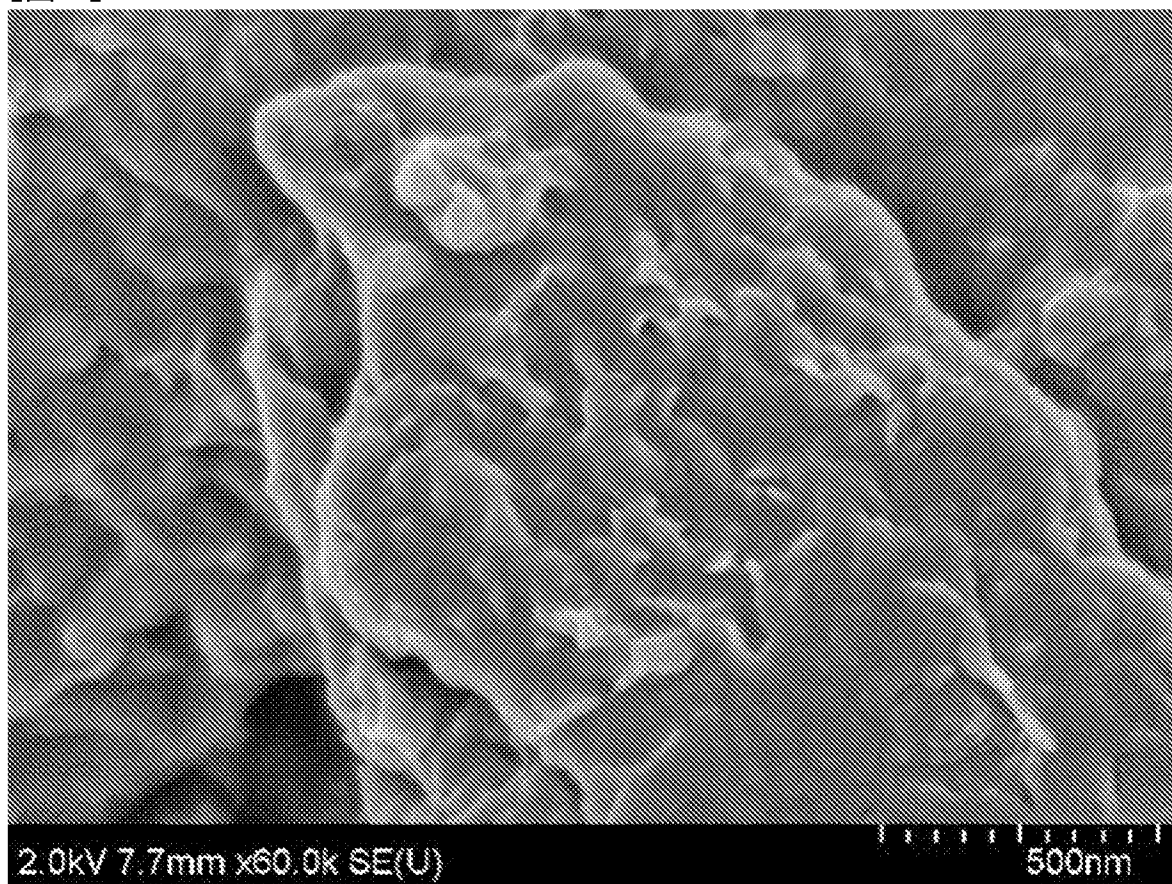
[図32]



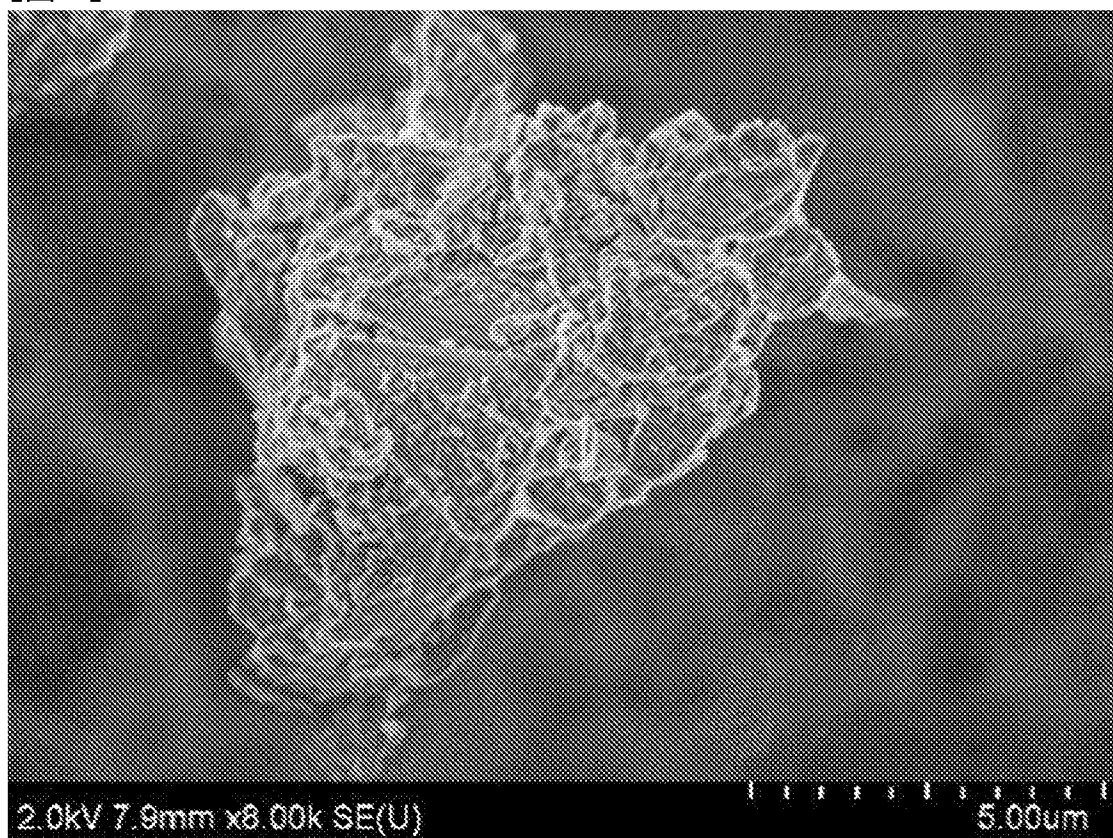
[図33]



