(19)日本国特許庁(JP)

(12)特許公報(B2)

(11)特許番号
特許第7678669号
(P7678669)

(45)発行日　令和7年5月16日(2025.5.16)

(24)登録日　令和7年5月8日(2025.5.8)

(51)国際特許分類		FI		
C04B 38/00 (2006.01)		C04B	38/00	304Z
B01D 39/20 (2006.01)		B01D	39/20	D
B28B 3/20 (2006.01)		B28B	3/20	E
		B28B	3/20	K

請求項の数　4　（全42頁）

(21)出願番号　特願2020-544342(P2020-544342)
(86)(22)出願日　平成30年10月31日(2018.10.31)
(65)公表番号　特表2021-502948(P2021-502948A)
(43)公表日　令和3年2月4日(2021.2.4)
(86)国際出願番号　PCT/US2018/058418
(87)国際公開番号　WO2019/089735
(87)国際公開日　令和1年5月9日(2019.5.9)
審査請求日　令和3年4月13日(2021.4.13)
審判番号　不服2023-15283(P2023-15283/J1)
審判請求日　令和5年9月11日(2023.9.11)
(31)優先権主張番号　62/579,585
(32)優先日　平成29年10月31日(2017.10.31)
(33)優先権主張国・地域又は機関
最終頁に続く

(73)特許権者　397068274
コーニング インコーポレイテッド
アメリカ合衆国 ニューヨーク州 １４８３１ コーニング リヴァーフロント プラザ １
(74)代理人　100073184
弁理士　柳田 征史
(74)代理人　100175042
弁理士　高橋 秀明
(74)代理人　100163050
弁理士　小栗 眞由美
(74)代理人　100224775
弁理士　南 毅
(72)発明者　バックハウス－リクー，モニカ
フランス国 ７７７８０ ブロン マルロ
最終頁に続く

(54)【発明の名称】　予備反応させた無機粒子を含むバッチ組成物およびそれからのグリーン体の製造方法

(57)【特許請求の範囲】

【請求項１】

バッチ組成物において、

２０μm≦D_{50}≦５０μm、

D_{90}≦１００μm、および

D_{10}≧５μm

の狭い粒子サイズ分布を有する球状無機粒子と、

前記バッチ組成物中の前記球状無機粒子の総質量に対する上乗せ添加による２０質量%未満の微細無機粒子であって、５μm未満の中央径を有する微細無機粒子と、

前記バッチ組成物中の全ての無機粒子に対する上乗せ添加による２８質量%以上のＬＶ%とを含み、

ＬＶ%が、液体ビヒクルパーセントであり、前記粒子サイズ分布中の前記球状無機粒子の９０%が、D_{90}以下の直径を有し、前記球状無機粒子の１０%が、D_{10}以下の直径を有し、D_{50}が、前記粒子サイズ分布の中央粒径であり、

前記バッチ組成物中の前記微細無機粒子の総質量と、前記バッチ組成物中の前記球状無機粒子の総質量との比が、３：９７～２０：８０であり、

前記球状無機粒子は、所望のセラミック結晶相組成物を含むものである、

バッチ組成物。

【請求項２】

D_{10}≧２５μmを有する、請求項１記載のバッチ組成物。

【請求項３】
有機バインダに対する液体ビヒクルの比≧６．４％を有する、請求項１記載のバッチ組成物。
【請求項４】
ハニカム体を製造する方法において、
２０μｍ≦Ｄ$_{50}$≦５０μｍ、
Ｄ$_{90}$≦１００μｍ、および
Ｄ$_{10}$≧５μｍ
の粒子サイズ分布を有する予備反応させた球状無機粒子と、
前記バッチ組成物中の前記予備反応させた球状無機粒子の総質量に対する上乗せ添加による３質量％超え且つ２０質量％未満の微細無機粒子であって、５μｍ未満の中央径を有する微細無機粒子と、
前記バッチ組成物中の全ての無機粒子に対する上乗せ添加による２８質量％以上のＬＶ％とを含むバッチ組成物を混合するステップであって、前記予備反応させた球状無機粒子は、噴霧乾燥により形成された球状無機粒子を焼成またはか焼して、所望のセラミック結晶相組成物を含むよう形成されたものであり、前記予備反応させた球状無機粒子の９０％が、Ｄ$_{90}$未満の直径を有し、前記予備反応させた球状無機粒子の１０％が、Ｄ$_{10}$未満の直径を有し、Ｄ$_{50}$が中央粒径であるステップと、
前記バッチ組成物を、押出により湿ったグリーンハニカム体へと成形するステップと
を含む、方法。
【発明の詳細な説明】
【関連出願】
【０００１】
本出願は、２０１７年１０月３１日に出願された米国仮特許出願第６２／５７９，５８５号および２０１７年１０月３１日に出願された米国仮特許出願第６２／５７９，５７９号の米国特許法第１１９条の下での優先権の恩恵を主張し、その内容を依拠し、その内容全体を本明細書に援用する。
【技術分野】
【０００２】
本開示は、予備反応させた無機粒子を含むバッチ組成物およびそれからグリーン体物品を製造する方法に関する。
【背景技術】
【０００３】
ディーゼルおよびガソリンエンジン排気後処理用触媒コンバータおよびパティキュレートフィルタにおいては、コーディエライトおよびチタン酸アルミニウムベースの多孔質セラミックハニカム体が使用されてきた。
【０００４】
そのようなセラミックハニカム体は、無機材料および有機材料ならびに液体ビヒクルの可塑化バッチ組成物を押出機の押出ダイを通じて押し出し、湿ったグリーンハニカム体を生成することにより製造できる。湿ったグリーンハニカム体を乾燥および焼成して、多孔質セラミックハニカム体を生成できる。
【発明の概要】
【０００５】
本開示の例示の実施形態は、バッチ組成物に関する。バッチ組成物は、
２０μｍ≦Ｄ$_{50}$≦５０μｍ、
Ｄ$_{90}$≦１００μｍ、および
Ｄ$_{10}$≧５μｍ
の狭い粒子サイズ分布を有する予備反応させた球状無機粒子と、
バッチ組成物中の予備反応させた球状無機粒子の総質量に対する上乗せ添加による２０質量％未満の微細無機粒子であって、５μｍ未満の中央径を有する微細無機粒子と、

バッチ組成物中の全ての無機粒子に対する上乗せ添加による２８質量％以上のＬＶ％とを含み、
ＬＶ％が、液体ビヒクルパーセントであり、粒子サイズ分布中の予備反応させた無機粒子の９０％が、D_{90}以下の直径を有し、予備反応させた無機粒子の１０％が、D_{10}以下の直径を有し、D_{50}が、粒子サイズ分布の中央粒径である。

【０００６】
いくつかの実施形態において、予備反応させた球状無機粒子は、$20\mu m \leqq D_{50} \leqq 45\mu m$を有する。

【０００７】
いくつかの実施形態において、予備反応させた球状無機粒子は、$25\mu m \leqq D_{50} \leqq 45\mu m$を有する。

【０００８】
いくつかの実施形態において、バッチ組成物は、$D_{90} \leqq 75\mu m$を有する。

【０００９】
いくつかの実施形態において、バッチ組成物は、$D_{90} \leqq 65\mu m$を有する。

【００１０】
いくつかの実施形態において、バッチ組成物は、$D_{10} \geqq 10\mu m$を有する。

【００１１】
いくつかの実施形態において、バッチ組成物は、$D_{10} \geqq 25\mu m$を有する。

【００１２】
いくつかの実施形態において、バッチ組成物は、$D_{90} \leqq 75\mu m$および$D_{10} \geqq 5\mu m$を有する。

【００１３】
いくつかの実施形態において、バッチ組成物は、$D_{90} \leqq 65\mu m$および$D_{10} \geqq 5\mu m$を有する。

【００１４】
いくつかの実施形態において、バッチ組成物は、$D_{90} \leqq 70\mu m$および$D_{10} \geqq 10\mu m$を有する。

【００１５】
いくつかの実施形態において、予備反応させた球状無機粒子は、$dB \leqq 2.00$を有し、$dB = (D_{90} - D_{10}) / D_{50}$である。

【００１６】
いくつかの実施形態において、予備反応させた球状無機粒子は、$dB \leqq 1.00$を有する。

【００１７】
いくつかの実施形態において、予備反応させた球状無機粒子は、$dB \leqq 0.90$を有する。

【００１８】
いくつかの実施形態において、予備反応させた球状無機粒子は、$dB \leqq 0.80$を有する。

【００１９】
いくつかの実施形態において、バッチ組成物は、５μｍ未満の中央径を有する微粒子サイズ分布を有する１５質量％未満の微細無機粒子を含む。

【００２０】
いくつかの実施形態において、バッチ組成物は、５μｍ未満の中央径を有する１０質量％未満の微細無機粒子を含む。

【００２１】
いくつかの実施形態において、バッチ組成物中の微細無機粒子は、２μｍ未満の中央径を各々有する微細アルミナおよび微細シリカを含む。

【００２２】

いくつかの実施形態において、バッチ組成物中の微細無機粒子は、１μｍ未満の中央径を有する粒子サイズ分布を各々有する微細アルミナおよびコロイド状シリカを含む。

【００２３】

いくつかの実施形態において、バッチ組成物は、バッチ組成物中の微細無機粒子の総質量と、バッチ組成物中の予備反応させた球状無機粒子の総質量との比３：９７～２０：８０を有する。

【００２４】

いくつかの実施形態において、予備反応させた球状無機粒子は、ＡＲ≦１．２を有し、ここで、ＡＲは、最大寸法を有する第１の幅に亘り測定され、予備反応させた球状無機粒子に亘る最小寸法を有する第２の幅で割った平均アスペクト比である。

【００２５】

いくつかの実施形態において、予備反応させた球状無機粒子は、噴霧乾燥プロセスにより形成される。

【００２６】

いくつかの実施形態において、液体ビヒクルの質量パーセントは、バッチ組成物中の全ての無機粒子の総質量に基づく上乗せ添加による３０質量％以上である。

【００２７】

いくつかの実施形態において、液体ビヒクルの質量パーセントは、バッチ組成物中の全ての無機粒子の総質量に基づく上乗せ添加による３５質量％以上である。

【００２８】

いくつかの実施形態において、液体ビヒクルの質量パーセントは、バッチ組成物中の全ての無機粒子の総質量に基づく上乗せ添加による４０質量％以上である。

【００２９】

いくつかの実施形態において、液体ビヒクルの質量パーセントは、バッチ組成物中の全ての無機粒子の総質量に基づく上乗せ添加による４５質量％以上である。

【００３０】

いくつかの実施形態において、液体ビヒクルの質量パーセントは、バッチ組成物中の全ての無機粒子の総質量に基づく上乗せ添加による２８質量％以上５０質量％以下である。

【００３１】

いくつかの実施形態において、バッチ組成物は、細孔形成剤としてのデンプンおよびグラファイトの組合せを含む。

【００３２】

いくつかの実施形態において、バッチ組成物は、バッチ組成物中の全ての無機粒子に対する上乗せ添加による５質量％～２０質量％の量の細孔形成剤としてのエンドウデンプン、およびバッチ組成物中の全ての無機粒子に対する上乗せ添加による１質量％～１０質量％の量の細孔形成剤としてのグラファイトの組合せを含む。

【００３３】

いくつかの実施形態において、バッチ組成物は、球形ポリマー細孔形成剤を含む。

【００３４】

いくつかの実施形態において、バッチ組成物は、バッチ組成物中の全ての無機粒子の質量に対する上乗せ添加による０．５質量％～２．５質量％の量の滑剤を含む。

【００３５】

いくつかの実施形態において、バッチ組成物は、バッチ組成物中の全ての無機粒子の質量に対する上乗せ添加による４．０質量％～８．０質量％の量の有機バインダを含む。

【００３６】

いくつかの実施形態において、有機バインダは、メチルセルロースバインダおよびヒドロキシメチルセルロースバインダの組合せを含み、メチルセルロースバインダが、約３．０質量％　ＳＡＴ～６．０質量％　ＳＡＴであり、ヒドロキシメチルセルロースバインダが、約１．５質量％　ＳＡＴ～３．０質量％　ＳＡＴであり、ここで、ＳＡＴは、バッチ組成物中の全ての無機粒子の質量に対する上乗せ添加によるものとして定義される。

【００３７】
いくつかの実施形態において、有機バインダは、約４．０質量％　ＳＡＴ～８．０質量％ＳＡＴの量の有機バインダとしてのヒドロキシメチルセルロースバインダのみを含み、ここで、ＳＡＴは、バッチ組成物中の全ての無機粒子の質量に対する上乗せ添加によるものとして定義される。
【００３８】
いくつかの実施形態において、予備反応させた球状無機粒子は、チタン酸アルミニウムの主結晶相を含む。
【００３９】
いくつかの実施形態において、予備反応させた球状無機粒子は、チタン酸アルミニウムの主結晶相およびムライトの第２の結晶相を含む。
【００４０】
いくつかの実施形態において、予備反応させた球状無機粒子は、チタン酸アルミニウムの主結晶相および長石の第２の結晶相を含む。
【００４１】
いくつかの実施形態において、予備反応させた無機粒子は、主にチタン酸アルミニウムおよびニチタン酸マグネシウムの固溶体の第１の結晶相、ならびにコーディエライトを含む第２の結晶相を含む。
【００４２】
いくつかの実施形態において、予備反応させた球状無機粒子は、チタン酸アルミニウムの主結晶相および副ガラス相を含む。
【００４３】
いくつかの実施形態において、予備反応させた無機粒子は、酸化物基準の質量％で、４％～１０％のMgO、４０％～５５％のAl_2O_3、２５％～４４％のTiO_2、および５～２５％のSiO_2を含む。
【００４４】
いくつかの実施形態において、バッチ組成物は、有機バインダに対する液体ビヒクルの比≧６．４％を有する。
【００４５】
本開示の例示の実施形態は、上述の実施形態のいずれかによるバッチ組成物を含むグリーンハニカム体にも関する。
【００４６】
本開示の例示の実施形態はさらに、ハニカム体を製造する方法に関する。この方法は、
$20\ \mu m \leqq D_{50} \leqq 50\ \mu m$、
$D_{90} \leqq 100\ \mu m$、および
$D_{10} \geqq 5\ \mu m$
の粒子サイズ分布を有する予備反応させた球状無機粒子と、
バッチ組成物中の予備反応させた球状無機粒子の総質量に対する上乗せ添加による２０質量％未満の微細無機粒子であって、５μｍ未満の中央径を有する微細無機粒子と、
バッチ組成物中の全ての無機粒子に対する上乗せ添加による２８質量％以上のＬＶ％とを含むバッチ組成物を混合するステップであって、
予備反応させた球状無機粒子の９０％が、D_{90}未満の直径を有し、予備反応させた球状無機粒子の１０％が、D_{10}未満の直径を有し、D_{50}が中央粒径であるステップを含む。
【００４７】
この方法は、バッチ組成物を、押出により湿ったグリーンハニカム体へと成形するステップであって、バッチ組成物が、タウＹ／ベータ≧２．０を有し、タウＹが、バッチ剛性の尺度であり、ベータが、バッチ組成物の摩擦係数であるステップをさらに含む。
【００４８】
いくつかの実施形態において、タウＹ／ベータ≧３．０である。

【００４９】
いくつかの実施形態において、タウＹ／ベータ≧４．０である。
【００５０】
いくつかの実施形態において、タウＹ／ベータ≧５．０である。
【００５１】
いくつかの実施形態において、タウＹ／ベータ≧６．０である。
【００５２】
いくつかの実施形態において、タウＹ／ベータ≧７．０である。
【００５３】
いくつかの実施形態において、タウＹ／ベータ≧８．０である。
【００５４】
いくつかの実施形態において、タウＹ／ベータ≧１０．０である。
【００５５】
いくつかの実施形態において、成形するステップは、押出を含み、４７℃以上の押出中のＴ$_{onset}$を有する。
【００５６】
いくつかの実施形態において、この方法は、５０℃以上の押出中のＴ$_{onset}$を有する。
【００５７】
いくつかの実施形態において、この方法は、５５℃以上の押出中のＴ$_{onset}$を有する。
【００５８】
いくつかの実施形態において、この方法は、湿ったグリーンハニカム体を乾燥させて、乾燥したグリーンハニカム体を形成するステップと、乾燥したグリーンハニカム体を焼成して、多孔質セラミックハニカム体を形成するステップとを含む。
【００５９】
本開示の例示の実施形態は、ハニカム体を製造する方法にも関する。この方法は、予備反応させた球状無機粒子と、バッチ組成物中の予備反応させた球状無機粒子の総質量に対する上乗せ添加による２０質量％未満の微細無機粒子であって、５μｍ未満の中央径を有する微細無機粒子と、バッチ組成物中の全ての無機粒子に対する上乗せ添加による２８質量％以上のＬＶ％とを含むバッチ組成物を混合するステップを含む。この方法は、バッチ組成物を、押出により湿ったグリーンハニカム体へと成形するステップであって、バッチ組成物が、タウＹ／ベータ≧２．０を有し、タウＹが、バッチ剛性の尺度であり、ベータが、バッチ組成物の摩擦係数であるステップをさらに含む。
【００６０】
本開示の例示の実施形態はさらに、別のバッチ組成物に関する。バッチ組成物は、
２０μｍ≦D_{50}≦５０μｍ、
D_{90}≦１００μｍ、および
D_{10}≧５μｍ
の狭い粒子サイズ分布を有する予備反応させた球状無機粒子と、
バッチ組成物中の予備反応させた球状無機粒子の総質量に対する上乗せ添加による２０質量％未満の微細無機粒子であって、５μｍ未満の中央径を有する微細無機粒子と、
バッチ組成物中の全ての無機粒子に対する上乗せ添加による２８質量％以上のＬＶ％とを含み、かつ
タウＹ／ベータ≧２．０を有し、
ＬＶ％が、液体ビヒクルパーセントであり、粒子サイズ分布中の予備反応させた無機粒子の９０％が、D_{90}以下の直径を有し、予備反応させた無機粒子の１０％が、D_{10}以下の直径を有し、D_{50}が、粒子サイズ分布の中央粒径であり、タウＹが、バッチ剛性の尺度であり、ベータが、バッチ組成物の摩擦係数である。
【００６１】