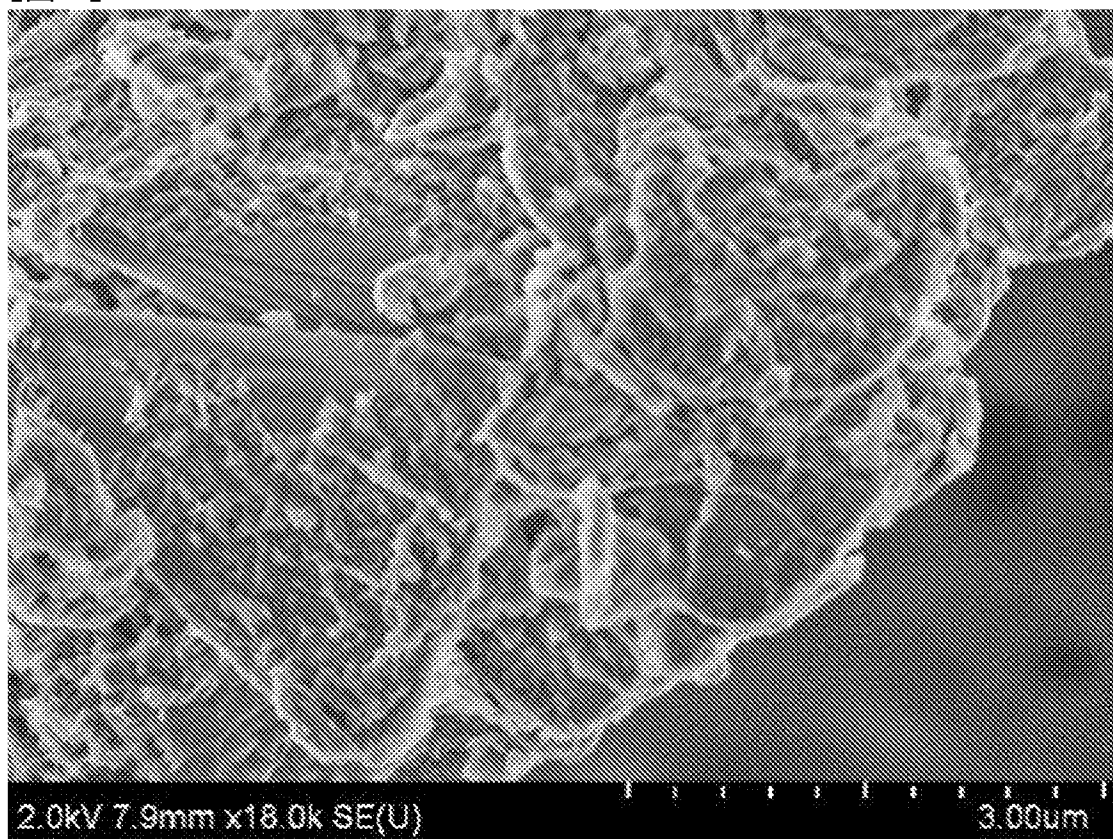
[図34]



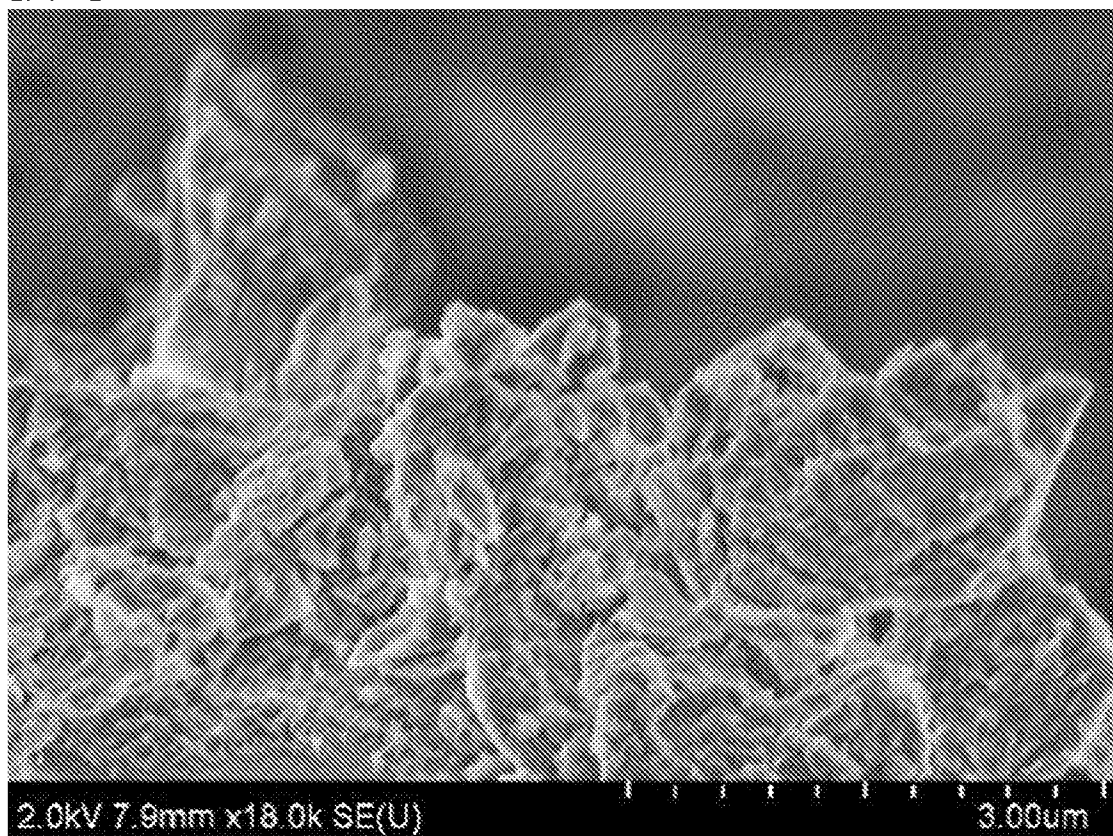
[図35]



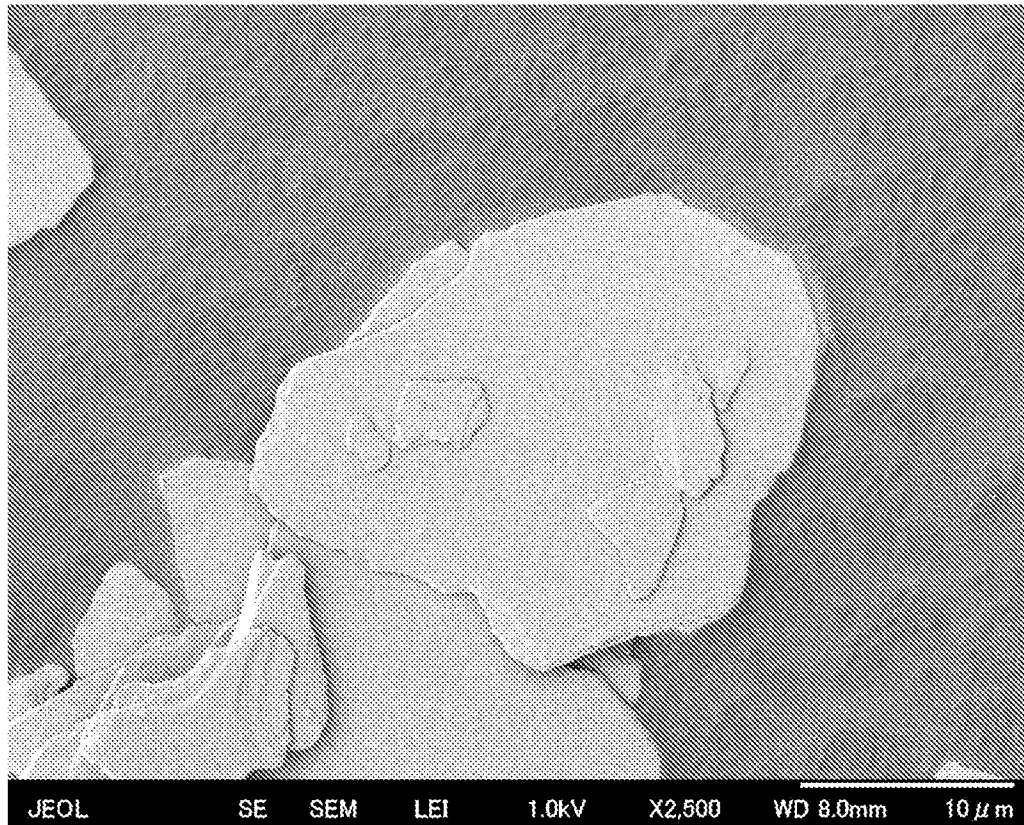
[図36]



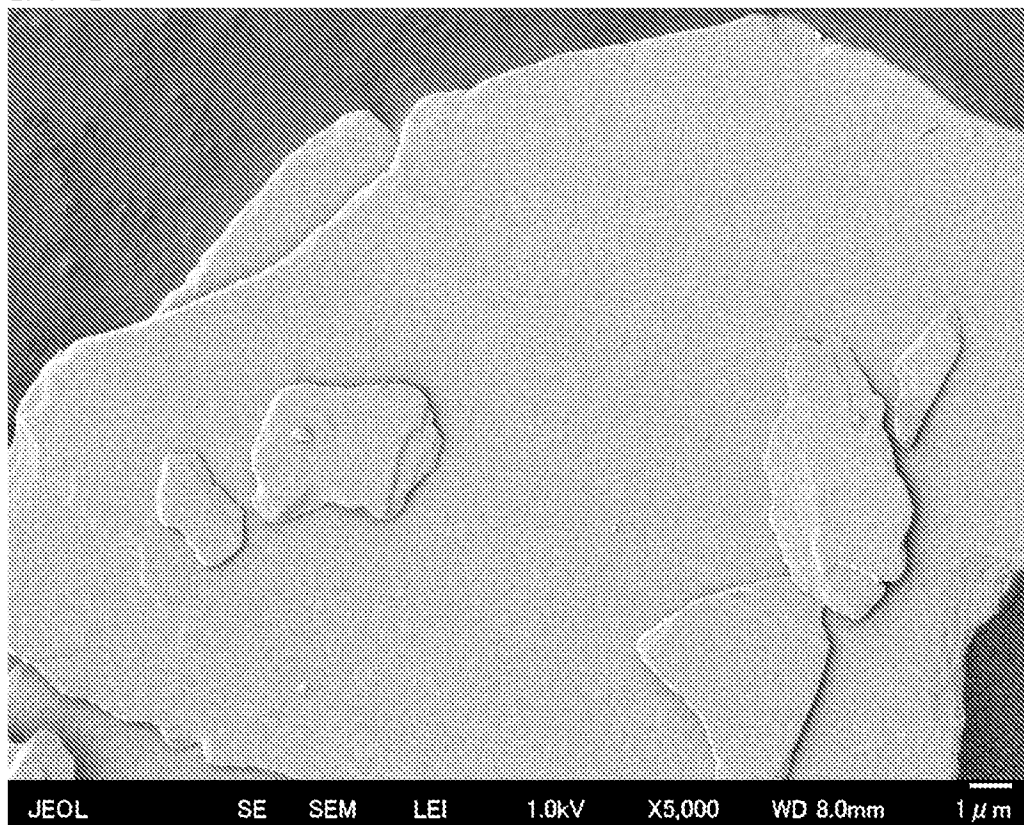
[図37]