本開示の追加の特徴は以下の説明に記載され、一部は説明から明らかであろうし、または本開示を実施することにより分かるであろう。先の一般的な説明および以下の詳細な説明のいずれも例示的および説明的なものであり、本開示のさらに別の説明を提供することが意図されていることが理解されよう。

【図面の簡単な説明】

【００６２】

本開示をさらに理解するために含まれ、本明細書に組み込まれかつその一部を構成する添付図面は、本開示の例の実施形態を示しており、その説明と共に本開示の原理の説明に役立つ。

【図１】１つ以上の実施形態による、バッチ組成物から生成され、パティキュレートフィルタとして具体化された多孔質セラミックハニカム体の等角図。

【図２】１つ以上の実施形態によるバッチ組成物中で使用される（説明目的のために歪んで示された）予備反応させた球状無機粒子のグラフィック図。

【図３Ａ】１つ以上の実施形態によるバッチ組成物中で使用される予備反応させた球状無機粒子のいくつかの実施形態の粒子サイズ分布のプロット。

【図３Ｂ】１つ以上の実施形態によるバッチ組成物中で使用される予備反応させた球状無機粒子のいくつかの実施形態の粒子サイズ分布のプロット。

【図４Ａ】実施形態によるバッチ組成物から湿ったグリーンハニカム体を形成するために使用される押出機の概略図。

【図４Ｂ】１つ以上の実施形態によるバッチ組成物から生成された乾燥したグリーンハニカム体の等角図。

【図５】１つ以上の実施形態によるハニカム体を製造する方法のフローチャート。

【図６】１つ以上の実施形態によるバッチ組成物を使用してハニカム体を製造する方法のフローチャート。

【図７】１つ以上の実施形態による予備反応させた球状無機粒子を含むバッチ組成物の様々な実施形態のＬＶ％（質量％での水分）対バッチ剛性タウＹと比較した、従来のバッチ組成物のＬＶ％対バッチ剛性タウＹのプロット。

【図８】１つ以上の実施形態による予備反応させた球状無機粒子を含むバッチ組成物の様々な実施形態のＬＶ％（質量％での水分）対バッチ摩擦ベータと比較した、従来のバッチ組成物のＬＶ％対バッチ摩擦ベータのプロット。

【図９】実施形態によるバッチ組成物のレオロジー特性を試験するように構成されたキャピラリーレオメータの側断面図。

【図１０】予備反応させた球状無機粒子を含むバッチ組成物の例の実施形態の速度（インチ／秒）に対する流入圧力Ｐｅ（ｐｓｉ）のプロット。

【図１１】複数の速度Ｖおよび異なるキャピラリー長Ｌにおける、予備反応させた球状無機粒子を含むバッチ組成物の例の実施形態のサンプル番号に対するＰｔｏｔａｌ（ｐｓｉ）のプロット。

【図１２】異なるキャピラリー長Ｌのキャピラリーレオメータを通じて押し出された、予備反応させた球状無機粒子を含むバッチ組成物の例の実施形態のＶ（インチ／秒）に対するＰｔｏｔａｌ（ｐｓｉ）のプロット。

【図１３】予備反応させた球状無機粒子を含むバッチ組成物の様々な実施形態のＬＶ％（質量％での水分）対タウＹ／ベータと比較した、反応性バッチ組成物のＬＶ％対タウＹ／ベータのプロット。

【図１４】反応性バッチ組成物および予備反応させた球状無機粒子を含むバッチ組成物の様々な実施形態のベータに対するタウＹのプロット。

【発明を実施するための形態】

【００６３】

以下、添付図面を参照して、本開示の実施形態がさらに詳しく記載される。しかし、本開示は、多くの様々な形態で具体化することができ、本明細書において記載された実施形態に限定されるものと解釈されるべきではない。これらの開示された実施形態は、本開示

が十分かつ完全であるように提供される。図面において、サイズおよび相対的なサイズは、原寸に比例して描かれていないことがある。図面中の同様の参照番号は、同様の要素を表すために本開示全体に亘って使用される。

【００６４】

供給速度が最終的なハニカム体のコストに少なくともある程度結び付いているといわれているため、ハニカム押出分野において、押出ダイを通じた可塑化バッチ組成物の供給速度を増加させるために相当な努力がなされてきた。したがって、供給速度の増加は、最終的なセラミックハニカム体のより低い生産コストに等しい。しかし、いくつかの理由で、そのような進歩は実現が困難であった。

【００６５】

セラミックハニカム物品の製造において、非理想混合物と見なしてもよい可塑化バッチ組成物は、細い交差スロットの配列を有する押出ダイを備えている押出機を通じて押し出される。無機成分（例えば、アルミナ、シリカ、チタニア、および／またはマグネシアの供給源）の乾いたバッチ組成物は、有機バインダ、液体ビヒクル（ＬＶ）、場合によって油滑剤、および任意選択の（１種類以上の）細孔形成剤と結合され、混合および／または混練することにより可塑化されて、可塑化バッチが生成される。次いで、可塑化バッチは、二軸スクリュー押出機などの押出機に供給される。本明細書において用いられる「可塑化」は、ＬＶ（例えば、脱イオン水）および場合によって滑剤を含み、押出に適したペースト粘稠度を有するために混合および／または混練されたバッチ混合物の性質を意味する。本明細書において用いられる「バッチ組成物」は、少なくとも無機原材料、有機バインダ、任意選択の（１種類以上の）細孔形成剤、およびＬＶを含む材料の混合物を意味する。押出機に断続的に供給される材料のパッグとして、または混合および／もしくは混練され、押出機に連続的または半連続的に供給できる形態および粘稠度の可塑化バッチ組成物の連続的または半連続的な供給として可塑化バッチ組成物が構成されてもよい。

【００６６】

可塑化バッチ組成物は、加圧下、１本もしくは複数本の押出機スクリュー（例えば、二軸スクリュー押出機）または他の適切な装置から押出機の押出ダイの細いスロットを通って流れ、湿ったグリーン体ハニカムなどのグリーン体を形成できる。湿ったグリーンハニカム体は、乾燥したグリーンハニカム体を形成するために、マイクロ波乾燥、高周波（ＲＦ）乾燥、オーブン乾燥、またはそれらの組合せを使用することによるなど、任意の適切な方法により乾燥できる。乾燥後、乾燥したグリーン体ハニカムは、多孔質セラミックハニカム体などの多孔質セラミック体を生成するために、窯内または炉内で高温で焼成される。

【００６７】

できるだけ速い供給速度で可塑化バッチを押し出す一方、少ない変形、少ない裂けを示し、所望の全体的な幾何学的外形、ならびに交差壁およびセルの所望の形状を満足する良好な品質の湿ったグリーンハニカム体も提供することが目標である。従来のバッチ組成物の生成は、その各々がかなり広い粒子サイズ分布を有する様々な組成物の原料無機粉末を、ある量の有機バインダ（例えば、セルロースベースのバインダ）、油滑剤、水などのＬＶ、および任意選択の細孔形成剤と混合および／または混練するものである。無機粉末の供給源には、生成しようとするセラミック組成物に応じて、これらの無機粉末の各々がそれ自体の特定の粒子サイズ分布を有するアルミナ、シリカ、マグネシア、チタニア、および／または同種のものの供給源を含む原料粉末材料が含まれる。さらに、これらの粒子は、加工（例えば、粗砕または微粉砕）またはそれらの自然形状（例えば、粘土の単純さ）により形状が不規則であり、さらに大きさが大幅に異なる傾向がある。バッチ組成物は、より低い温度で焼結を促進するために、従来のバッチにおけるストロンチウム、カルシウム、または他の構成成分の粉末源などの焼結助剤を含んでもよい。しかし、そのような先行技術の従来のバッチ組成物において、押出ダイを通じた実現可能な可塑化バッチの供給速度は、バッチ組成物の性質により限られてきた。

【００６８】

例えば、バッチの剛性、および粒子分布が広い不規則な形のバッチ材料間の、押出ダイの細い交差ダイスロットの金属壁表面との摩擦は、実現可能な供給速度を制限しかねない。ある程度は、可塑化バッチ中のＬＶ（例えば、水）の相対量を変更することによりバッチ剛性を調整できるが、ＬＶ％が高すぎると、そのような従来のバッチでは形状制御が悪くなる恐れがある。本明細書において使用する場合に、水分はＬＶ％　ＳＡＴとして表され、ここで、ＳＡＴは、バッチ組成物中の全ての無機物の総質量に基づく上乗せ添加を意味する。

【００６９】

例えば、従来の先行技術の反応性バッチ組成物は、押し出された湿ったグリーン体の良好な形状特性を依然として保持しながら、押出を調整するために、水中の数ＬＶ％により調整されてきた。従来の先行技術の反応性バッチ組成物の水の割合は、従来の反応性バッチ組成物において最大約２５ＬＶ％（図７および図８参照）であった。反応性バッチ組成物中の水分は、バッチ組成物中のデンプンレベルの追加により調整される。低気孔率のセラミック物品は、デンプンなしでまたは非常に低いデンプンレベルで製造できて、わずか約１３％の水しか使用されないであろうが、デンプンレベルが高い同じバッチ組成物は、高気孔率のハニカムの生成のために最大約２５％の水が使用されるであろう。しかし、そのような従来のバッチ組成物中の水の割合が高すぎると、押出中および押出後に適切な粘度がないために、スラッギングまたはスランピング（幾何学的外形の損失）、および場合によって激しい構造変形、壁の裂けまたは破損、スロットから材料の流れが完全に結び付かない不良など、特に薄い壁において、湿ったグリーンハニカム体における特定の問題を招く可能性がある。さらに、そのようなバッチの結果として得られたそのような乾燥したグリーンハニカム体は、乾燥中に過剰に収縮して、所望の全体的な幾何学的形状が失われることがある。そのような問題は、従来のバッチ組成物において、バッチ組成物中のＬＶ％が、バッチ組成物中の無機粒子の総質量に基づく上乗せ添加による２５％超である場合に直面することがある。

【００７０】

さらに、供給速度を高めるにつれて、細いスロットを通じて押し出される可塑化バッチ組成物の温度は、剪断変形のために上昇する。剪断が低レベルのとき、押出圧力はほぼ一定のままである。しかし、供給速度の閾値を超えると、このバッチはもはや温度上昇に対処できず、したがって、硬化し、押出圧力が著しく上昇する結果となるであろう。そのような硬化は、極めて高い圧力のために、または単に閾値供給速度を超えて押出が不可能であるために、すなわち、材料が押し出されないために、ダイの破損を招く恐れがある。

【００７１】

この挙動は、可塑化バッチ組成物に含まれているセルロースベースの有機バインダの熱相転移に起因する。より高い温度では、セルロース分子は、そのペンダントメトキシ基から水が失われ、隣接する鎖間の疎水性会合が起こり、その結果、相分離およびゲル形成（ゲル化）が起こる。Ｎ．Ｓａｋａｒ，Ｊ．Ａｐｐｌ．Ｐｏｌｙｍｅｒ　Ｓｃｉｅｎｃｅ　２４，１０７３（１９７９）；“Ｔｈｅｒｍａｌ　ｇｅｌａｔｉｏｎ　ｐｒｏｐｅｒｔｉｅｓ　ｏｆ　ｍｅｔｈｙｌ－　ａｎｄ　ｈｙｄｒｏｘｙｐｒｏｐｙｌ　ｍｅｔｈｙｌｃｅｌｌｕｌｏｓｅ．”可塑化バッチ組成物の剛性は、ゲル化が進むにつれて高くなり、その結果、ゲル化の開始時に押出圧力の著しい上昇が観察される。ゲル化の開始は、温度対圧力曲線のかなりはっきりした屈曲部（傾きの変化）によって特徴付けられ、Ｔｏｎｓｅｔ値によって特徴付けられる。ゲル化が起こる温度、すなわち、Ｔｏｎｓｅｔは、このバッチがどのくらい速く押し出されるかの１つの尺度である。

【００７２】

本発明者らは、従来のチタン酸アルミニウム（ＡＴ）バッチ組成物などの特定の従来のバッチ組成物が、３５～４０℃付近のその圧力－温度曲線において、圧力の著しい上昇を示すことを認めた。そのような従来のＡＴバッチのＴｏｎｓｅｔは、メトセル（ｍｅｔｈｏｃｅｌ）のタイプおよびレベル、可塑化バッチに含まれるＬＶ％、ならびにバッチ組成物に依存する。注目すべきことに、比較的剛性がある（高いタウＹを有する）バッチを使用

することが望ましく、その理由は、これにより、湿ったグリーンハニカム体のより良い形状制御、すなわち、より少ない壁および／またはセルの変形、より少ない裂け、ならびにより少ないスランピング（質量の結果としての幾何学的変形）がもたらされ得るからである。剛性係数「タウＹ」は、特定の可塑化バッチ組成物の剛性の尺度である。より高剛性のバッチは、より高い押出圧力およびより低い供給速度につながる。液体ビヒクル（例えば、水）を従来のバッチ組成物に添加すると、バッチと細いダイスロットの間のより低い摩擦係数（ベータ）に起因して、供給速度の改善が可能になり得るが、一般に、湿ったおよび乾燥したグリーンハニカム体の形状制御が犠牲になる。摩擦係数「ベータ」は、規定されたサイズのスロットを通る可塑化バッチ組成物の摩擦の尺度である。

【００７３】

したがって、従来のバッチ組成物では、望ましい高いバッチ剛性（高いタウＹ）と低い壁摩擦（低いベータ）との当然のトレードオフが存在する。したがって、押出中のバッチ挙動を特徴付けるために、バッチ剛性係数（タウＹ）と摩擦係数（ベータ）との比（タウＹ／ベータ）を使用できる。高いタウＹ／ベータ比が望ましく、これにより、より高い押出速度が可能になると考えられる。しかし、押出に望ましい剛性の従来のバッチのタウＹ／ベータ比は非常に低く、すなわち、約１．０～１．５の範囲内である。

【００７４】

したがって、供給速度がより高くなる一方、湿ったおよび乾燥したグリーンハニカムの形状制御ならびに品質も保持するバッチ組成物の改善は、ハニカム押出技術における主要な進歩と見なされるであろう。

【００７５】

従来のバッチの上述の制限を考慮して、本開示の１つまたは複数の実施形態は、高い押出速度、および場合によっては、最良の従来の供給速度を大幅に超える押出速度を可能にし得る一方、押し出された物体の優れた形状制御も提供するバッチ組成物を提供する。例えば、１種類以上のバッチ組成物は、湿ったグリーン体ハニカムの押出中の供給速度の劇的な増加を可能にし得る。さらに、バッチ組成物のうちの１種類以上は、バッチ組成物のレオロジーに基づいた比較的大きいプロセスウィンドウを提供できる。そのような比較的大きい（拡大された）プロセスウィンドウは、押出圧力、押出温度、および押出速度の拡大された範囲を含む。

【００７６】

本開示の１つまたは複数の実施形態は、バッチ組成物中の極めて高いＬＶ％と関連する、制御された狭い粒子サイズ分布を有する比較的粗い、予備反応させた球状無機粒子、バッチ無機物中の比較的少量の微細無機粒子（以下、「細粒」）の組合せを含むバッチ組成物を含む。バッチ組成物中の細粒は質量％　ＳＡＰとして表され、ここで、「ＳＡＰ」は、バッチ組成物中の予備反応させた球状無機粒子の総量に対する上乗せ添加によることを意味する。バッチ組成物中の液体ビヒクル（ＬＶ）は質量％　ＳＡＴで添加され、ここで、ＳＡＴは、バッチ無機物の総質量（予備反応させた球状無機粒子に「細粒」を加えたものの質量）に対する上乗せ添加によることを意味する。有機バインダ、滑剤、および任意選択の細孔形成剤の添加などのバッチ組成物の他の成分の添加は全て質量％　ＳＡＴに基づく。