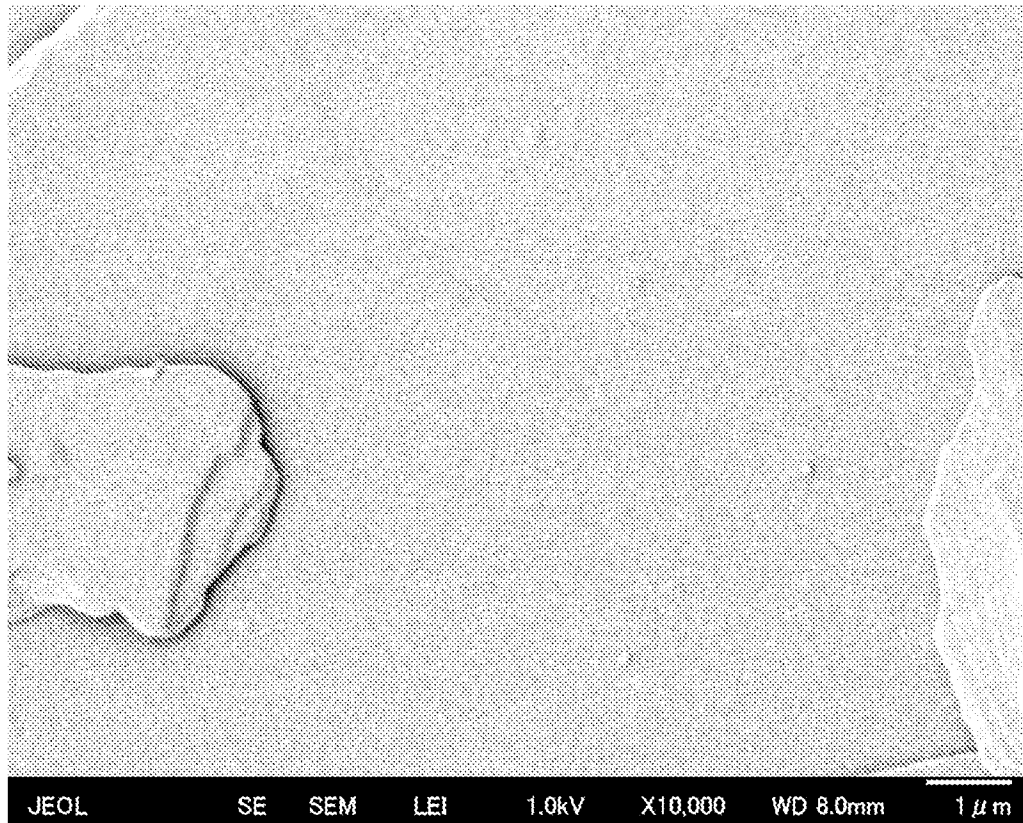
[図38]



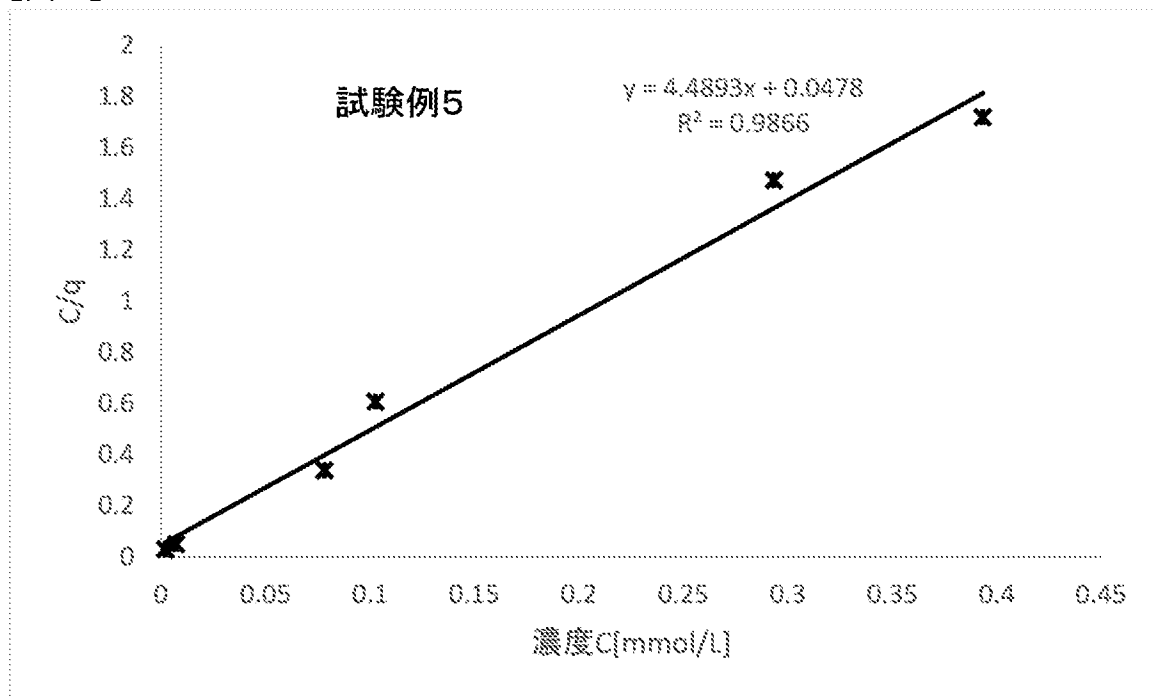
[図39]



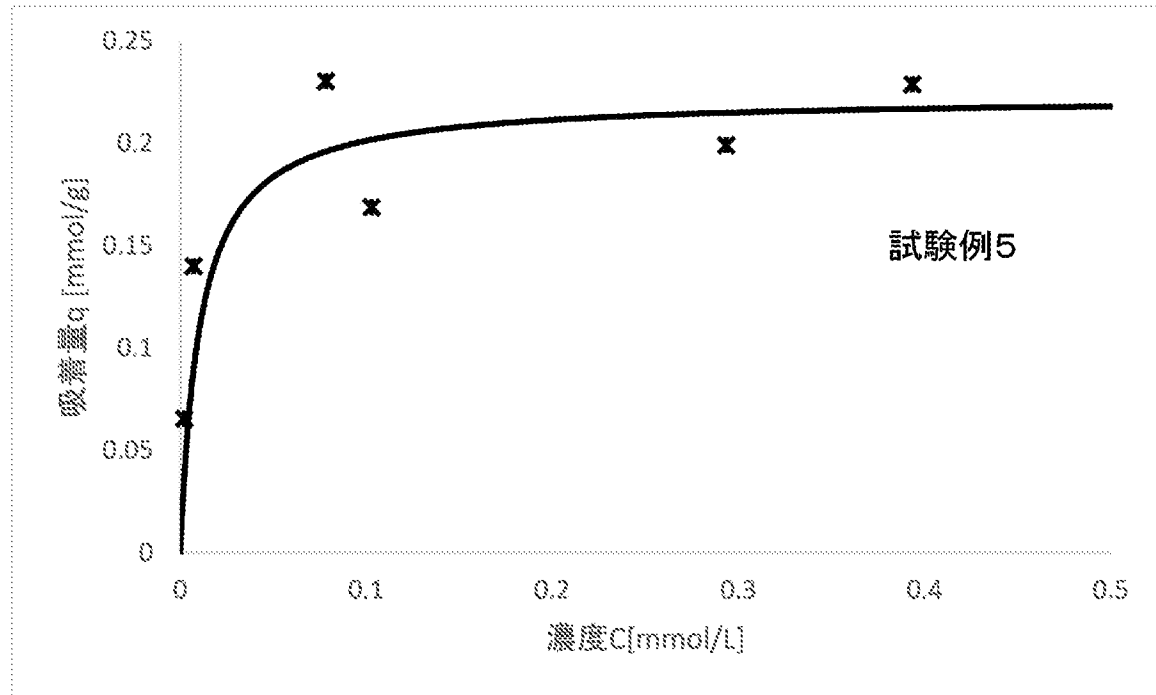
[図40]



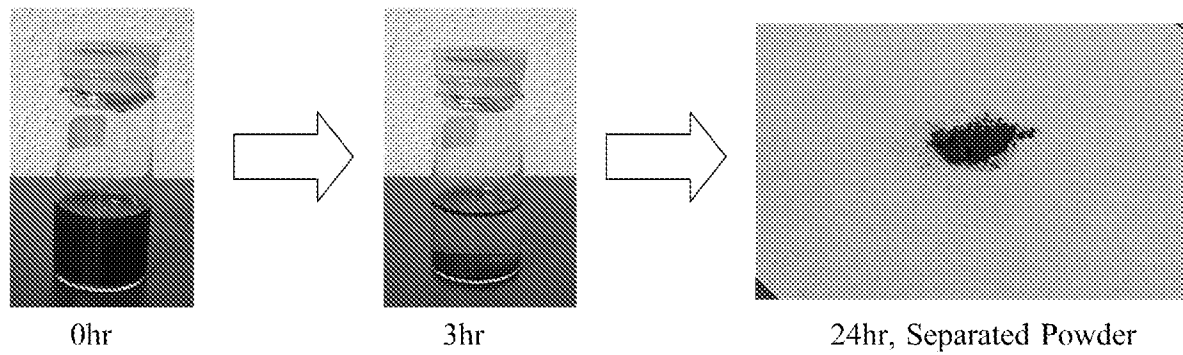
[図41]



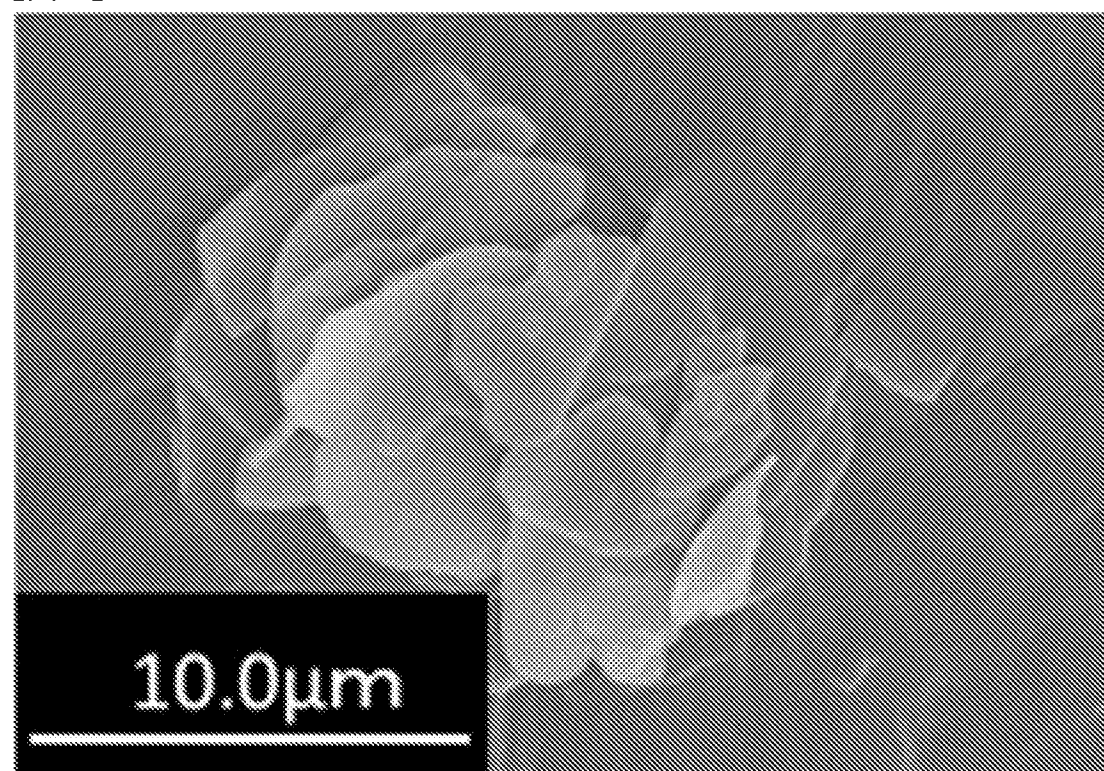
[図42]