【００７７】

ＳＡＰおよびＳＡＴの各々の式は、以下の式１～５に示される通りである：

質量％　ＳＡＰでの細粒＝（細粒の質量／ＰＩＳＰの質量）×１００　式１

ＬＶ％　ＳＡＴ＝［ＬＶの質量／（ＰＩＳＰの質量＋細粒の質量）］×１００　式２

有機バインダの質量％　ＳＡＴ＝［ＯＢの質量／（ＰＩＳＰの質量＋細粒の質量］×１００　式３

滑剤の質量％　ＳＡＴ＝（滑剤の質量／ＰＩＳＰの質量＋細粒の質量）×１００　式４

細孔形成剤の質量％　ＳＡＴ＝［ＰＦの質量／（ＰＩＳＰの質量＋細粒の質量］×１００　式５

式中：

ＰＩＳＰ＝予備反応させた球状無機粒子、
ＯＢ＝有機バインダ、および
ＰＦ＝細孔形成剤。

【００７８】

本明細書において記載されたバッチ組成物から製造された多孔質セラミックハニカム体の用途には、例えば、ディーゼル触媒担体、ガソリン触媒担体ならびに／またはディーゼルおよびガソリンパティキュレートフィルタに組み込まれた多孔質セラミックハニカム体が含まれ得る。特に、多孔質セラミックハニカムは、一酸化炭素（ＣＯ）変成用触媒化基材、ディーゼルおよびガソリンパティキュレート排出低減用パティキュレートフィルタ、および窒素酸化物（ＮＯｘ）の選択的接触還元用触媒被覆パティキュレートフィルタを含む自動車排気ガス処理に使用され得る。結果として得られた多孔質セラミック体は、多孔質フィルタ膜、CO_2回収装置、化学流反応器、化学吸収装置、溶融金属フィルタ、再生器コア、トラフフィルタ、キャンドルフィルタ、ディスクフィルタ、半径流フィルタ、および同種のものなどの他の濾過用途および／または触媒担体用途にも使用され得る。１つの特に有用な例は、図１に示されたようなパティキュレートフィルタの形態で具体化された多孔質セラミックハニカム物品１００である。

【００７９】

多孔質セラミックハニカム物品１００は、第１の端部１０８から第２の端部１１０まで延在するチャネル１０４、１０６を形成する交差壁１０２のマトリックスを含む多孔質セラミックハニカム体１０１を含む。示されたパティキュレートフィルタの実施形態において、チャネル１０４、１０６のいくつかが、当分野で既知のようにプラグ（例えば、プラグ１１２）で塞がれていてもよい。他の実施形態において、例えば、プラグが提供されなくてもよく、多孔質セラミックハニカム体１０１が、貫流構成で構成されてもよく、触媒担体として使用されてもよい。

【００８０】

バッチ組成物のさらに別の詳細、特徴、および例の実施形態、その性能、バッチ組成物から生成されたグリーン体（湿ったおよび乾燥したグリーンハニカム体など）および多孔質セラミック体（多孔質セラミックハニカム体など）、ならびにバッチ組成物からグリーン体ハニカムおよび多孔質セラミック物品を製造する方法が、本明細書において記載された様々な表および図１Ａ～図１４を参照して、他の態様と同様にこれから記載される。

【００８１】

D_{50}

バッチ組成物において、比較的粗い、予備反応させた球状無機粒子は、$20\mu m \leqq D_{50} \leqq 50\mu m$（２０μｍ、２５μｍ、３０μｍ、３５μｍ、４０μｍ、４５μｍ、および５０μｍを含む）である粒子サイズ分布を有してもよく、ここで、D_{50}は、粒子サイズ分布の中央粒径と本明細書において定義される。いくつかの実施形態において、比較的粗い、予備反応させた球状無機粒子は、本明細書においてさらに説明されるように、D_{50}の範囲がさらにより狭い粒子サイズ分布を有する。例えば、いくつかの実施形態において、予備反応させた球状無機粒子の中央粒径は、$20\mu m \leqq D_{50} \leqq 45\mu m$、またはさらに$25\mu m \leqq D_{50} \leqq 45\mu m$であってもよい。予備反応させた球状無機粒子の中央粒径は、固体添加量を変更することにより、かつ／あるいは予備反応させた球状無機粒子を生成するためにか焼または焼成されるグリーン球状無機粒子を生成するとき、噴水ノズルの噴霧乾燥圧力または噴霧乾燥機のアトマイザーノズルの回転速度、ノズルサイズ、または噴霧乾燥機の温度設定または添加される有機もしくはポリマーバインダのタイプおよび量などの加工パラメータを変更することにより調整できる。

【００８２】

D_{90}

さらに、予備反応させた球状無機粒子は、いくつかの実施形態において、$D_{90} \leqq 100\mu m$、$D_{90} \leqq 75\mu m$、またはさらに$D_{90} \leqq 60\mu m$などの、特定の粗径を下回る粒子を大きな割合で含む粒子サイズ分布を有してもよい。D_{90}は、粒子サイズ分布内の予

備反応させた球状無機粒子の特定の粗粒子径と本明細書において定義され、ここで、この分布内の予備反応させた球状無機粒子の９０％は、粗径以下の直径を有し、すなわち、残りの粒子（約９．９９９９％）は、より大きい径を有する。

【００８３】

Ｄ１０

その上さらに、予備反応させた球状無機粒子は、いくつかの実施形態において、Ｄ１０≧５μｍ、Ｄ１０≧１０μｍ、Ｄ１０≧１５μｍ、Ｄ１０≧２０μｍ、またはさらにＤ１０≧２５μｍなどの、特定のサイズより大きい粒子の細粒分を含む粒子サイズ分布を有してもよい。Ｄ１０は、粒子サイズ分布内の粒子の特定の細径と本明細書において定義され、ここで、粒子サイズ分布中の予備反応させた球状無機粒子の１０％は、細径以下の粒子径を有し、すなわち、残り（約８９．９９９９％）は、より大きい径を有する。

【００８４】

さらに、いくつかの実施形態において、予備反応させた球状無機粒子は、Ｄ９０≦７５μｍおよびＤ１０≧５μｍ、Ｄ９０≦６５μｍおよびＤ１０≧５μｍ、またはさらにＤ９０≦７０μｍおよびＤ１０≧１０μｍの組合せを有するとして定義される比較的狭い粒子サイズ分布を有してもよい。

【００８５】

ｄＢ

いくつかの実施形態において、比較的粗い、予備反応させた球状無機粒子は、その幅に関して比較的狭い粒子サイズ分布を有してもよい。予備反応させた球状無機粒子の粒子サイズ分布の相対的な狭さは、幅係数ｄＢに関して測定されてもよく、ここで、幅係数ｄＢは、以下のように式６により定義される：

ｄＢ＝（Ｄ９０－Ｄ１０）／Ｄ５０　式６

例えば、実施形態による粒子サイズ分布の幅係数ｄＢは、いくつかの特に狭い実施形態において、ｄＢ≦２．００、またはさらにｄＢ≦１．００、またはさらにｄＢ≦０．９０、またはさらにｄＢ≦０．８０により定義できる。

【００８６】

認識されるように、予備反応させた球状無機粒子は、上述の細孔サイズ分布パラメータを満たすために設計および／または加工できる粒子サイズ分布を有する。本明細書において記載された粒子サイズは、Ｍｉｃｒｏｔｒａｃ　Ｓ３５００レーザ回折計により測定される。

【００８７】

いくつかの実施形態において、比較的粗い予備反応させた球状無機粒子の狭さは、その中の予備反応させた粒子の細粒分の一部を除去するよう適合させた特定の加工により向上させることができる。例えば、粒子サイズ分布から一部の粗粒分および／または細粒分を除去するために、篩分け、サイクロン分離、空気分級、沈降もしくは沈殿による分離、または同種のものなどの加工が使用されてもよい。例えば、約２７０メッシュの篩（約５３μｍのメッシュ孔を有する）に粉末を通し、したがって、５３μｍより小さいサイズを有する粒子を除去することにより、約６０μｍより大きいサイズを有する粒子サイズ分布中の粗い部分を除去できる。粒子サイズ分布の大端部から他の粒分を除去するために、他の篩サイズを使用できる。より細かいメッシュの篩を構成し、このメッシュを通過する粒子を処分することにより、細粒分を除去することもできる。

【００８８】

細粒

その上、バッチ組成物は、小さな割合の微細無機粒子（「細粒」）を含む。特に、バッチ組成物は、２０質量％　ＳＡＰ未満の微細無機粒子を含む。微細無機粒子（細粒）は、バッチ組成物に添加された「細粒」の粒子分布が５μｍ未満の中央粒径を有する、比較的小さい粒子である。本明細書において用いられる「ＳＡＰ」は、バッチ組成物中に含まれる予備反応させた球状無機粒子の総質量に基づく上乗せ添加によることを意味する。他の実施形態において、バッチ組成物は、いくつかの実施形態において、微細無機粒子であっ

て、該細粒の分布が５μｍ未満の中央粒径を有する微細無機粒子を１５質量％　ＳＡＰ未満含み、細粒の分布が５μｍ未満の中央径を有する微細無機粒子を１０質量％　ＳＡＰ未満を含み、またはさらに細粒の分布が５μｍ未満の中央径を有する微細無機粒子を７．５質量％　ＳＡＰ未満を含む。

【００８９】

いくつかの実施形態において、バッチ組成物中の「細粒」は、微細アルミナおよび微細シリカの組合せから実質的になる。さらに別の実施形態において、バッチ組成物に添加された微細アルミナ粒子および微細シリカ粒子の両方各々は、２μｍ未満の中央粒径を有する分布を有する。いくつかの実施形態において、バッチ組成物は、微細アルミナおよびコロイド状シリカの組合せを含み、ここで、各々は、１μｍ未満の中央粒径を有する粒子分布を有する。

【００９０】

いくつかの実施形態において、バッチ組成物中の微細無機粒子（「細粒」）は、各々が、５μｍ未満の中央径を有するアルミナ粒子、タルク粒子、シリカ粒子、およびセリア粒子の組合せを含んでもよい。

【００９１】

いくつかの実施形態において、バッチ組成物は、１μｍ未満の中央粒径を有する粒子分布を有する微細チタニアを含んでもよい。他の実施形態において、バッチ組成物中の微細無機粒子は、各々が、５μｍ未満の中央径を有するアルミナ粒子、タルク粒子、シリカ粒子、およびチタニア粒子の組合せを含んでもよい。チタニア粒子の添加は、様々なレベルのＴｉを加えることによってバッチ組成物のレオロジー挙動の調整を可能にするモジュレータとして使用できる。

【００９２】

バッチ組成物中の微細無機物は、予備反応させた球状無機粒子を互いに結合する無機バインダとして機能する。微細無機酸化物粉末は、質量当たりの表面積が大きく、その比較的大きい表面積のために、バッチＬＶ（例えば、水）と強く相互作用する。大部分の酸化物は親水性であり、したがって、多くの水を「結合」する傾向があり、それによって、バッチ水および無機粒子の移動度を低下させる。したがって、その結果、バッチ組成物を増粘させ、バッチにおける摩擦を増加させる。内部のバッチ摩擦が大きいほど、押出ダイを通るバッチ組成物の摩擦が大きいことを意味する。押出ダイにバッチ組成物を押し通す圧力が高いほど、低い押出速度に寄与する。したがって、本発明者らは、予備反応させた粒子および高水分の使用と組み合わせた少量の細粒が、高い押出速度を実現するために望ましいことを見出した。

【００９３】

さらに別の実施形態において、バッチ組成物は、微細無機粒子であって、該微細無機粒子の分布が５μｍ未満の中央粒径を有する微細無機粒子を、３質量％超でかつ１５質量％含む。他の実施形態において、バッチ組成物は、微細無機粒子であって、該微細無機粒子の分布が５μｍ未満の中央粒径を有する微細無機粒子を、３質量％超でかつ１０質量％未満含む。いくつかの実施形態において、バッチ組成物は、微細無機粒子であって、該微細無機粒子の分布が５μｍ未満の中央粒径を有する微細無機粒子を、３質量％超でかつ７．５質量％未満含む。他の実施形態において、バッチ組成物は、微細無機粒子であって、該微細無機粒子の分布が５μｍ未満の中央粒径を有する微細無機粒子を、５質量％超でかつ７質量％未満含む。

【００９４】

いくつかの実施形態において、バッチ組成物中の細粒は、約１質量％～５質量％のアルミナ粒子、１質量％～７質量％のタルク粒子、および０．５質量％～３質量％のシリカ粒子を含む。いくつかの実施形態において、微細無機粒子は、約１μｍ未満、またはさらに０．７μｍ未満の中央粒径を有する粒子分布を有する非常に微細なアルミナ粒子を含んでもよい。いくつかの実施形態において、微細無機粒子は、約５μｍ未満の中央粒径を有する粒子分布を有する微細タルク粒子を含んでもよい。いくつかの実施形態において、微細

無機粒子は、約０．５μｍ未満、またはさらに０．１μｍ未満の平均径を有する粒子分布を有する微細シリカ粒子を含んでもよい。微細シリカ粒子はコロイド状シリカであってもよく、水中の懸濁液（例えば、水中で４０％の懸濁液）として提供されてもよい。

【００９５】

アルミナ、タルクおよびシリカが無機バインダとして組み合わせて使用されるとき、焼成時にコーディエライトおよび予備反応させた球状無機粒子間の領域内のいくらかのガラス相を生成するための組成物が目標とされる。ガラス形成を促進するために、０．５％　ＳＡＰ未満、０．３％　ＳＡＰ未満、またはさらに少量を含む１％　ＳＡＰ以下のレベルのセリア、イットリア、カルシア、他のアルカリ土類、希土類、またはアルカリなどの低レベルのガラス形成剤を添加できる。

【００９６】

アルミナおよびタルクだけが無機バインダとして組み合わせて使用されるとき、焼成時にムライト、コーディエライト、および予備反応させた球状無機粒子間の領域内のガラス相を生成するための組成物が目標とされる。

【００９７】

アルミナ、タルク、シリカ、およびチタニアが無機バインダとして組み合わせて使用されるとき、焼成時にコーディエライト、チタン酸アルミニウム、および予備反応させた球状無機粒子間の領域内のいくらかのガラス相を生成するための組成物が目標とされる。しかし、本発明者らによって発見されたように、バッチ組成物中の少量のチタニアでさえ、非常に粘性のあるスリップ層を生成し、タウＹ／ベータ比を従来のバッチのタウＹ／ベータ比付近まで劇的に低下させることができる。したがって、高い押出速度のための設計として、バッチ組成物はチタニアを実質的に含まなくてもよい。しかし、上述したように、バッチ組成物のレオロジーを制御するためのレバーとして、より小さいものが少量使用されてもよい。

【００９８】

いくつかの実施形態において、バッチ組成物は、バッチ組成物中の予備反応させた球状無機粒子の総質量に対するバッチ組成物中の微細無機粒子の総質量の比（ＲＦＰ）を有し、ここで、ＲＦＴ（予備反応させたものに対する細粒の比として定義される）は、以下の式７により定義される：

ＲＦＴ＝細粒の質量／ＰＩＳＰの質量　式７

実施形態において、比ＲＦＰは、３：９７～２０：８０であってもよい。

【００９９】

アスペクト比

いくつかの実施形態において、バッチ組成物の粒子サイズ分布中の予備反応させた球状無機粒子は、平均して、球形またはほぼ球形の形状を有してもよく、図２に示されているように、ＡＲ≦１．２のアスペクト比（ＡＲ）を有してもよく、ここで、ＡＲは、バッチ組成物中の全ての予備反応させた球状無機粒子に亘る平均アスペクト比であり、予備反応させた球状無機粒子各々のＡＲは、最大寸法を有する第１の幅（Ｗ１）に亘り測定され、予備反応させた球状無機粒子２０３に亘る最小寸法を有する第２の幅（Ｗ２）で割ったものである。このＡＲ≦１．２を実現するために、予備反応させた球状無機粒子２０３は、例えば、国際公開第２０１６／１３８１９２号に詳しく記載されているように、噴霧乾燥プロセスにより形成されてもよい。いくつかの実施形態において、予備反応させた球状無機粒子２０３は、球状形状を維持するために、適切な温度で回転か焼される。

【０１００】

特定の予備反応させた球状無機粒子２０３の例が、以下の表１に示されている。図３Ａおよび図３Ｂは、噴霧乾燥されかつ予備反応させた球状無機粒子の代表的な粒子サイズ分布のプロットされた例を示している

【０１０１】

【表１】

表１－例示の予備反応させた粒子サイズ分布

バッチ番号	ＳＰＤ／予備反応させた組成物	D_{50} (μm)	D_{90} (μm)	D_{10} (μm)	D_{95} (μm)	D_5 (μm)	dB
1	CMAT	28	64	10	88	8	1.90
2	CMAT	28	64	10	88	8	1.90
3	CMAT	28	64	10	88	8	1.90
4	CMAT	28	64	10	88	8	1.90
5	CMAT	28	64	10	88	8	1.90
6	CMAT	28	64	10	88	8	1.90
7	CMAT	28	64	10	88	8	1.90
8	CMAT	28	64	10	88	8	1.90
9	CMAT	28	64	10	88	8	1.90
10	CMAT	28	64	10	88	8	1.90
11	CMAT	40	59	29	67	19	0.75
12	CMAT	28	64	10	88	8	1.90
13	CMAT	28	64	10	88	8	1.90
14	CMAT	28	64	10	88	8	1.90
15	CMAT	40	59	29	67	19	0.75