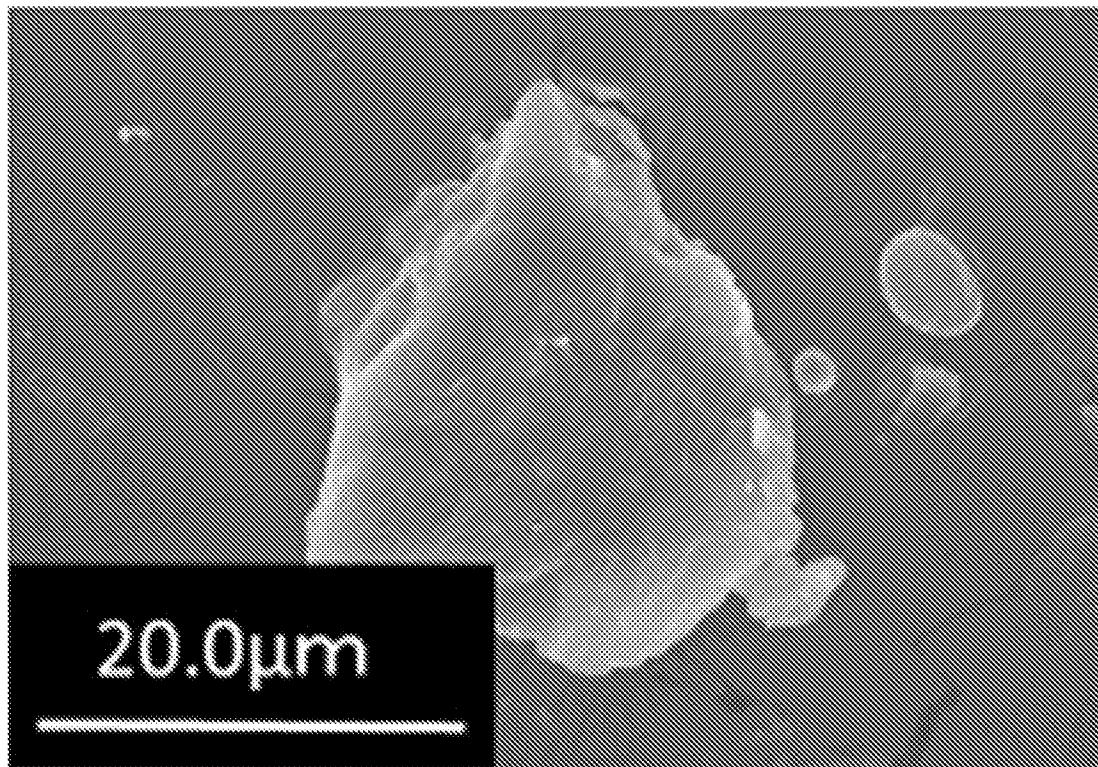
[図43]



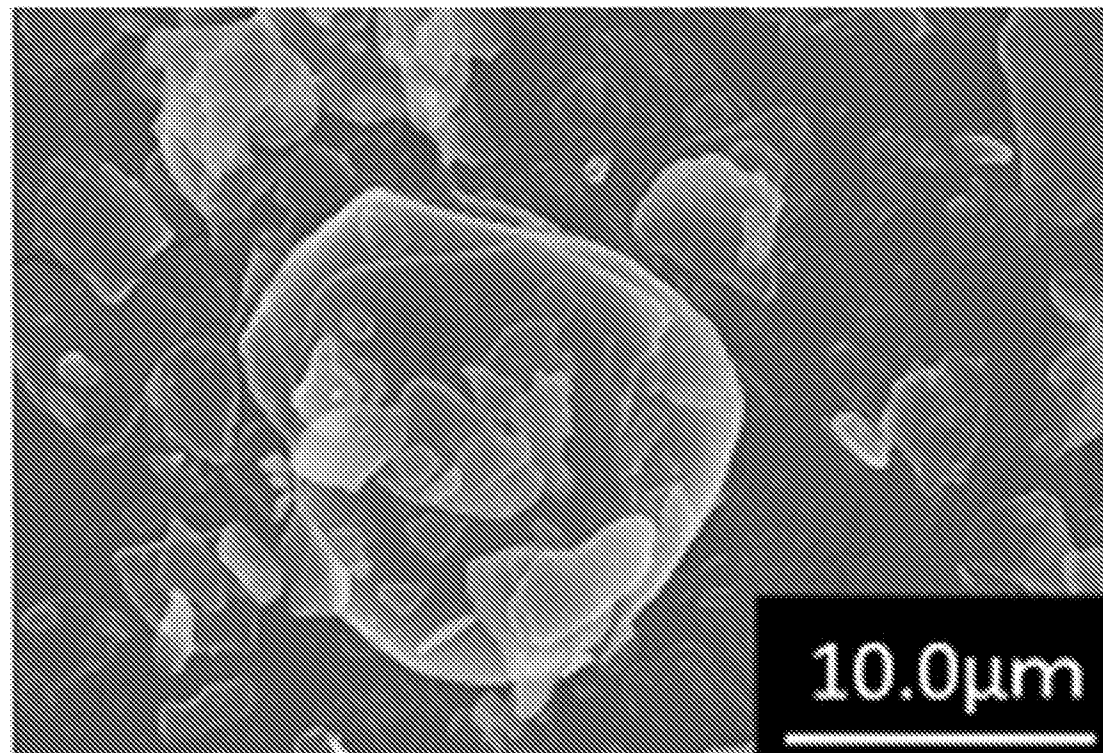
[図44]



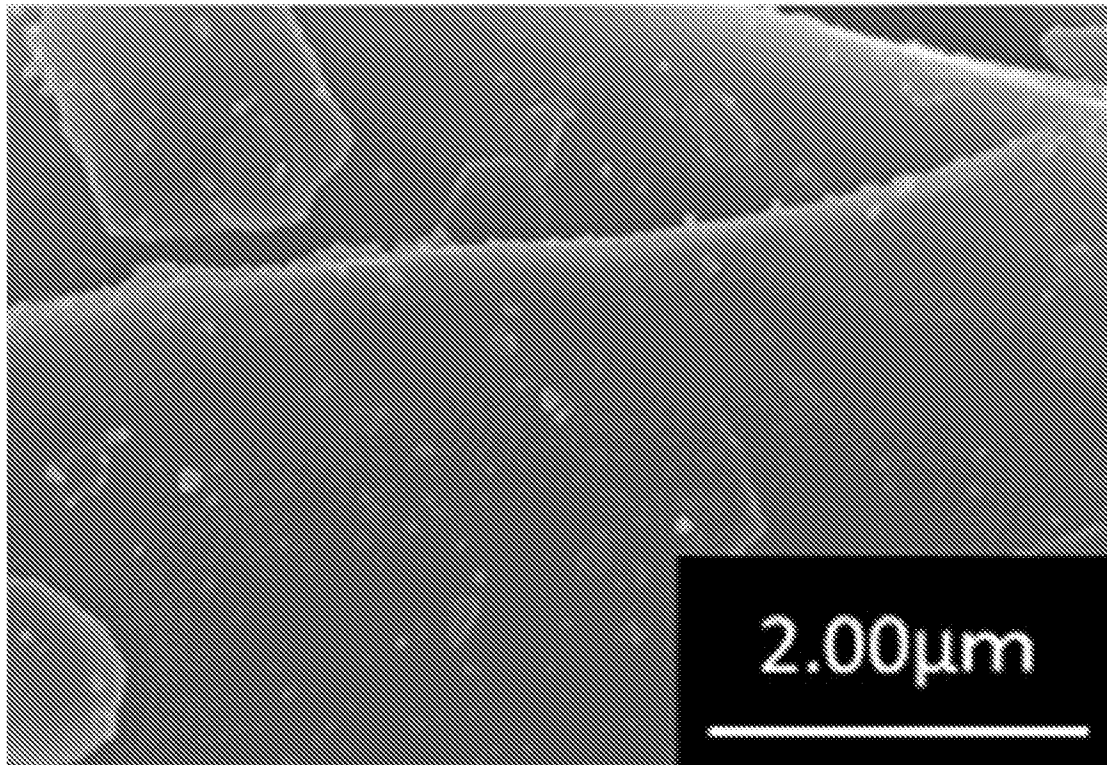
[図45]



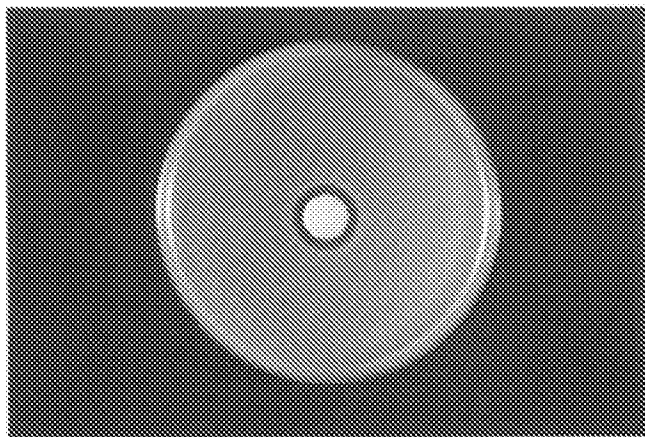
[図46]



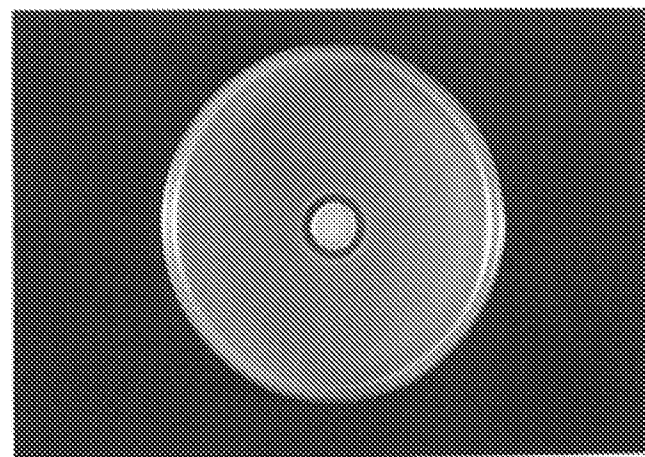
[図47]



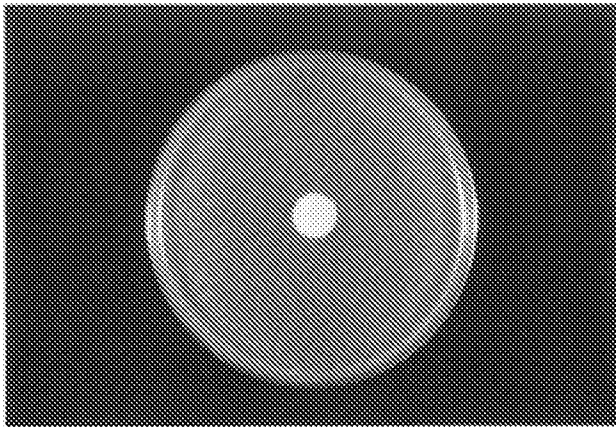
[図48]



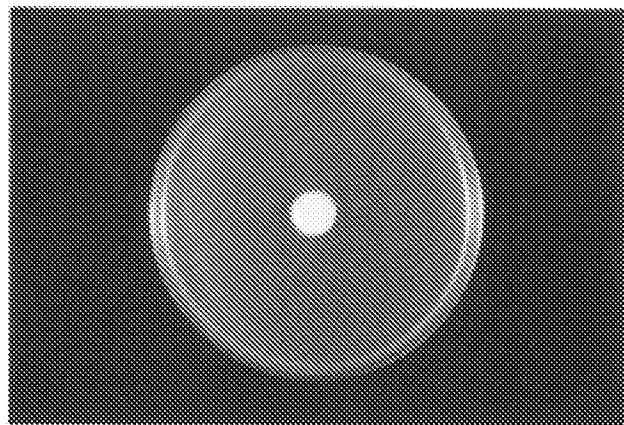
[図49]



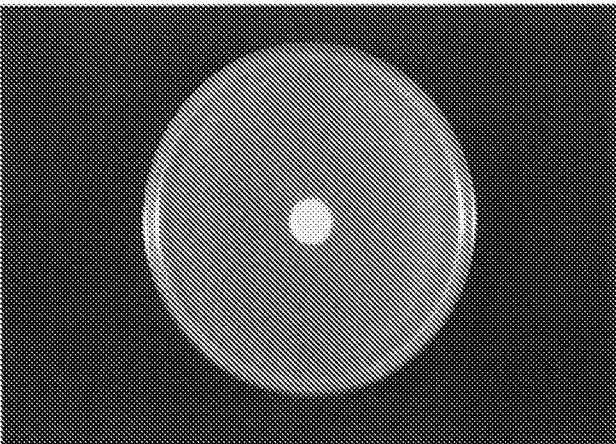
[図50]