【０１０２】

比較的粗い、予備反応させた球状無機粒子の３つの代表的な粒子サイズ分布の例を図３Ａに示す。バッチ組成物の例において使用された比較的粗い、予備反応させた球状無機粒子に関して、D_{50}、D_{90}、D_{10}、D_{95}、D_5およびｄＢなどのさらに別のデータが上述の表１に示されている。特に、図３Ａは、約２０μｍ～約３０μｍの中央粒径D_{50}を有する比較的狭い予備反応させた粒子サイズ分布を示しており、図３Ｂは、約４２μｍのD_{50}を有する比較的より粗い分布を有する予備反応させた粒子サイズ分布の例を示している。D_{50}の他の値は、上述したように、グリーン無機粒子球状体の形成中に噴霧乾燥により調整されることにより得ることができる。加えて、または任意選択で、所望の中央粒径D_{50}を２０μｍ≧D_{50}≧５０μｍに調整するために、篩分けまたは他の形成後の加工が使用されてもよい。上述の例において、予備反応させた球状無機粒子の相組成物は、コーディエライト、ムライト、およびチタン酸アルミニウム（ＣＭＡＴ）を含み、主相として、二チタン酸マグネシウムを含むチタン酸アルミニウムの固溶体、コーディエライトの第２の相、いくらかのムライトを含み、場合によってガラス相も含む。しかし、明らかになるように、予備反応させた球状無機粒子の他の相組成物が製造されてもよい。

【０１０３】

ＬＶ％

別の態様によれば、バッチ組成物中の液体ビヒクルパーセント（ＬＶ％）は、従来のバッチにおいて使用される量を大幅に上回るが、非常に適切に高いバッチ剛性が保持される。液体ビヒクルＬＶは、有機バインダが溶解する媒体を提供し、したがって、バッチ組成物に可塑性を与え、その中で無機微粒子の濡れを実現する。ＬＶは、水性ベースの液体であっても差し支えなく、これは、通常、水または水混和性溶剤である。１つの実施において、ＬＶは脱イオン水であるが、アルコールなどの他の溶剤も使用できる。バッチ組成物の液体ビヒクルパーセントＬＶ％は、バッチ組成物中に存在する無機粒子の総質量（例え

ば、予備反応させた球状無機粒子に「細粒」を加えたもの）に基づいて、質量で、いくつかの実施形態においてＬＶ％≧２８％であり、またはさらにＬＶ％≧３０％、ＬＶ％≧３５％、またはさらにＬＶ％≧４０％、またはさらにＬＶ％≧４５％上乗せ添加（ＳＡＴ）である。いくつかの実施形態において、ＬＶ％は、質量で２８％≦ＬＶ％≦５０％上乗せ添加（ＳＡＴ）を含んでもよい。注目すべきことに、本明細書の発明者らによって発見されたように、そのような極めて高い液体ビヒクルパーセント（ＬＶ％≧２８％）さえも有する、本明細書において開示されたバッチ組成物から形成された湿ったグリーンハニカム体４４６Ｗ（図４Ａ）は、低いベータから分かるように、非常に低い壁抵抗を有するが、注目すべきことに、比較的高いタウＹから分かるように、優れた形状制御が保持されるような非常に高いバッチ剛性も有する。特に、タウＹ／ベータの高い比も、このバッチ組成物により実現される。

【０１０４】

細孔形成剤

いくつかの実施形態において、１種類以上の細孔形成剤がバッチ組成物に含まれてもよい。細孔形成剤は、バッチ組成物に含まれる微粒子有機材料であり、焼成中に燃え尽き、焼成されたセラミック物品内（例えば、多孔質セラミックハニカム体内）に、相互接続された開孔を生成する。特に、細孔形成剤は、単一の細孔形成剤材料または細孔形成剤材料の組合せを含んでもよい。

【０１０５】

いくつかの実施形態において、１種類以上の細孔形成剤は、デンプン、グラファイト、またはポリマー（例えば、ポリマービーズ）を含んでもよい。１つの特に効果的な実施形態において、１種類以上の細孔形成剤は、エンドウデンプンなどのデンプンを含む。有機細孔形成剤としてデンプンのみを含む実施形態において、約５質量％　ＳＡＴ～３０質量％ＳＡＴの量のデンプンが提供されてもよい。バッチ組成物中で細孔形成剤として使用されてもよい他の適切なデンプンには、ジャガイモデンプン、コーンスターチ、サゴデンプン、および豆デンプンが含まれる。デンプンは、例えば、標準的なデンプン、架橋されたデンプン、または高度に架橋されたデンプンであっても差し支えない。

【０１０６】

他の実施形態において、バッチ組成物は、細孔形成剤としてのデンプンおよびグラファイトの組合せなどの細孔形成剤の組合せを含む。例えば、いくつかの実施形態において、バッチ組成物は、バッチ組成物中の全ての無機粒子（予備反応させた球状無機粒子および「細粒」）に対するＳＡＴによる５質量％～３０質量％の量の細孔形成剤としてのエンドウデンプン、およびバッチ組成物中の全ての無機粒子に対するＳＡＴによる１質量％～１５質量％の量の細孔形成剤としてのグラファイトの組合せを含む。細孔形成剤としてのエンドウデンプンは、以下の表３に挙げる非常に高度に架橋された（ｖｈｘｌ）エンドウデンプンであってもよい。例えば、ｖｈｘｌエンドウデンプンの中央粒子サイズは約d_{50}＝２６μｍであってもよい。表３に挙げるグラファイトは、板状のグラファイトであってもよく、直径約１００μｍおよび高さ約１０μｍの中央粒子サイズを有する板を有してもよく、非常に広い粒子サイズ分布を有する。

【０１０７】

他の例の実施形態において、バッチ組成物は、球形ポリマー細孔形成剤を含む。球形ポリマー細孔形成剤は、例えば、１５μｍ～４０μｍの中央粒径を有してもよい。

【０１０８】

有機バインダ

バッチ組成物は有機バインダを含んでもよい。有機バインダは、例えば、疎水性改質セルロースエーテルバインダであってもよい。いくつかの実施形態において、疎水性改質セルロースエーテルバインダは、以下に限られないが、メチルセルロース、エチルヒドロキシエチルセルロース、ヒドロキシブチルメチルセルロース、ヒドロキシメチルセルロース、ヒドロキシプロピルメチルセルロース、ヒドロキシエチルメチルセルロース、ヒドロキシブチルセルロース、ヒドロキシエチルセルロース、ヒドロキシプロピルセルロース、カ

ルボキシメチルセルロースナトリウム、それらの混合物などであってもよい。メチルセルロース誘導体および／またはメチルセルロース誘導体は、メチルセルロースおよびヒドロキシプロピルメチルセルロースが使用されているバッチ組成物に有機バインダとして使用するのに特に適している。セルロースエーテルの供給源は、ＤＯＷ（登録商標）　Ｃｈｅｍｉｃａｌ　Ｃｏ．から入手できるＭＥＴＨＯＣＥＬ（商標）セルロース製品である。

【０１０９】

バッチ組成物のいくつかの実施形態は、メチルセルロースおよびヒドロキシプロピルメチルセルロースの組合せを含んでもよい。セルロースエーテルバインダの他の組合せは、異なる分子量を有するセルロースエーテルを含んでもよい。あるいは、セルロースエーテルの組合せは、異なる疎水基、異なる濃度の同じ疎水基、または他のセルロースエーテル組合せを有するセルロースエーテルを含んでもよい。異なる疎水基は、非限定的な例として、ヒドロキシエチルまたはヒドロキシプロピルであってもよい。

【０１１０】

有機バインダは、約４．０質量％　ＳＡＴ～８．０質量％　ＳＡＴの量でバッチ組成物中に提供されてもよい。有機バインダは、いくつかの実施形態において、メチルセルロースバインダが、約３．０質量％　ＳＡＴ～６．０質量％　ＳＡＴであり、ヒドロキシメチルセルロースバインダが、約１．５質量％　ＳＡＴ～３．０質量％　ＳＡＴである、メチルセルロースバインダおよびヒドロキシメチルセルロースバインダの組合せであってもよい。いくつかの実施形態は、例えば、約４．０質量％　ＳＡＴ～８．０質量％　ＳＡＴの量の有機バインダとしてのヒドロキシメチルセルロースバインダのみを含んでもよい。いくつかの実施形態において、有機バインダに対する液体ビヒクルの比は≧６．４％であっても差し支えない。

【０１１１】

滑剤／界面活性剤

バッチ組成物は、油滑剤などの滑剤をさらに含んでもよい。油滑剤の非限定的な例には、トール油、軽質鉱油、トウモロコシ油、高分子量ポリブテン、ポリオールエステル、軽質鉱油およびワックスエマルションのブレンド、トウモロコシ油中のパラフィンワックスのブレンド、これらの組合せなどが含まれる。滑剤の量は、約０．５質量％　ＳＡＴ～約５質量％　ＳＡＴであってもよい。例示の実施形態において、油滑剤は、バッチ組成物中に約０．５質量％　ＳＡＴ～約２．５質量％　ＳＡＴ存在するトール油であってもよい。

【０１１２】

さらに、バッチ組成物は、界面活性剤を任意選択で含んでもよい。バッチ組成物中で使用できる界面活性剤の非限定的な例は、C_8～C_{22}の脂肪酸および／またはその誘導体である。これらの脂肪酸と共に使用できる追加の界面活性剤成分は、C_8～C_{22}の脂肪エステル、C_8～C_{22}の脂肪アルコール、およびこれらの組合せである。例示の界面活性剤は、ステアリン酸、ラウリン酸、ミリスチン酸、オレイン酸、リノール酸、パルミトレイン酸、およびそれらの誘導体、ラウリル硫酸アンモニウムと組み合わせたステアリン酸、ならびにこれらの全ての組合せである。界面活性剤の量は典型的には、バッチ組成物中、約０．２５質量％　ＳＡＴ～約２質量％　ＳＡＴであってもよい。

【０１１３】

予備反応させた粒子組成物

予備反応させた球状無機粒子は、バッチ組成物に提供される前に所望のセラミック結晶相組成物を含むために、（例えば、焼成またはか焼されることにより）少なくとも部分的に反応させた（例えば、噴霧乾燥により形成された）球状無機粒子として本明細書において定義される。予備反応させた球状無機粒子は、焼成時に反応して酸化物セラミックまたは非酸化物セラミックを生成する構成材料の混合物から形成されてもよい。いくつかの実施形態において、複数種類の結晶相組成物が、か焼または焼成された粒子内に存在してもよい。本明細書において記載された低いアスペクト比ＡＲを有する所望の球状幾何学的形状を生み出すために、予備反応させた有機球状粒子が形成される。

【０１１４】

グリーン無機粒子の噴霧乾燥およびか焼に適したプロセスは、“Ｃｅｒａｍｉｃ Ｃｏｍｐｏｓｉｔｅ Ｂｅａｄｓ Ａｎｄ Ｍｅｔｈｏｄｓ Ｆｏｒ Ｍａｋｉｎｇ Ｔｈｅ Ｓａｍｅ”と題する国際公開第２０１６／１３８１９２号および“Ｐｏｒｏｕｓ Ｃｅｒａｍｉｃ Ａｒｔｉｃｌｅ Ａｎｄ Ｍｅｔｈｏｄ Ｏｆ Ｍａｎｕｆａｃｔｕｒｉｎｇ Ｔｈｅ Ｓａｍｅ”と題する国際公開第２０１４／１８９８１７号に開示されている。例えば、国際公開第２０１４／１８９，７４０号および国際公開第２０１４／１８９，７４１号に記載された噴霧乾燥プロセスなど、予備反応させた有機粒子の製造に適した他の噴霧乾燥プロセスが使用されてもよい。明らかになるように、グリーン球状粒子は、噴霧乾燥プロセスにより製造され、次いで、予備反応させた球状無機粒子を形成するためにか焼または焼成されてもよい。

【０１１５】

一例として、制限されることなく、予備反応させた球状無機粒子は、１種類以上の相組成物を含んでもよい。多くの実施形態において、一次相および二次相または副相など、少なくとも二相組成物が提供される。任意選択で、予備反応させた粒子は、１種類を超える二次相または副相を含んでもよい。

【０１１６】

いくつかの実施形態において、バッチ組成物中の予備反応させた球状無機粒子は、チタン酸アルミニウムの主相（例えば、＞５０体積％）を含んでもよい。他の副相が存在してもよい。

【０１１７】

実施形態において、バッチ組成物中の予備反応させた球状無機粒子は、任意の特定の結晶相組成物を含むように形成されてもよい。特に、バッチ組成物は、いくつかの実施形態において、多相結晶相組成物を含んでもよい。例えば、いくつかの実施形態は、チタン酸アルミニウムの主結晶相および副ガラス相を有する予備反応させた球状無機粒子を含んでもよい。

【０１１８】

例えば、１種類以上のバッチ組成物において、予備反応させた球状無機粒子は、主結晶相がチタン酸アルミニウムであり、第２の結晶相がムライトである予備反応させたチタン酸アルミニウム－ムライト球状無機粒子（以下、ＭＡＴ）を含んでもよい。他の副相が存在してもよい。

【０１１９】

湿ったグリーン体および多孔質セラミック体を生成するために、予備反応させたチタン酸アルミニウム－ムライト球状無機粒子を含むバッチ組成物が使用されてもよい。例えば、予備反応させたチタン酸アルミニウム－ムライト球状無機粒子を含むバッチ組成物からグリーン体ハニカムが形成されてもよく、それを焼成することによりチタン酸アルミニウム－ムライト多孔質セラミックハニカムが生成されてもよい。

【０１２０】

他の実施形態において、バッチ組成物は、予備反応させたチタン酸アルミニウム－長石球状無機粒子を含んでもよく、グリーン体および多孔質セラミック体を生成するためにバッチ組成物が使用されてもよい。予備反応させた球状無機粒子は、チタン酸アルミニウムの主結晶相および長石の第２の結晶相を含んでもよい。例えば、チタン酸アルミニウム－長石多孔質セラミック体（例えば、チタン酸アルミニウム－長石多孔質セラミックハニカム）が生成されてもよい。他の副相が存在してもよい。

【０１２１】

さらに別の実施形態において、バッチ組成物は、予備反応させたコーディエライト、ムライト、チタン酸アルミニウム（以下、ＣＭＡＴ）球状無機粒子を含んでもよく、グリーン体および多孔質セラミック体を生成するためにバッチ組成物が使用されてもよい。ＣＭＡＴは、コーディエライトを含む二次結晶相を含む、主にチタン酸アルミニウムおよび二チタン酸マグネシウムの第１の結晶相の固溶体である。ムライトの第３の結晶相。ガラス相も存在してもよい。いくつかの実施形態によれば、バッチ組成物中の予備反応させた球

状無機粒子は、酸化物基準の質量％で、４％～１０％のＭｇＯ；４０％～５５％のAl_2O_3；２５％～４４％のTiO_2、および５～２５％のSiO_2を含む。ＣＭＡＴ多孔質セラミック体（例えば、ＣＭＡＴ多孔質セラミックハニカム）がバッチ組成物から生成されてもよい。

【０１２２】

他の実施形態において、バッチ組成物は、予備反応させたコーディエライト粒子を含み、グリーン体およびコーディエライトセラミック体を生成するためにバッチ組成物が使用されてもよい。例えば、コーディエライト多孔質セラミック体（例えば、ハニカムグリーン体およびコーディエライトセラミックハニカム）が生成されてもよい。非限定的な例として、最終的に焼成時にコーディエライトを生成する予備反応させた球状無機粒子の１つの組成物は、質量パーセントで、約３３～４１％の酸化アルミニウム、約４６～５３％のシリカ、および約１１～１７％の酸化マグネシウムである。

【０１２３】

上述の予備反応させた球状無機粒子は例示である。予備反応させた球状無機粒子の組成物は、他のセラミック生成組成物および相組合せを任意選択で含んでもよい。例えば、予備反応させた球状無機粒子は、長石、ムライト、アルミナ、アルミノシリケート、チタン酸アルミニウムおよび二チタン酸マグネシウムの固溶体（擬ブルッカイト）、スピネル、ルチル、クリストバライト、ジルコン、アルカリアルミノシリケート、アルカリ土類アルミノシリケート、ペロブスカイト、ジルコニア、セリア、酸化ケイ素（SiO_2）、窒化ケイ素（Si_3N_4）、炭化ケイ素、チタン酸セリウム、サイアロン（ＳｉＡｌＯＮ）、ＣａＯ、ＳｒＯ、CeO_2、Y_2O_3、La_2O_3、他の希土類酸化物、およびゼオライトを含む組成を任意選択で有してもよい。

【０１２４】

バッチ組成物中の予備反応させた球状無機粒子および細粒の様々な組合せを含む様々な例の実施形態が以下の表２に示されている。

【０１２５】

【表２】

表２－予備反応させた球状無機粒子を含む例のバッチ組成物

予備反応させた無機物				無機物中の細粒（質量％ＳＡＰ）				全細粒
バッチ番号	組成物	%	中央粒子サイズ(μm)	微細アルミナ（質量％ＳＡＰ）	微細タルク（質量％ＳＡＰ）	Ｌｕｄｏｘは４０％SiO_2を含む（質量％ＳＡＰ）	チタニア（質量％ＳＡＰ）	（質量％ＳＡＰ）
1	CMAT	100	28	2.00	3.00	1.78	0.00	6.78
2	CMAT	100	28	2.00	3.00	1.92	0.00	6.92
3	CMAT	100	28	2.00	3.00	0.96	0.00	5.95
4	CMAT	100	28	2.00	3.00	1.92	0.00	6.91
5	CMAT	100	28	2.00	3.00	1.91	0.00	6.91
6	CMAT	100	28	2.00	3.00	1.92	0.00	6.91
7	CMAT	100	28	2.10	3.20	1.60	0.00	6.91
8	CMAT	100	28	1.59	3.17	0.66	1.06	6.48
9	CMAT	100	28	4.44	6.67	2.67	0.00	13.78
10	CMAT	100	28	1.03	1.54	0.64	0.00	3.20
11	CMAT	100	40	2.11	3.16	1.33	0.00	6.59
12	CMAT	100	28	2.00	3.00	1.92	0.00	6.92
13	CMAT	100	28	2.00	3.00	1.91	0.00	6.91
14	CMAT	100	28	2.00	3.05	0.00	0.00	5.04
15	CMAT	100	28	2.00	3.05	0.00	0.00	5.04
16	CMAT	100	28	2.00	3.05	0.00	0.00	5.04
17	CMAT	100	40	2.11	3.16	0.00	0.00	5.26