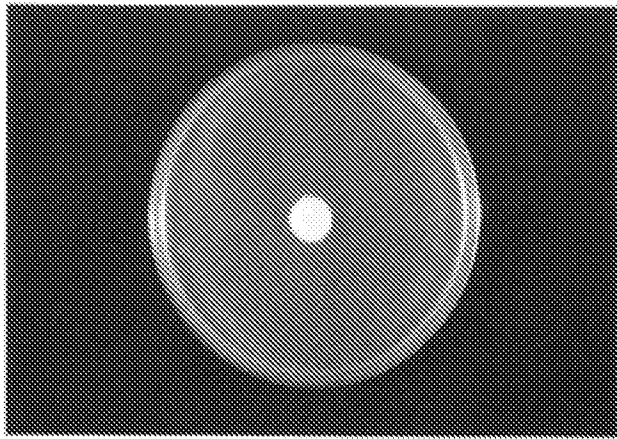
[図51]



[図52]



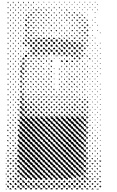
[図53]



[図54]



[図55]



[図56]



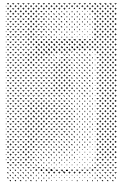
[図57]



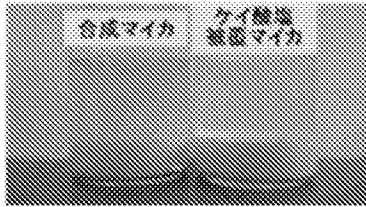
[図58]



[図59]



[図60]



INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2019/032552

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

Int.Cl. see extra sheet

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)

Int.Cl. C01B33/36, A61K9/14, A61K9/20, A61K9/26, A61K9/28, A61K31/14, A61K33/00, A61K33/30, A61K33/34, A61K33/38, A61K45/00, A61K47/02, A61K47/04, A61K47/20, A61K47/22, A61P31/00, A61P31/04, C09C1/00, C09C3/06, C09C3/08

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

Published examined utility model applications of Japan	1922-1996
Published unexamined utility model applications of Japan	1971-2019
Registered utility model specifications of Japan	1996-2019
Published registered utility model applications of Japan	1994-2019

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.
A	WO 2014/104347 A1 (KAO CORP.) 03 July 2014, claims 1-7 & CN 104884036 A & TW 201429496 A	1-26
A	JP 2004-331878 A (SHISEIDO CO., LTD.) 25 November 2004, claims 1-14 & US 2006/0110344 A1, claims 1-39 & WO 2004/063286 A1 & EP 1589077 A1 & KR 10-2005-0094835 A	1-26



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
13 September 2019 (13.09.2019)

Date of mailing of the international search report
24 September 2019 (24.09.2019)

Name and mailing address of the ISA/
Japan Patent Office
3-4-3, Kasumigaseki, Chiyoda-ku,
Tokyo 100-8915, Japan

Authorized officer

Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2019/032552

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	JP 2008-156439 A (MERCK PATENT GMBH) 10 July 2008, claims 1-13 & US 2008/0153922 A1, claims 1-13 & EP 1935946 A2 & KR 10-2008-0059061 A & CN 101294008 A	1-26
P, A	WO 2018/150600 A1 (TOPY INDUSTRIES, LTD.) 23 August 2018, entire text (Family: none)	1-26

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2019/032552

CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

C01B33/36(2006.01)i, A61K9/14(2006.01)i, A61K9/20(2006.01)i,
A61K9/26(2006.01)i, A61K9/28(2006.01)i, A61K31/14(2006.01)i,
A61K33/00(2006.01)i, A61K33/30(2006.01)i, A61K33/34(2006.01)i,
A61K33/38(2006.01)i, A61K45/00(2006.01)i, A61K47/02(2006.01)i,
A61K47/04(2006.01)i, A61K47/20(2006.01)i, A61K47/22(2006.01)i,
A61P31/00(2006.01)i, A61P31/04(2006.01)i, C09C1/00(2006.01)i,
C09C3/06(2006.01)i, C09C3/08(2006.01)i

A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (IPC))

Int.Cl. 特別ページ参照

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 (IPC))

Int.Cl. C01B33/36, A61K9/14, A61K9/20, A61K9/26, A61K9/28, A61K31/14, A61K33/00, A61K33/30, A61K33/34, A61K33/38, A61K45/00, A61K47/02, A61K47/04, A61K47/20, A61K47/22, A61P31/00, A61P31/04, C09C1/00, C09C3/06, C09C3/08

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	1922-1996年
日本国公開実用新案公報	1971-2019年
日本国実用新案登録公報	1996-2019年
日本国登録実用新案公報	1994-2019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
A	WO 2014/104347 A1 (花王株式会社) 2014. 07. 03, 請求の範囲 1-7 & CN 104884036 A & TW 201429496 A	1-26
A	JP 2004-331878 A (株式会社資生堂) 2004. 11. 25, 請求項 1-14 & US 2006/0110344 A1, 請求項 1-39 & WO 2004/063286 A1 & EP 1589077 A1 & KR 10-2005-0094835 A	1-26

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

13. 09. 2019

国際調査報告の発送日

24. 09. 2019

国際調査機関の名称及びあて先

日本国特許庁 (ISA/J P)

郵便番号 100-8915

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)

森坂 英昭

4 G

4760

電話番号 03-3581-1101 内線 3416

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	JP 2008-156439 A (メルク パテント ゲゼルシャフト ミット ベシュレンクテル ハフトング) 2008. 07. 10, 請求項 1-13 & US 2008/0153922 A1, 請求項 1-13 & EP 1935946 A2 & KR 10-2008-0059061 A & CN 101294008 A	1-26
P, A	WO 2018/150600 A1 (トピー工業株式会社) 2018. 08. 23, 全文 (ファミリーなし)	1-26

発明の属する分野の分類

C01B33/36(2006.01)i, A61K9/14(2006.01)i, A61K9/20(2006.01)i, A61K9/26(2006.01)i,
A61K9/28(2006.01)i, A61K31/14(2006.01)i, A61K33/00(2006.01)i, A61K33/30(2006.01)i,
A61K33/34(2006.01)i, A61K33/38(2006.01)i, A61K45/00(2006.01)i, A61K47/02(2006.01)i,
A61K47/04(2006.01)i, A61K47/20(2006.01)i, A61K47/22(2006.01)i, A61P31/00(2006.01)i,
A61P31/04(2006.01)i, C09C1/00(2006.01)i, C09C3/06(2006.01)i, C09C3/08(2006.01)i