【０１２６】

バッチ組成物中の細孔形成剤、有機バインダ、滑剤、およびＬＶ％の組合せを示す様々な実施形態が以下の表３に示されており、細孔形成剤、有機バインダ、滑剤、およびＬＶ％のバッチ添加の質量％　ＳＡＴが挙げられている。

【０１２７】

【表３】

表３－例のバッチ組成物添加剤

細孔形成剤		有機バインダ		滑剤（トール油）	LV%	LOD
ｖｈｘｌエンドウデンプン（質量％ＳＡＴ）	グラファイト（質量％ＳＡＴ）	メチルセルロース（質量％ＳＡＴ）	F240（質量％ＳＡＴ）	（質量％ＳＡＴ）	（質量％ＳＡＴ）	％
8.14	4.07	4.27	2.14	1.07	35	22.5
14.25	7.13	4.28	2.14	1.07	45	30.0
14.12	7.07	4.24	2.12	2.12	44	28.9
14.25	7.13	5.35	2.67	1.07	48	32.4
14.25	7.13	3.21	1.60	1.07	44	29.4
14.25	7.13	3.21	1.60	2.14	43	28.5
8.55	4.28	4.28	2.14	1.07	40	27.7
14.91	7.45	4.26	2.13	1.06	47	30.2
15.93	7.96	4.55	2.28	1.14	44	29.6
14.45	7.22	4.13	2.06	1.03	47	29.9
14.92	7.46	4.26	2.13	1.07	44	28.9
14.25	7.13	4.28	2.14	1.07	44	29.1
14.25	7.13	3.21	1.60	1.07	44	28.3
5.04	2.00	0.00	6.30	1.05	30	該当せず
5.04	2.00	0.00	6.30	1.05	35	該当せず
5.04	2.00	0.00	6.30	1.05	37	該当せず
16.00	8.42	0.00	6.32	1.05	32	該当せず

【０１２８】

バッチレオロジー

上述したように、本明細書において記載されたバッチ組成物を使用して、明確な壁、形の良いセル構造、および明確な外形を有するグリーン体（例えば、湿ったハニカムグリーン体）が押出により形成できる。さらに、認識されるように、そのようなバッチ組成物は、いくつかの実施形態において、タウＹ／ベータの非常に高い比（例えば、タウＹ／ベータ≧２．０、タウＹ／ベータ≧３．０、タウＹ／ベータ≧４．０またはそれ以上）を有してもよく、さらに、上昇したＴｏｎｓｅｔ≧４７℃、Ｔｏｎｓｅｔ≧５０℃、またはさらにＴｏｎｓｅｔ≧５５℃を示してもよい。圧力対温度曲線は、より高い温度で圧力が上昇する前の低い温度での平坦な部分により特徴付けられる。開始温度Ｔｏｎｓｅｔは、１５度の窓に亘って定義される、一定のプラトー圧力の平均圧力の１．１５倍に圧力が達したときとして定義される。

【０１２９】

したがって、押出ダイ４４４（図４Ａ）からバッチ組成物を押し出すとき、従来のバッチ組成物と比べて著しく高い押出供給速度が可能になる。これは、グリーン体（例えば、湿ったグリーンハニカム体）の製造においてより低いコストに寄与でき、したがって、そ

れから生成された最終的な多孔質セラミックハニカム体のコストを削減することもできる。

【０１３０】

タウＹおよびベータの決定

Ｂｒａｂｅｎｄｅｒミキサー（ミキサータイプ３５９を備えた市販のＢｒａｂｅｎｄｅｒ　Ｐｌａｓｔｏｇｒａｐｈ　ＥＣ　３．８ｋＷ、２００ＮＭ／１５０ｍｉｎ）内で様々な成分を高剪断混合することにより、バッチ無機物（予備反応させた球状無機粒子、および「細粒」）、細孔形成剤粒子、有機バインダ、ＬＶ（例えば、脱イオン水）、および任意選択の滑剤の混合物から、ペーストを含む均質なセラミックバッチ組成物を調製した。いくつかの実施形態において、ペーストの粘稠度が適切となるように、ペーストの剛性を針入度計で測定した。デジタルフォースゲージを備えた市販の針入度計ＥＳＭ－３０１Ｅモータ駆動試験台を使用した。

【０１３１】

バッチ組成物のペーストの流動特性は、ピストンを装備し、複数のキャピラリー長を有する市販のデュアルボアキャピラリーレオメータ（以下、「キャピラリーレオメータ」）を使用して測定される。バッチ剛性および壁抵抗の両方をキャピラリーレオメータで同時に測定できる。キャピラリーレオメータ９００の一例が図９に示されている。

【０１３２】

使用されるキャピラリーレオメータ９００は、１６ｍｍの直径Ｄと、１ｍｍのキャピラリー径ｄを有する小さい円形のボア孔を備えた、異なる長さＬの数本のキャピラリー９０８とを有する複数の円筒形のバレル９０２を備えている。キャピラリー長Ｌは、０ｍｍ～１６ｍｍに及び、特に０ｍｍ（実際には実用性のために０．２５ｍｍ）、４ｍｍ、１０ｍｍ、および１６ｍｍであった。ピストン９０４の各々に相互接続されたクロスメンバ９０６に力Ｆを加えることによるなど、ピストン９０４に力Ｆが加わるとバレル９０２内で並進運動するようにディスク形ピストン９０４を取り付けた。上述したように混合された後、ペーストを含むバッチ組成物９１０は、キャピラリーレオメータ９００のバレル９０２に挿入され、そこから、様々なレベルの力Ｆでキャピラリー９０８内にかつそれを通じて押し出され、したがって、異なる速度Ｖが生じる。バッチ組成物９１０に接触し、それをキャピラリー９０８を通じて押し出すピストン９０４に与えられる圧力Ｐｔｏｔａｌおよび速度Ｖｐを測定することにより、キャピラリーレオメータ９００全体の代表的な圧力損失Ｐｔｏｔａｌが決定される。各ダイ（例えば、長いダイおよびゼロ長さのダイが示されている）の全圧Ｐｔｏｔａｌは、バレル９０２内に収められたバッチ組成物９１０に加わる圧力Ｐｔｏｔａｌを測定する圧力センサ９１２から決定される。

【０１３３】

キャピラリー９０８内のバッチ組成物９１０の速度Ｖは、以下の式８による、面積の代表的な比によるピストン速度Ｖｐに関係する：

$$V = Vp\left(D^2 / d^2\right) \quad \text{式８}$$

ピストン速度Ｖｐは、（ｉ）ピストン９０４またはクロスメンバ９０６と、（ｉｉ）地面またはバレル９０２を備えている押出機本体のいずれかとの間に連結された適切な変位センサ９１４により測定できる。バッチ組成物のタウＹおよびベータの値を出力として与えることができる計算を実行するように十分に構成された適切なプロセッサおよびメモリを備えている適切なコントローラ９１６に全圧Ｐｔｏｔａｌおよびピストン速度Ｖｐを提供することができる。

【０１３４】

異なる押出速度に対する異なる長さＬ（１６ｍｍ、１０ｍｍ、４ｍｍ、および０．２５ｍｍのＬ）および１ｍｍのキャピラリー径ｄの４種類のキャピラリー９０８を示す例示のキャピラリー速度掃引試験からの代表的な生データが以下の表４に示されている。ピストン９０４の押す速度（「プランジャー」）およびキャピラリーから出てくる押出速度（「ヌードル」）ならびに全圧Ｐｔｏｔａｌが各長さＬに対して提供される。

【０１３５】

【表４】

表４－様々なキャピラリー長（０．２５ｍｍ～１６ｍｍ）における
バッチ組成物押出中の全圧（Ｐｔｏｔａｌ）に対する速度（ＶおよびＶｐ）

キャピラリー長×直径		16x1	10x1	4x1	0.25x1
プランジャー	ヌードル	圧力	圧力	圧力	圧力
ｍｍ／分	インチ／秒	psi	psi	psi	psi
27.09	4.000	1050.65	887.935	668.68	532.065
20.34	3.000	1022.885	859.665	641.165	506.98
13.55	2.000	990.445	825.89	610.52	478.39
10.16	1.500	969.825	806.985	592.005	460.7
6.77	1.000	943.895	781.86	565.715	437.86
5.08	0.750	924.095	768.915	549.07	422.345
3.39	0.500	899.15	753.52	526.07	401.455
1.69	0.250	853.695	736.04	486.38	366.23
0.68	0.100	767.51	692.805	426.565	321.725
0.05	0.007	479.09	522.195	275.49	226.915

【０１３６】

０．２５ｍｍ長（または約０ｍｍ長）の長さＬを有する最短のキャピラリー９０８が押出に使用されるときは、バッチ組成物９１０は、その形状をバレル９０２の比較的大きい直径Ｄ（１６ｍｍ）からキャピラリー９０８の比較的小さい直径ｄ（１ｍｍ）まで適合させなければならない。このキャピラリー９０８（「ほぼゼロのキャピラリー」）全体の圧力損失Ｐｔｏｔａｌは、バッチ組成物が１６ｍｍのバレルから１ｍｍのキャピラリー９０８に幾何学的に収縮するのに必要な圧力によるバッチ剛性に対応する。「ほぼゼロのキャピラリー」の使用は、その長さが短い（ほぼＬ＝０）ため壁抵抗成分が最小になり、したがって実際上無視できるので、流入損失成分を示すことができ、流入損失成分の決定に使用できる。より長いキャピラリー（例えば、１６ｍｍ長のキャピラリー）の使用は、キャピラリー９０８の壁の長さＬに沿った摩擦／抵抗に起因する壁抵抗成分およびその形状の変化に起因するバッチ組成物の硬化、すなわち、流入損失成分の両方を生じる。したがって、速度Ｖの関数として測定された圧力損失Ｐｔｏｔａｌは流入損失成分Ｐｅおよび壁抵抗成分Ｐｗの両方を含むであろうし、明らかであるようにこれらは分離できる。

【０１３７】

バッチ組成物を、キャピラリー長Ｌ（０ｍｍ～１６ｍｍ）の異なる長さのキャピラリーについて、１０種類の異なる速度Ｖ（実際上０ｍｍ／秒～４インチ／秒（１０１．６ｍｍ／秒）の速度（Ｖ））および約２５℃の一定温度で、キャピラリー速度掃引試験により試験した。キャピラリー９０８を通じた押出速度Ｖ（ヌードル）を連続的により高い速度Ｖへ増加させ、各ステップについて、定常状態の速度Ｖに達したとき、センサ９１２により代表的な全圧力損失（Ｐｔｏｔａｌ）を記録した。キャピラリー９０８の各長さＬにおけるこの生のＰｔｏｔａｌおよび速度Ｖデータをコントローラ９１６に提供し、メモリに保存した。各々測定されたバッチ組成物のタウＹおよびベータを計算するために、本明細書において記載されたさらに別の計算を行う。例の値が、１つのバッチ組成物について以下の表５に示されている。

【０１３８】

【表５】

表５－Ｌ／ｄ、ヌードル速度Ｖ、Ｔｗ、Ｐｅ、Ｐｅ－平均、およびＰｅ－切片

ヌードル速度（インチ／秒）										
L/d	**4.00**	**3.00**	**2.00**	**1.50**	**1.00**	**0.75**	**0.50**	**0.26**	**0.10**	**0.007**
16	1051	1023	990	970	944	924	899	854	768	479
10	888	860	826	807	782	769	754	736	693	522
4	669	641	611	592	566	549	526	486	427	275
0.25	532	507	478	461	438	422	401	366	322	227
Tw	**8.30**	**8.26**	**8.19**	**8.15**	**8.12**	**8.07**	**8.05**	**8.00**	**7.49**	**4.67**
Pe	520	494	466	448	424	408	384	342	288	181
Pe	556	529	498	481	457	446	432	416	393	336
Pe	536	509	479	462	436	420	397	358	307	201
Pe	524	499	470	453	430	414	393	358	314	222
Ｐｅ－平均	534	508	478	461	437	422	402	369	326	235
Ｐｅ－切片	534	508	478	461	437	422	402	369	326	235

【０１３９】

図１０に示されるように、速度Ｖ（インチ／秒）に対する流入圧力Ｐｅ（ｐｓｉ）のプロットは、ゼロ長さ（０．２５インチ（約６．３５ｍｍ））のキャピラリー９０８により与えられた速度Ｖの関数としての流入圧力損失の非直線性を示している。

【０１４０】

４種類の異なるサイズのキャピラリー（０．２５ｍｍ～１６ｍｍ）および１０種類の速度によるキャピラリー速度掃引試験からの生データ出力の代表例が図１１に示されており、１つのキャピラリー長（より大きいＬ値は、より高い圧力を示す）に各々対応する複数のステップおよび複数の曲線において、予備反応させた球状無機粒子を含むバッチ組成物の試験値を示している。掃引試験は、示された例において２回繰り返される。生データは、任意の適切なソフトウェアプログラムを使用することにより、速度に対する圧力のプロットに変換できる。噴霧乾燥された予備反応させたＣＭＡＴバッチ組成物について、速度に対する圧力の例のプロットが図１２に示されている。

【０１４１】

上述したように、測定された全圧力損失Ｐｔｏｔａｌは、流入圧力Ｐｅに壁抵抗の寄与Ｐｗを加えたものに等しく、以下の関係により表すことができる：

Ｐｔｏｔａｌ＝Ｐｅ＋Ｐｗ

Ｄからｄへの幾何学的収縮に亘る、キャピラリー９０８を通じたキャピラリーレオメータ９００内のバッチ組成物９１０の圧力損失をバッチレオロジーと関連付ける多数のモデルが開発されてきた。キャピラリー特徴には、キャピラリー径ｄ、キャピラリー長Ｌ、ならびにキャピラリー材料およびキャピラリー表面粗さと関連する側面を有するが、所与の長さＬおよび直径ｄの所与のキャピラリー９０８に対して変化しない定数が含まれる。本明細書において記載された試験方法を使用して、本明細書において記載された様々なバッチ組成物のレオロジー特性を定義する特有のパラメータであるタウＹ（降伏応力）およびベータ（壁抵抗係数）を含むバッチレオロジー特徴を決定する。

【０１４２】

Ｂｅｎｂｏｗ－Ｂｒｉｄｇｗａｔｅｒモデルを使用して、キャピラリー長Ｌ、キャピラリー径ｄ、速度Ｖ、壁抵抗係数β（ベータ）、および壁速度指数ｍの関数として壁抵抗Ｐｗを表す［以下の参考文献を参照：Ｊ．Ｂｅｎｂｏｗ，Ｊ．Ｂｒｉｄｇｗａｔｅｒ，Ｐａ

ｓｔｅ ｆｌｏｗ ａｎｄ ｅｘｔｒｕｓｉｏｎ，Ｏｘｆｏｒｄ Ｕｎｉｖｅｒｓｉｔｙ Ｐｒｅｓｓ，１９９３およびＪ．Ｊ．Ｂｅｎｂｏｗ，Ｅ．Ｗ．Ｏｘｌｅｙ，Ｊ．Ｂｒｉｄｇｗａｔｅｒ “Ｔｈｅ ｅｘｔｒｕｓｉｏｎ ｍｅｃｈａｎｉｃｓ ｏｆ ｐａｓｔｅｓ － ｔｈｅ ｉｎｆｌｕｅｎｃｅ ｏｆ ｐａｓｔｅ ｆｏｒｍｕｌａｔｉｏｎ ｏｎ ｅｘｔｒｕｓｉｏｎ ｐａｒａｍｅｔｅｒｓ”；Ｃｈｅｍｉｃａｌ Ｅｎｇ．Ｓｃｉｅｎｃｅ ５３，２１５１（１９８７）］。このモデルは、以下の式９のように壁抵抗Ｐｗを特徴付ける：

Ｐｗ＝｛４Ｌ／ｄ｝［βＶ^{m}］　式９

式中：

Ｌはキャピラリー長であり

ｄはキャピラリー径であり

β（ベータ）は壁抵抗係数であり

ｍは壁速度指数であり

Ｖは、壁におけるペーストの速度である

しかし、壁における剪断応力Ｔｗは以下の式１０で示される：

Ｔｗ＝βＶ^{m}　式１０

したがって、壁抵抗圧力成分は、以下の式１１のように表すことができる：

Ｐｗ＝（４Ｌ／ｄ）Ｔｗ　式１１

剪断応力の自然対数（Ｌｎ（Ｔｗ））を速度の自然対数（Ｌｎ（Ｖ））に対してプロットする。このプロットされたデータから、Ｌｎ（Ｔｗ）とＬｎ（Ｖ）のプロットのｙ切片としてβ項を導出することができ、ｍはその線の傾きである。０インチ／秒～４インチ／秒（０ｍｍ／秒～約１０１．６ｍｍ／秒）の長さデータに亘って傾きｍを決定する。外れ値は無視し、試験を複数回実施して、各バッチ組成物の結果を平均すべきである。

【０１４３】

流入圧力Ｐｅは以下の式１２により近似できる：

Ｐｅ＝２｛タウＹ＋ｋＶ^{n}｝｛Ｌｎ（Ｄ／ｄ）｝　式１２

Ｐｔｏｔａｌ＝Ｐｅ＋Ｐｗであることを考えると、このモデルにより、全圧Ｐは以下の式１３に示されるように定義される：

Ｐｔｏｔａｌ＝２｛タウＹ＋ｋＶ^{n}｝｛Ｌｎ（Ｄ／ｄ）｝＋｛４Ｌ／ｄ｝［βＶ^{m}］　式１３

式中：

タウＹは、バッチ組成物の降伏応力であり

ｋは粘稠度指数であり

ｎはバルク速度指数であり

Ｄは押出機バレル径であり

ｄはキャピラリー径であり

Ｌはキャピラリー長であり

β（ベータ）は壁抵抗係数であり

ｍは壁速度指数であり

Ｖは、壁におけるペーストの速度である

測定されたパラメータと計算されたパラメータとの差を最小にするために、ＭＳ　Ｅｘｃｅｌに備えられたソルバーまたは他の任意の反復ソルバーなどのソルバーを使用することにより、３パラメータカーブフィットにより、測定されたデータからタウＹ、ｋ、およびｎの値を導出できる。タウＹおよびβ（ベータ）の値は、本明細書において記載されたバッチ組成物の押出レオロジー特性を特徴付けるために本明細書において用いられるパラメータであり、上述したように計算される。この測定された生データから、コントローラ９１６は、タウＹおよびベータの両方を計算する。

【０１４４】

さらに詳細には、図７は、予備反応させた球状無機粒子を含むバッチ組成物の様々な実施形態において使用されたＬＶ％（液体ビヒクル分の質量％　ＳＡＴ）と、従来のバッチ

組成物のＬＶ％との比較を示すプロットを示している。認められるように、多くの場合、はるかに高いＬＶ％にも関わらず、同等のバッチ剛性タウＹを実現できる。例えば、２倍またはそれ以上ものＬＶ％で良好なバッチ剛性も実現しながら、同等のタウＹを実現できる。

【０１４５】

図８は、実施形態による予備反応させた球状無機粒子を含むバッチ組成物の様々な実施形態のＬＶ％（質量％　ＳＡＴでの水分）対バッチ摩擦（ベータ（β））と比較した、従来のバッチ組成物のＬＶ％対バッチ摩擦（ベータ（β））のプロットを示している。図８のプロットにより示されるように、予備反応させた球状無機粒子、少量の「細粒」、およびＬＶ％≧２８％を含むバッチ組成物を使用するとき、はるかに低いベータが実現される。図８および以下の表６から分かるように、本明細書において記載されたバッチ組成物の実施形態にしたがって、ベータ≦１０、ベータ≦７、ベータ≦６、ベータ≦５、ベータ≦４、およびさらにベータ≦３などの比較的低いベータ（摩擦係数）をバッチ組成物により実現できる。

【０１４６】

図１３は、従来のバッチ組成物ならびに実施形態による予備反応させた球状無機粒子を含むバッチ組成物の様々な実施形態について、ＬＶ％（質量％　ＳＡＴでの水分）対タウＹをベータ（β）で割った比のプロットを示している。図１３のプロットおよび以下の表６により示されるように、タウＹ／βの比は、従来のバッチ組成物よりも、本明細書において記載されたバッチ組成物において大幅に高い。

【０１４７】

例えば、図１３および以下の表６に示されるいくつかの実施形態は、タウＹ／ベータ≧２．０、タウＹ／ベータ≧３．０、タウＹ／ベータ≧４．０、タウＹ／ベータ≧５．０、タウＹ／ベータ≧６．０、タウＹ／ベータ≧７．０、タウＹ／ベータ≧８．０、またはさらにタウＹ／ベータ≧１０．０であってもよいタウＹ／ベータの比を有してもよい。いくつかの実施形態において、タウＹ／ベータの比は２．０≧タウＹ／ベータ≧１０．０であってもよい。認識されるように、押出速度と相関するタウＹ／ベータの値は、従来のバッチより大幅に高く、約０．８５～１．５０の範囲になり得る。したがって、タウＹ／ベータの値を示すバッチ組成物は、比較的高い押出速度を実現できる。

【０１４８】

以下の表６は、バッチ組成物の様々な実施形態について、ＬＶ％（ＳＡＴ）、有機バインダに対する液体の比を示しており、さらに、タウＹ、ベータ、およびタウＹ／ベータのレオロジー測定値を示している。

【０１４９】

【表６】

表６－例のＣＭＡＴバッチ組成物のレオロジー測定値

例Ｎｏ.	バッチ例	LV% (SAT)	バインダに対する液体の比	タウＹ	ベータ	タウＹ／ベータ
1	CMAT	35%	該当せず	55.36	6.70	8.27
2	CMAT	45%	7.50	21.64	5.39	4.02
3	CMAT	44%	7.33	22.38	5.06	4.42
4	CMAT	48%	6.40	9.02	4.06	2.22
5	CMAT	44%	9.78	27.21	4.79	5.68
6	CMAT	43%	9.56	30.51	5.00	6.10
7	CMAT	40%	6.67	12.18	4.17	2.92
8	CMAT	47%	7.83	14.44	13.74	1.05
9	CMAT	44%	7.33	12.63	4.10	3.08
10	CMAT	47%	7.83	19.93	3.11	6.42
11	CMAT	44%	7.33	9.46	3.87	2.45
12	CMAT	44%	7.33	10.60	4.21	2.52
13	CMAT	44%	9.78	20.29	4.05	5.01
14	CMAT	30%	5.25	55.39	5.52	10.03
15	CMAT	35%	6.13	28.94	4.26	6.79
16	CMAT	37%	6.50	22.76	3.46	6.59
17	CMAT	32%	14.59	該当せず	7.31	2.00
18	CMAT	43%	7.00	16.76	4.76	3.52
19	CMAT	44%	該当せず	25.24	3.83	6.59
20	CMAT	44%	該当せず	27.24	5.21	5.23
21	CMAT	40%	該当せず	28.94	2.66	10.88
22	CMAT	43%	該当せず	26.07	5.88	4.43
23	CMAT	44%	該当せず	33.01	4.85	6.81
24	CMAT	44%	該当せず	29.81	4.54	6.56

【０１５０】

加工

別の態様において、図５に大まかに、図６により細かく示されているように、本開示は、ハニカム体を製造する方法５００、６００を提供する。方法５００、６００は、押出ダイ４４４（図４Ａ）を通じて成形されるとき、従来の反応性バッチ成分を含むバッチ組成物と比べて高い押出速度を有することができる。製造する方法５００、６００は、５０２、６０２において、予備反応させた球状無機粒子と、少量の「細粒」と、高いＬＶ％（例えば、≧２８％）とを含むバッチ組成物を提供するステップを含む。図６において、バッチ組成物は、詳細には６０２において、

$２０\mu m \leqq D_{50} \leqq ５０\mu m$、

$D_{90} \leqq １００\mu m$、および

$D_{10} \geqq 5\ \mu m$
により定義される狭い粒子サイズ分布を有する予備反応させた球状無機粒子と、２０質量％　ＳＡＰ未満の量の微細無機粒子（「細粒」）であって、５μｍ未満の中央径を有する「細粒」と、バッチ組成物中の全ての無機粒子に対する上乗せ添加による２８質量％以上のＬＶ％とを含む。バッチ組成物は、本明細書において記載されているように、添加された有機バインダ、滑剤、界面活性剤、および／または任意選択の（１種類以上の）細孔形成剤をさらに含んでもよい。

【０１５１】

方法５００、６００は、５０４、６０４において、バッチ組成物を混合するステップをさらに含む。６０４における混合するステップは、バッチ組成物を少なくとも部分的に可塑化させるために、乾いた成分（予備反応させた球状無機粒子、微細無機粒子、および有機バインダ）へのＬＶおよび滑剤の添加を含んでもよく、すなわち、ペースト粘稠度を与えた。

【０１５２】

方法５００は、５０６において、バッチ組成物を湿ったグリーンハニカム体へと成形するステップをさらに含む。６０６において、成形するステップは押出によるものでもよく、バッチ組成物の性質にはタウＹ／ベータ≧２．０が含まれ、それによって、押出ダイ４４４を通じた大幅に高い押出速度を実現する。形状制御は保持される。

【０１５３】

方法５００によれば、予備反応させた無機粒子および有機粒子の総量に対するＬＶ≧２８％　ＳＡＴのＬＶ％でＬＶ（例えば、脱イオン水）が添加されてもよい。他の実施形態において、バッチ組成物中に存在する無機粒子の総質量（予備反応させた球状無機粒子に「細粒」を加えたもの）に基づいて、質量で、ＬＶ≧３０％、ＬＶ％≧３５％、ＬＶ％≧４０％、またはさらにＬＶ％≧４５％上乗せ添加（ＳＡＴ）が添加されてもよい。いくつかの実施形態において、ＬＶ％は、２８％≦ＬＶ％≦５０％であるようなＬＶ％である。

【０１５４】

押出方法５００は、約４．０質量％　ＳＡＴ～８．０質量％　ＳＡＴの量などの有機バインダの添加を含んでもよい。有機バインダは、いくつかの実施形態において、メチルセルロースバインダが、約３．０質量％　ＳＡＴ～６．０質量％　ＳＡＴであり、ヒドロキシメチルセルロースバインダが、約１．５質量％　ＳＡＴ～３．０質量％　ＳＡＴである、メチルセルロースバインダおよびヒドロキシメチルセルロースバインダの組合せであってもよい。いくつかの実施形態は、例えば、約４．０質量％　ＳＡＴ～８．０質量％　ＳＡＴの量のヒドロキシメチルセルロースバインダのみを含んでもよい。

【０１５５】

可塑化を開始するために、５０４、６０４において、マラー、オーガーミキサー、ダブルアームミキサー、またはプローブレードミキサーまたは同種のものによるような任意の適切な混合装置または混合装置の組合せにより、無機粒子、有機バインダ、任意選択の細孔形成剤、ＬＶ、および滑剤が混合されてもよい。有機バインダおよび無機粒子を水和するためにＬＶが添加されてもよく、有機バインダおよび無機粒子をウェットアウトし、部分的に可塑化されたバッチ組成物を生成するために滑剤および／または界面活性剤がバッチ組成物に添加されてもよい。５０６において、バッチ組成物が、任意の適切な成形プロセスにより可塑化バッチ組成物４０４から湿ったグリーンハニカム体４４６Ｗへと適切に成形されてもよい。例えば、湿ったグリーンハニカム体４４６Ｗが、一軸または静水圧プレス、射出成形、押出または同種のものなどの成形技法により製作されてもよい。

【０１５６】

バッチ組成物が、いくつかの実施形態において、材料の部分的に可塑化されたパッグ４０２として生成されてもよく、これが、図４Ａに示されたような押出機４００に供給されてもよい。他の実施形態において、バッチ組成物が、部分的に可塑化されたバッチ組成物の小さいパッグまたはさらに顆粒または流れなど、より少量の材料の連続的または半連続的な流れで押出機４００に加えられてもよい。図４Ａに示されたように、および図５を参

照して説明されたように、５０６、６０６において、部分的に可塑化されたバッチ組成物４０４が、湿ったグリーンハニカム体４４６Ｗへと成形されてもよい。

【０１５７】

再び図４Ａおよび図５を参照すると、１つ以上のパッグ４０２の形態のバッチ組成物４０４を押出機４００に提供し、それから押し出して、バッチ組成物を湿ったグリーンハニカム体４４６Ｗに形成および成形することができる。押出は、適切な量の剪断をバッチ組成物４０４に与える任意の適切なタイプの押出機４００により実施できる。例えば、液圧ラム押出機、二段脱気シングルオーガー、一軸スクリュー押出機、または二軸スクリュー押出機などが使用されてもよい。１本または複数本のスクリューを備えている押出機４００を使用した、湿ったグリーンハニカム体４４６Ｗの形成および成形の一例が図４Ａに示されている。

【０１５８】

さらに詳細には、押出機４００は、押出機バレル４２０内で回転可能な１本または複数本の押出機スクリュー４１８を備えているスクリュー部を備えていてもよい。１本または複数本の押出機スクリュー４１８は、押出機バレル４２０の入口端部にあるモータ４２２により駆動できる。二軸スクリューの実施形態において、押出機４００は、押出機スクリュー４１８のうちの２本を備えていてもよい。押出機バレル４２０には、さらに可塑化されるバッチ組成物４０４を押出機４００に導入するための入口ポート４２４が備えられていてもよい。ミキサープレート４２６がスクリュー部の下流に配置されていてもよく、押出機バレル４２０の出口端部に取り付けられたカートリッジ４２８内に収められていてもよい。スクリュー部の後、ミキサープレート４２６により、バッチ組成物４０４はさらに混合され、均質化され、可塑化される。

【０１５９】

カートリッジ４２８内に同じく配置されるのはフィルタスクリーン４１０およびフィルタサポート４３０であり、いずれも、押出機スクリュー４１８により送られるバッチ組成物４０４の（方向を示す矢印として示された）流れ方向に対してミキサープレート４２６の上流に配置される。フィルタスクリーン４１０は、フィルタサポート４３０に対して取り付けられ、押出ダイ４４４を塞ぐ恐れのある大きい粒子、集塊、または破片を除去するように構成されたフィルタアセンブリを形成する。好ましくは、複数の開口および／またはスロットを有するフィルタサポート４３０が形成される。押出機４００は、カートリッジ４２８の排出端に、フィルタアセンブリおよびミキサープレート４２６の下流に取り付けられた押出ダイ４４４をさらに備えている。このダイは、複数の上流の供給孔および複数の下流の交差スロットを備えている。フィルタアセンブリは、押出ダイ４４４のスロットを塞ぐ恐れのあるより大きい集塊および破片を除去するように操作可能である。押出ダイ４４４の複数の交差スロットを通る可塑化バッチ組成物４０４の流れは、湿ったグリーンハニカム体４４６Ｗ内に、ハニカム体４４６Ｄに対応する交差壁１０２およびチャネル１０４のマトリックスを形成する。

【０１６０】

したがって、押出機４００の運転中、可塑化バッチ組成物４０４は、１本または複数本の押出機スクリュー４１８により押出機バレル４２０から送られ、次いで、フィルタスクリーン４１０、フィルタサポート４３０、およびミキサープレート４２６を通過し、最後に押出機４００の押出ダイ４４４から湿ったグリーンハニカム体４４６Ｗとして排出される。湿ったグリーンハニカム体４４６Ｗは、ワイヤなどの切断具を備えている切断装置４４８により切断されてもよい。切断されたら、湿ったグリーンハニカム体４４６Ｗをトレイ４５０上に受けてもよい。

【０１６１】

次いで、湿ったグリーンハニカム体４４６Ｗは、トレイ４５０およびコンベヤ（図示せず）により乾燥機（図示せず）まで乾燥され、運ばれて、例えば、オーブン乾燥、マイクロ波乾燥、ＲＦ乾燥、それらの組合せなどの適切に乾燥する任意のプロセスにより、５０８において乾燥されて、乾燥したグリーン体ハニカム４４６Ｄ（図４Ｂ）を形成してもよ

い。乾燥したグリーン体ハニカム４４６Ｄは、グリーン体ハニカム４４６Ｄの一端から他端まで延在する複数の交差壁１０２を備えている。交差壁１０２は、同じく端から端まで延在するチャネル１０４を形成する。

【０１６２】

焼成

次いで、乾燥したグリーン体ハニカム４４６Ｄを５１０において既知の焼成技法にしたがって焼成し、図１に示されているような多孔質セラミックハニカム体１０１を形成することができる。例えば、乾燥したグリーンハニカム体４４６Ｄは、ガス窯内または電気窯内で、乾燥したグリーン体ハニカム４４６Ｄをセラミック物品（例えば、多孔質セラミックハニカム体１０１）に変換するのに効果的な条件下で焼成されてもよい。温度および時間の焼成条件は、特定のバッチ組成物およびサイズならびに乾燥したグリーン体ハニカム４４６Ｄの幾何形状に依存する。

【０１６３】

例えば、乾燥したグリーン体ハニカム４４６Ｄを多孔質セラミックハニカム体１０１に変換するのに効果的な焼成条件には、バッチ組成物に応じて、例えば、炉内の空気雰囲気中、１２０℃／時間の加熱速度で１０００℃～１６００℃の範囲内の最高浸漬温度まで、乾燥したグリーン体ハニカム４４６Ｄを加熱することを含むことができる。乾燥したグリーン体ハニカム４４６Ｄをセラミック物品に変換するのに十分な約１～３０時間の保持時間の間、最高浸漬温度が保たれてもよい。この後、多孔質セラミックハニカム体１０１に熱衝撃を与えてクラックが入らないように十分に低い速度（例えば、約１０～１６０℃／時間の冷却速度）で冷却することが続いてもよい。焼成時間は、微粒子材料および（１種類以上の）細孔形成剤の種類および量などの因子、ならびに焼成設備の性質にさらに依存するが、総焼成時間は、例えば、約２０時間～約８０時間であろう。

【０１６４】

主としてチタン酸アルミニウム組成物を生成するためのバッチ組成物については、最高焼成温度は約１３００℃～約１４５０℃であり、この温度での保持時間は約１時間～約６時間である。

【０１６５】

主としてチタン酸アルミニウム－ムライト相組成物を生成するためのバッチ組成物については、最高焼成温度は約１３４０℃～約１５００℃であり、この温度での保持時間は約１時間～約６時間である。

【０１６６】

主としてコーディエライト－ムライト、チタン酸アルミニウム（ＣＭＡＴ）相組成物を生成するためのバッチ組成物については、最高焼成温度は約１３００℃～約１３８０℃であり、この温度での保持時間は約１時間～約６時間である。

【０１６７】

主としてムライトを生成するためのバッチ組成物については、最高焼成温度は約１４００℃～約１６００℃であり、この温度での保持時間は約１時間～約６時間である。

【０１６８】

先述したコーディエライト－ムライト組成物を与えるコーディエライト－ムライト生成混合物については、最高焼成温度は約１３７５℃～約１４２５℃であり、この温度での保持時間は約１時間～約６時間である。

【０１６９】

例えば、主としてコーディエライトを生成するための組成物において、最高焼成温度は約１３００℃～約１４５０℃であり、この温度での保持時間は約１時間～約６時間である。

【０１７０】

バッチ組成物から生成された多孔質セラミック物品

予備反応させた球状無機粒子と、比較的少量の「細粒」（５μｍ未満の中央粒径を有する粒子分布の≦２０質量％　ＳＡＰ）と、ＬＶ％≧２８％とを含むバッチ組成物から製造された多孔質セラミック物品（例えば、多孔質セラミックハニカム体）は、焼成後、触媒

担体および／またはパティキュレートフィルタとしての使用に適した相互接続された開孔およびミクロ組織を示すことがある。

【０１７１】

例えば、いくつかの実施形態において、パティキュレートフィルタとして具体化された場合に低い圧力損失および良好な耐熱衝撃性の両方を可能にする比較的大きい中央細孔サイズ（ＭＰＳ）、高い気孔率（％Ｐ）、良好な強度および低い熱膨張係数（ＣＴＥ）が提供されることがある。

【０１７２】

本開示の例の実施形態によれば、反転細孔構造を有する多孔質セラミックハニカム体１０１（図１）は、比較的高い透過性を実現する。例えば、多孔質セラミックハニカム体は、いくつかの実施形態において、５０％超、５５％超、またはさらに６０％超の気孔率を有してもよい。多孔質セラミックハニカム体１０１は、いくつかの実施形態において、１０μｍ超、またはさらに１５μｍ超、および１０μｍ～３０μｍの中央細孔サイズ（ｄ５０）を有してもよい。

【０１７３】

多孔質セラミックハニカム体１０１は、２０×１０$^{-7}$Ｋ$^{-1}$未満、例えば、１５×１０$^{-7}$Ｋ$^{-1}$未満、またはさらに１０×１０$^{-7}$Ｋ$^{-1}$未満の室温（ＲＴ）～８００℃の熱膨張係数を有してもよい。さらに、多孔質セラミックハニカム体１０１の（３００／１４）ハニカム体は、例えば、１７０ｐｓｉ（約１．１７ＭＰａ）超、またはさらに２００ｐｓｉ（約１．３８ＭＰａ）超の破壊係数（ＭＯＲ）曲げ強さを有してもよい。

【０１７４】

図１は、本開示の例示の実施形態による多孔質セラミックハニカム物品１００の等角図を示している。多孔質セラミックハニカム物品１００は、パティキュレートフィルタとして具体化され、入口端部であってもよい第１の端部１０８および第１の端部１０８の反対側の第２の端部１１０および第１の端部１０８から第２の端部１１０まで延在する複数の入口チャネル１０４を備えている。同じく、複数の出口チャネル１０６も第１の端部１０８から第２の端部１１０まで延在する。複数の交差壁１０２は、入口チャネル１０４および出口チャネル１０６を形成し、ハニカムマトリックスを形成する。第１の端部１０８は、出口チャネル１０６の第１の端部１０８にプラグ１１２を備えていてもよい。同じく、第２の端部１１０（出口端部）も入口チャネル１０４の端部にプラグ１１２（図１に図示せず）を備えていてもよい。したがって、いくつかの実施形態において、第１の端部１０８および第２の端部１１０の両方にプラグ１１２の市松模様が形成されてもよい。一部のチャネルが塞がれており、一部のチャネルが塞がれていない、すなわち、貫流チャネルである部分的なプラグ構成を有する他のプラグ構成が使用されてもよい。気孔率、中央細孔径、および細孔サイズ分布をトモグラフィーにより決定した。

【０１７５】

多孔質セラミックハニカム体１０１のセル密度は、約７０～１２００セル／平方インチ（ｃｐｓｉ）（約１０～１９０セル／平方センチメートル）であっても差し支えない。セル壁厚は、約０．０２５ｍｍ～約１．５ｍｍ（約０．００１～０．０６０インチ）に及んで差し支えない。例えば、多孔質セラミックハニカム体１０１の幾何形状は、約８ミル（約０．２ｍｍ）の壁厚（４００／８）または約６ミル（約０．１５ｍｍ）の壁厚（４００／６）を有する４００ｃｐｓｉ（６２セル／平方センチメートル）であってもよい。他の幾何形状は、例えば、１００／１７、２００／１２、２００／１９、２７０／１９、３５０／３、４００／３、４００／４、５００／２、６００／２、６００／３、６００／４、７５０／２、９００／２、９００／３、１２００／２、およびさらに７５０／１および９００／１を含んでもよい。他の適切な組合せがバッチ組成物を使用して生成されてもよい。

【０１７６】

本明細書において使用する場合に、多孔質セラミックハニカム体は、任意のハニカム構造、すなわち、セル形状を有することが意図されており、正方形のセル形状に厳密に限定されない。例えば、多孔質セラミックハニカム体１０１のセルは、正方形、長方形、六角

形、八角形、三角形、またはその他の任意の適したセル形状であってもよい。また、示された多孔質セラミックハニカム体１０１の断面は円形であるが、断面形状は、そのように限定されない。例えば、断面形状は、楕円形、レーストラック、正方形、長方形、または他の所望の幾何学的形状であっても差し支えない。

【０１７７】

交差壁１０２のマトリックスの外周部に配置されるのは外周面である。外周面は、本明細書においてスキン１０５を有してもよく、いくつかの実施形態において、交差壁１０２と同時に形成される共押出しされたスキンとして形成されてもよい。他の実施形態において、後から適用された外面スキンが、多孔質セラミックハニカム体１０１の第１の端面から第２の端面まで軸方向に延在する外周面を形成してもよい。本明細書において使用する場合に、多孔質セラミックハニカム体１０１は、セラミックハニカムモノリスならびにセラミックセグメント化ハニカム体、すなわち、互いに接着されたセラミックハニカムセグメントを含む。

【０１７８】

当業者には、本開示の範囲から逸脱せずに様々な変更および改変を本開示において行えることが明らかになるであろう。したがって、本開示の変更および改変が付随の特許請求の範囲およびその同等物の範囲内であるならば、本開示はこの変更および改変を含むことが意図される。

【０１７９】

以下、本発明の好ましい実施形態を項分け記載する。

【０１８０】

実施形態１

バッチ組成物において、

$20\,\mu m \leqq D_{50} \leqq 50\,\mu m$、

$D_{90} \leqq 100\,\mu m$、および

$D_{10} \geqq 5\,\mu m$

の狭い粒子サイズ分布を有する予備反応させた球状無機粒子と、

前記バッチ組成物中の前記予備反応させた球状無機粒子の総質量に対する上乗せ添加による２０質量％未満の微細無機粒子であって、５μｍ未満の中央径を有する微細無機粒子と、

前記バッチ組成物中の全ての無機粒子に対する上乗せ添加による２８質量％以上のＬＶ％とを含み、

ＬＶ％が、液体ビヒクルパーセントであり、前記粒子サイズ分布中の前記予備反応させた無機粒子の９０％が、D_{90}以下の直径を有し、前記予備反応させた無機粒子の１０％が、D_{10}以下の直径を有し、D_{50}が、前記粒子サイズ分布の中央粒径である、バッチ組成物。

【０１８１】

実施形態２

前記予備反応させた球状無機粒子が$20\,\mu m \leqq D_{50} \leqq 45\,\mu m$を有する、実施形態１記載のバッチ組成物。

【０１８２】

実施形態３

前記予備反応させた球状無機粒子が$25\,\mu m \leqq D_{50} \leqq 45\,\mu m$を有する、実施形態２記載のバッチ組成物。

【０１８３】

実施形態４

$D_{90} \leqq 75\,\mu m$を有する、実施形態１記載のバッチ組成物。

【０１８４】

実施形態５

$D_{90} \leqq 65\,\mu m$を有する、実施形態４記載のバッチ組成物。

【０１８５】
実施形態６
D_{10}≧１０μｍを有する、実施形態１記載のバッチ組成物。
【０１８６】
実施形態７
D_{10}≧２５μｍを有する、実施形態１記載のバッチ組成物。
【０１８７】
実施形態８
D_{90}≦７５μｍおよびD_{10}≧５μｍを有する、実施形態１記載のバッチ組成物。
【０１８８】
実施形態９
D_{90}≦６５μｍおよびD_{10}≧５μｍを有する、実施形態８記載のバッチ組成物。
【０１８９】
実施形態１０
D_{90}≦７０μｍおよびD_{10}≧１０μｍを有する、実施形態１記載のバッチ組成物。
【０１９０】
実施形態１１
前記予備反応させた球状無機粒子がd_B≦２．００を有し、$d_B=(D_{90}-D_{10})/D_{50}$である、実施形態１記載のバッチ組成物。
【０１９１】
実施形態１２
前記予備反応させた球状無機粒子がd_B≦１．００を有する、実施形態１１記載のバッチ組成物。
【０１９２】
実施形態１３
前記予備反応させた球状無機粒子がd_B≦０．９０を有する、実施形態１１記載のバッチ組成物。
【０１９３】
実施形態１４
前記予備反応させた球状無機粒子がd_B≦０．８０を有する、実施形態１１記載のバッチ組成物。
【０１９４】
実施形態１５
５μｍ未満の中央径を有する微粒子サイズ分布を有する１５質量％未満の微細無機粒子を含む、実施形態１記載のバッチ組成物。
【０１９５】
実施形態１６
５μｍ未満の中央径を有する１０質量％未満の微細無機粒子を含む、実施形態１５記載のバッチ組成物。
【０１９６】
実施形態１７
前記バッチ組成物中の前記微細無機粒子が、２μｍ未満の中央径を各々有する微細アルミナおよび微細シリカを含む、実施形態１記載のバッチ組成物。
【０１９７】
実施形態１８
前記バッチ組成物中の前記微細無機粒子が、１μｍ未満の中央径を有する粒子サイズ分布を各々有する微細アルミナおよびコロイド状シリカを含む、実施形態１記載のバッチ組成物。
【０１９８】
実施形態１９

前記バッチ組成物中の前記微細無機粒子の総質量と、前記バッチ組成物中の前記予備反応させた球状無機粒子の総質量との比３：９７～２０：８０を有する、実施形態１記載のバッチ組成物。

【０１９９】

実施形態２０

前記予備反応させた球状無機粒子がＡＲ≦１．２を有し、ここで、ＡＲは、最大寸法を有する第１の幅に亘り測定され、前記予備反応させた球状無機粒子に亘る最小寸法を有する第２の幅で割った平均アスペクト比である、実施形態１記載のバッチ組成物。

【０２００】

実施形態２１

前記予備反応させた球状無機粒子が、噴霧乾燥プロセスにより形成される、実施形態１記載のバッチ組成物。

【０２０１】

実施形態２２

前記液体ビヒクルの質量パーセントが、前記バッチ組成物中の全ての無機粒子の総質量に基づく上乗せ添加による３０質量％以上である、実施形態１記載のバッチ組成物。

【０２０２】

実施形態２３

前記液体ビヒクルの質量パーセントが、前記バッチ組成物中の全ての無機粒子の総質量に基づく上乗せ添加による３５質量％以上である、実施形態１記載のバッチ組成物。

【０２０３】

実施形態２４

前記液体ビヒクルの質量パーセントが、前記バッチ組成物中の全ての無機粒子の総質量に基づく上乗せ添加による４０質量％以上である、実施形態１記載のバッチ組成物。

【０２０４】

実施形態２５

前記液体ビヒクルの質量パーセントが、前記バッチ組成物中の全ての無機粒子の総質量に基づく上乗せ添加による４５質量％以上である、実施形態１記載のバッチ組成物。

【０２０５】

実施形態２６

前記液体ビヒクルの質量パーセントが、前記バッチ組成物中の全ての無機粒子の総質量に基づく上乗せ添加による２８質量％以上５０質量％以下である、実施形態１記載のバッチ組成物。

【０２０６】

実施形態２７

細孔形成剤としてのデンプンおよびグラファイトの組合せを含む、実施形態１記載のバッチ組成物。

【０２０７】

実施形態２８

前記バッチ組成物中の全ての無機粒子に対する上乗せ添加による５質量％～２０質量％の量の細孔形成剤としてのエンドウデンプン、および

前記バッチ組成物中の全ての前記無機粒子に対する上乗せ添加による１質量％～１０質量％の量の細孔形成剤としてのグラファイト

の組合せを含む、実施形態１記載のバッチ組成物。

【０２０８】

実施形態２９

球形ポリマー細孔形成剤を含む、実施形態１記載のバッチ組成物。

【０２０９】

実施形態３０

前記バッチ組成物中の全ての前記無機粒子の前記質量に対する上乗せ添加による０．５

質量％～２．５質量％の量の滑剤を含む、実施形態１記載のバッチ組成物。
【０２１０】
実施形態３１
前記バッチ組成物中の全ての前記無機粒子の前記質量に対する上乗せ添加による４．０質量％～８．０質量％の量の有機バインダを含む、実施形態１記載のバッチ組成物。
【０２１１】
実施形態３２
前記有機バインダが、メチルセルロースバインダおよびヒドロキシメチルセルロースバインダの組合せを含み、前記メチルセルロースバインダが、約３．０質量％　ＳＡＴ～６．０質量％　ＳＡＴであり、前記ヒドロキシメチルセルロースバインダが、約１．５質量％　ＳＡＴ～３．０質量％　ＳＡＴであり、ここで、ＳＡＴは、前記バッチ組成物中の全ての無機粒子の質量に対する上乗せ添加によるものとして定義される、実施形態３１記載のバッチ組成物。
【０２１２】
実施形態３３
前記有機バインダが、約４．０質量％　ＳＡＴ～８．０質量％　ＳＡＴの量の前記有機バインダとしてのヒドロキシメチルセルロースバインダのみを含み、ここで、ＳＡＴは、前記バッチ組成物中の全ての無機粒子の質量に対する上乗せ添加によるものとして定義される、実施形態３１記載のバッチ組成物。
【０２１３】
実施形態３４
前記予備反応させた球状無機粒子が、チタン酸アルミニウムの主結晶相を含む、実施形態１記載のバッチ組成物。
【０２１４】
実施形態３５
前記予備反応させた球状無機粒子が、チタン酸アルミニウムの主結晶相およびムライトの第２の結晶相を含む、実施形態１記載のバッチ組成物。
【０２１５】
実施形態３６
前記予備反応させた球状無機粒子が、チタン酸アルミニウムの主結晶相および長石の第２の結晶相を含む、実施形態１記載のバッチ組成物。
【０２１６】
実施形態３７
前記予備反応させた無機粒子が、主にチタン酸アルミニウムおよび二チタン酸マグネシウムの固溶体の第１の結晶相、ならびにコーディエライトを含む第２の結晶相を含む、実施形態１記載のバッチ組成物。
【０２１７】
実施形態３８
前記予備反応させた球状無機粒子が、チタン酸アルミニウムの主結晶相および副ガラス相を含む、実施形態１記載のバッチ組成物。
【０２１８】
実施形態３９
前記予備反応させた無機粒子が、酸化物基準の質量％で、４％～１０％のMgO、４０％～５５％のAl_2O_3、２５％～４４％のTiO_2、および５～２５％のSiO_2を含む、実施形態１記載のバッチ組成物。
【０２１９】
実施形態４０
有機バインダに対する液体ビヒクルの比≧６．４％を有する、実施形態１記載のバッチ組成物。
【０２２０】

実施形態４１
実施形態１記載のバッチ組成物を含む、グリーンハニカム体。
【０２２１】
実施形態４２
ハニカム体を製造する方法において、
２０μｍ≦D_{50}≦５０μｍ、
D_{90}≦１００μｍ、および
D_{10}≧５μｍ
の粒子サイズ分布を有する予備反応させた球状無機粒子と、
前記バッチ組成物中の前記予備反応させた球状無機粒子の総質量に対する上乗せ添加による２０質量％未満の微細無機粒子であって、５μｍ未満の中央径を有する微細無機粒子と、
前記バッチ組成物中の全ての無機粒子に対する上乗せ添加による２８質量％以上のＬＶ％とを含むバッチ組成物を混合するステップであって、
前記予備反応させた球状無機粒子の９０％が、D_{90}未満の直径を有し、前記予備反応させた球状無機粒子の１０％が、D_{10}未満の直径を有し、D_{50}が中央粒径であるステップと、
前記バッチ組成物を、押出により湿ったグリーンハニカム体へと成形するステップであって、前記バッチ組成物が、タウＹ／ベータ≧２．０を有し、タウＹが、バッチ剛性の尺度であり、ベータが、前記バッチ組成物の摩擦係数であるステップと
を含む、方法。
【０２２２】
実施形態４３
タウＹ／ベータ≧３．０である、実施形態４２記載の方法。
【０２２３】
実施形態４４
タウＹ／ベータ≧４．０である、実施形態４２記載の方法。
【０２２４】
実施形態４５
タウＹ／ベータ≧５．０である、実施形態４２記載の方法。
【０２２５】
実施形態４６
タウＹ／ベータ≧６．０である、実施形態４２記載の方法。
【０２２６】
実施形態４７
タウＹ／ベータ≧７．０である、実施形態４２記載の方法。
【０２２７】
実施形態４８
タウＹ／ベータ≧８．０である、実施形態４２記載の方法。
【０２２８】
実施形態４９
タウＹ／ベータ≧１０．０である、実施形態４２記載の方法。
【０２２９】
実施形態５０
前記成形するステップが、押出を含み、４７℃以上の前記押出中のT_{onset}を有する、実施形態４２記載の方法。
【０２３０】
実施形態５１
５０℃以上の前記押出中のT_{onset}を有する、実施形態５０記載の方法。
【０２３１】

実施形態５２
５５℃以上の前記押出中のＴｏｎｓｅｔをさらに有する、実施形態５０記載の方法。
【０２３２】
実施形態５３
前記湿ったグリーンハニカム体を乾燥させて、乾燥したグリーンハニカム体を形成するステップと、
前記乾燥したグリーンハニカム体を焼成して、多孔質セラミックハニカム体を形成するステップと
を含む、実施形態４２記載の方法。
【０２３３】
実施形態５４
ハニカム体を製造する方法において、
予備反応させた球状無機粒子と、前記バッチ組成物中の前記予備反応させた球状無機粒子の総質量に対する上乗せ添加による２０質量％未満の微細無機粒子であって、５μｍ未満の中央径を有する微細無機粒子と、前記バッチ組成物中の全ての無機粒子に対する上乗せ添加による２８質量％以上のＬＶ％とを含むバッチ組成物を混合するステップと、
前記バッチ組成物を、押出により湿ったグリーンハニカム体へと成形するステップであって、前記バッチ組成物が、タウＹ／ベータ≧２．０を有し、タウＹが、バッチ剛性の尺度であり、ベータが、前記バッチ組成物の摩擦係数であるステップと
を含む、方法。
【０２３４】
実施形態５５
バッチ組成物において、
２０μｍ≦D_{50}≦５０μｍ、
D_{90}≦１００μｍ、および
D_{10}≧５μｍ
の狭い粒子サイズ分布を有する予備反応させた球状無機粒子と、
前記バッチ組成物中の前記予備反応させた球状無機粒子の総質量に対する上乗せ添加による２０質量％未満の微細無機粒子であって、５μｍ未満の中央径を有する微細無機粒子と、
前記バッチ組成物中の全ての無機粒子に対する上乗せ添加による２８質量％以上のＬＶ％とを含み、かつ
タウＹ／ベータ≧２．０を有し、
ＬＶ％が、液体ビヒクルパーセントであり、前記粒子サイズ分布中の前記予備反応させた無機粒子の９０％が、D_{90}以下の直径を有し、前記予備反応させた無機粒子の１０％が、D_{10}以下の直径を有し、D_{50}が、前記粒子サイズ分布の中央粒径であり、タウＹが、バッチ剛性の尺度であり、ベータが、前記バッチ組成物の摩擦係数である、バッチ組成物。

【図面】

【図１】

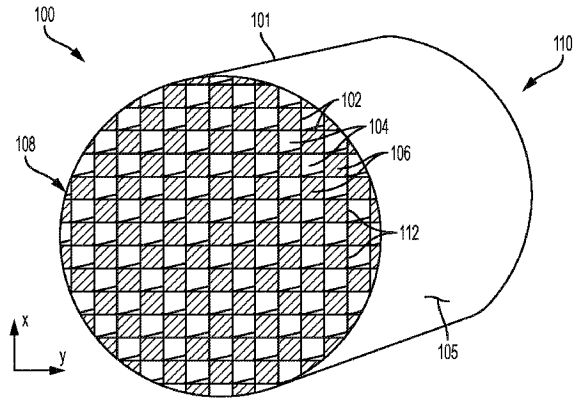


FIG. 1

【図２】

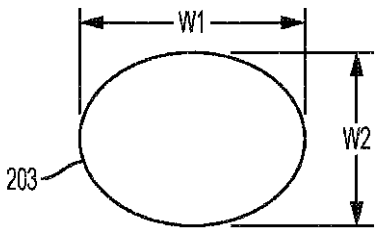
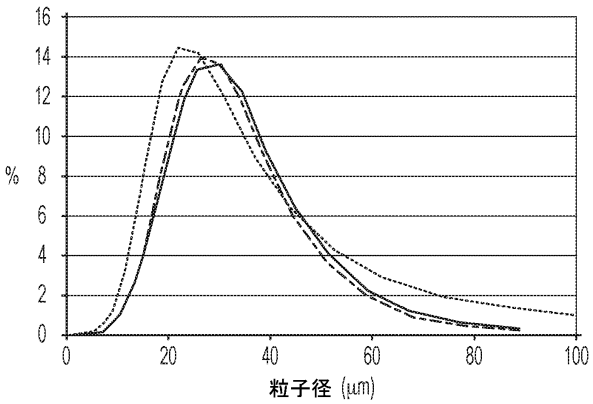
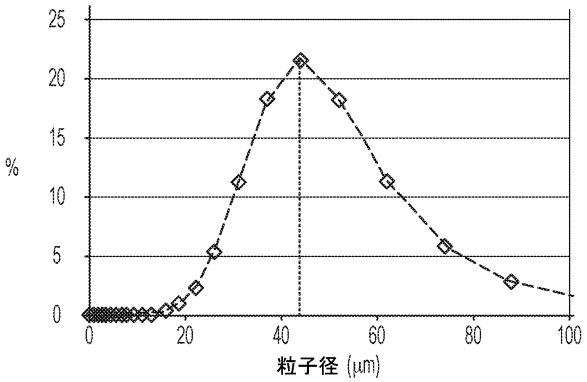


FIG. 2

【図３Ａ】



【図３Ｂ】



【図４Ａ】

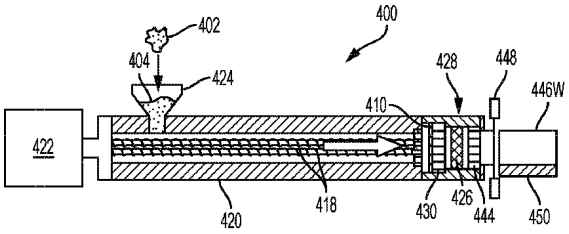


FIG. 4A

【図４Ｂ】

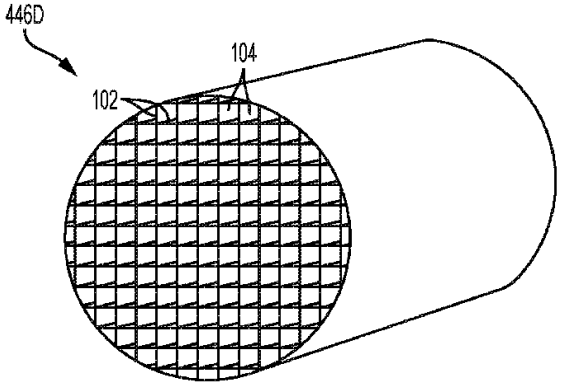
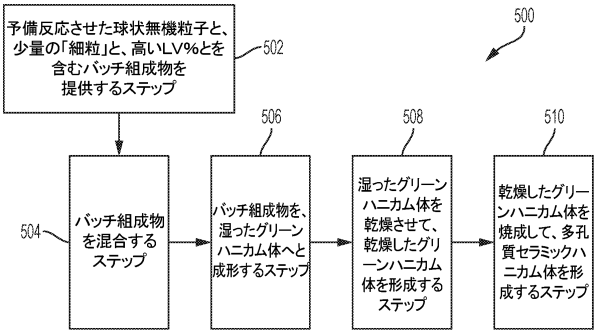
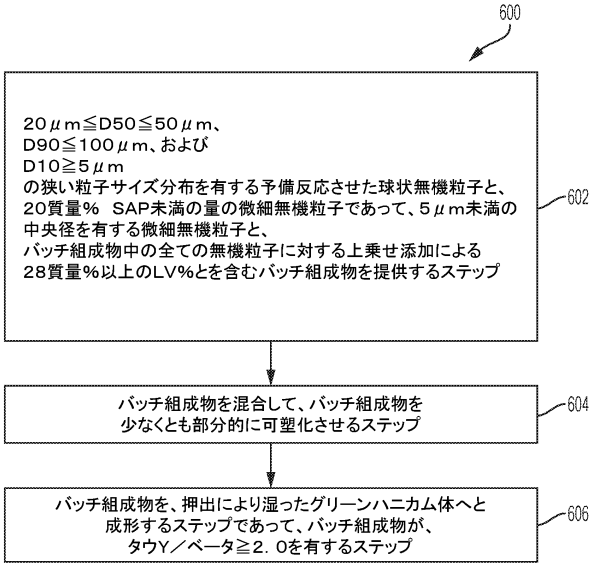


FIG. 4B

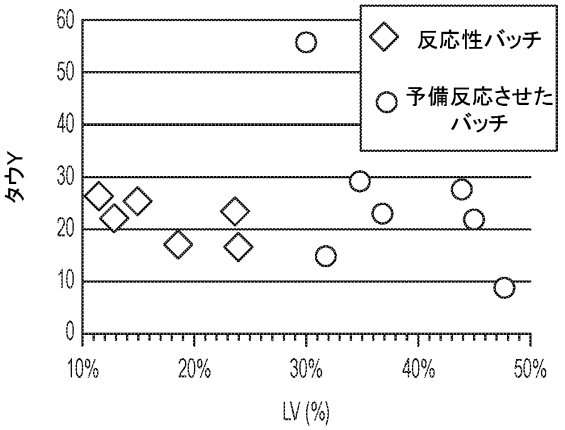
【図５】



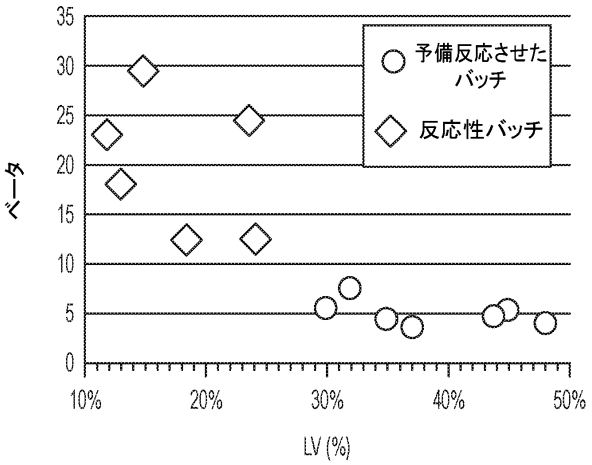
【図６】



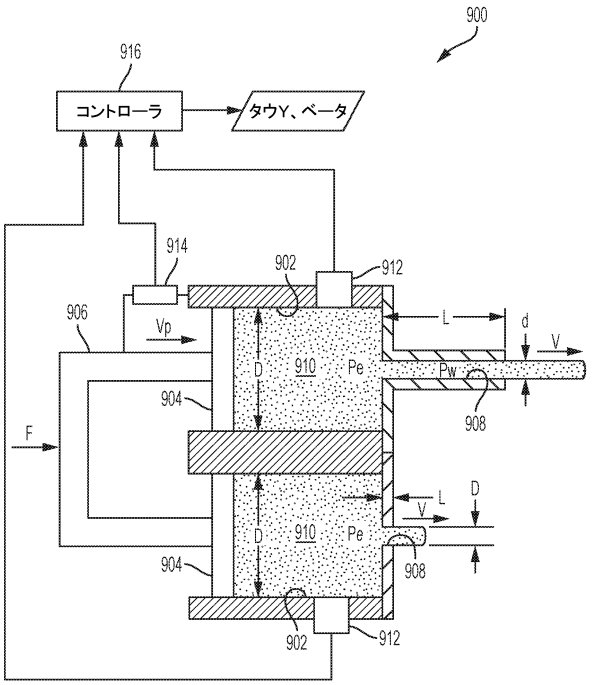
【図７】


タウY
LV (%)
反応性バッチ
予備反応させたバッチ

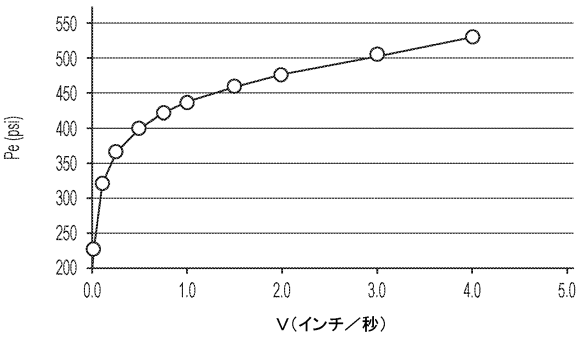
【図８】


ベータ
LV (%)
予備反応させたバッチ
反応性バッチ

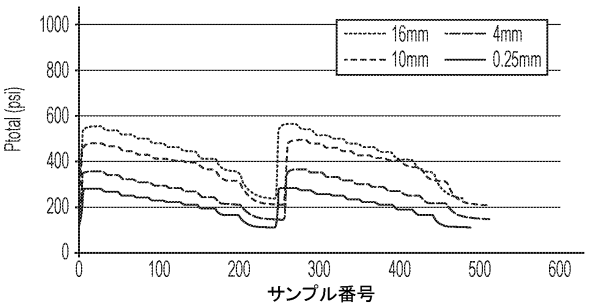
【図９】


900
916
コントローラ
タウY、ベータ
914
902
912
906
Vp
L
d
V
D
910
Pe
Pw
904
908
F
L
V
D
D
910
Pe
904
908
902
912

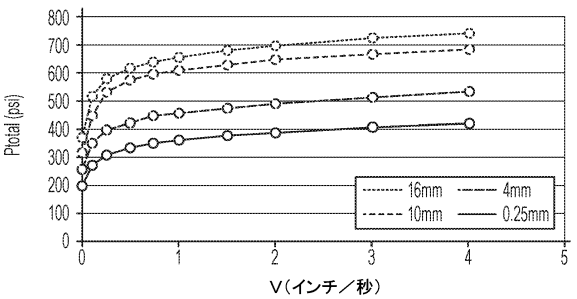
【図１０】


Pe (psi)
V（インチ／秒）

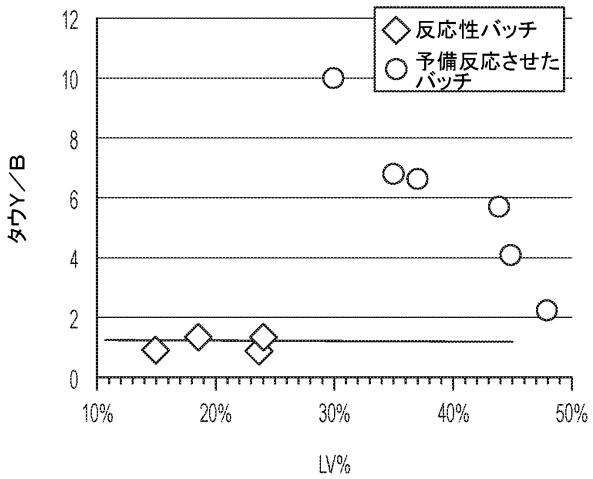
【図１１】



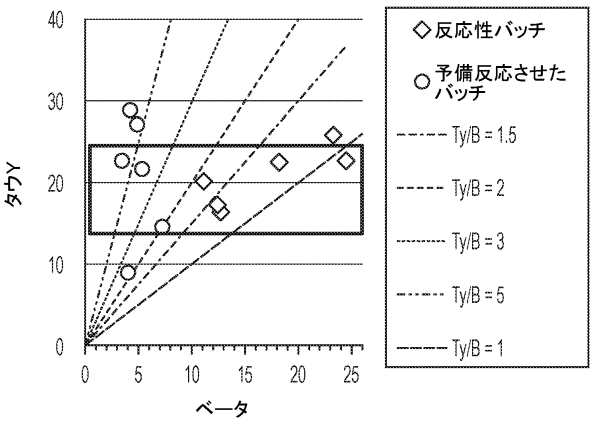
【図１２】



【図１３】



【図１４】



フロントページの続き

米国(US)
(31)優先権主張番号　62/579,579
(32)優先日　平成29年10月31日(2017.10.31)
(33)優先権主張国・地域又は機関
米国(US)
ット リュ パストゥール ５７
(72)発明者　ディヴェンスーダッチャー，アドリアーネ マリー
アメリカ合衆国 ニューヨーク州 １４８７０ ペインテッド ポスト ウエスト ハイ ストリート ２９６
(72)発明者　ヴィレーノ，エリザベス マリー
アメリカ合衆国 ニューヨーク州 １４８３０ コーニング ウィルソン ストリート ５３
合議体
審判長　深草 祐一
審判官　増山 淳子
審判官　後藤 政博
(56)参考文献　特表２０１６－５１９０４７号公報（ＪＰ，Ａ）
(58)調査した分野　(Int.Cl.，ＤＢ名)
Ｃ０４Ｂ
Ｂ２８Ｂ