(12) 特許協力条約に基づいて公開された国際出願

(19) 世界知的所有権機関
国際事務局

(43) 国際公開日
2010 年 8 月 26 日(26.08.2010)

PCT

(10) 国際公開番号
WO 2010/095615 A1

(51) 国際特許分類:
C04B 35/46 (2006.01) *C01G 23/00* (2006.01)
B01D 39/20 (2006.01)

(21) 国際出願番号: PCT/JP2010/052280

(22) 国際出願日: 2010 年 2 月 16 日(16.02.2010)

(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 2009-034179 2009 年 2 月 17 日(17.02.2009) JP
特願 2009-147660 2009 年 6 月 22 日(22.06.2009) JP

(71) 出願人 (米国を除く全ての指定国について): 住友化学株式会社(SUMITOMO CHEMICAL COMPANY, LIMITED) [JP/JP]; 〒1048260 東京都中央区新川二丁目２７番１号 Tokyo (JP).

(72) 発明者; および

(75) 発明者/出願人 (米国についてのみ): 岩崎 健太郎(IWASAKI, Kentaro) [JP/JP]; 〒7920025 愛媛県新居浜市一宮町２－６－３２３ Ehime (JP). 根本 明欣(NEMOTO, Akiyoshi) [JP/JP]; 〒3050046 茨城県つくば市東２－２９－２５ Ibaraki (JP).

(74) 代理人: 植木 久一, 外(UEKI, Kyuichi et al.); 〒5300003 大阪府大阪市北区堂島２丁目１番１６号 フジタ東洋紡ビル９階 Osaka (JP).

(81) 指定国 (表示のない限り、全ての種類の国内保護が可能): AE, AG, AL, AM, AO, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BH, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CL, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DK, DM, DO, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, GT, HN, HR, HU, ID, IL, IN, IS, KE, KG, KM, KN, KP, KR, KZ, LA, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LY, MA, MD, ME, MG, MK, MN, MW, MX, MY, MZ, NA, NG, NI, NO, NZ, OM, PE, PG, PH, PL, PT, RO, RS, RU, SC, SD, SE, SG, SK, SL, SM, ST, SV, SY, 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, LS, MW, MZ, NA, SD, SL, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), ユーラシア (AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, RU, TJ, TM), ヨーロッパ (AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HR, HU, IE, IS, IT, LT, LU, LV, MC, MK, MT, NL, NO, PL, PT, RO, SE, SI, SK, SM, TR), OAPI (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, ML, MR, NE, SN, TD, TG).

添付公開書類:

— 国際調査報告（条約第 21 条(3)）

(54) **Title**: METHOD FOR MANUFACTURING ALUMINUM TITANATE-BASED SINTERED BODIES

(54) 発明の名称 : チタン酸アルミニウム系焼成体の製造方法

(57) **Abstract**: Disclosed is a method for manufacturing aluminum magnesium titanate sintered bodies with excellent mechanical properties, even in cases where a binder is not used or the quantity of binder used is small. The method comprises a step in which a molded body of a base mixture containing an aluminum source powder, a titanium source powder, and a magnesium source powder is sintered, and is a method for manufacturing aluminum titanate-based sintered bodies in which said magnesium source powder contains a hydrotalcite-based compound. The base mixture may also contain a silicon source powder.

(57) 要約: 本発明は、バインダを用いることなく、またはバインダの使用量が少ない場合であっても、良好な機械的特性を有するチタン酸アルミニウムマグネシウム焼成体を製造し得る方法を提供することを目的とする。本発明は、アルミニウム源粉末、チタニウム源粉末およびマグネシウム源粉末を含む原料混合物の成形体を焼成する工程を備え、該マグネシウム源粉末がハイドロタルサイト系化合物を含有するチタン酸アルミニウム系焼成体の製造方法である。原料混合物は、ケイ素源粉末をさらに含んでいてもよい。

WO 2010/095615 A1

明　細　書

発明の名称 ： チタン酸アルミニウム系焼成体の製造方法

技術分野

[0001] 本発明は、チタン酸アルミニウム系セラミックスからなる焼成体の製造方法に関し、より詳しくは、アルミニウム源粉末、チタニウム源粉末およびマグネシクム源粉末を含む原料混合物の成形体を焼成してチタン酸アルミニウム系セラミックスからなる焼成体を製造する方法に関する。

背景技術

[0002] チタン酸アルミニウム系セラミックスは、構成元素としてチタンおよびアルミニウムを含み、Ｘ線回折スペクトルにおいて、チタン酸アルミニウムの結晶パターンを有するセラミックスであって、耐熱性に優れたセラミックスとして知られている。チタン酸アルミニウム系セラミックスは、従来からルツボのような焼結用の冶具などとして用いられてきたが、近年では、ディーゼルエンジンなどの内燃機関から排出される排ガスに含まれる微細なカーボン粒子を捕集するためのセラミックスフィルターを構成する材料として、産業上の利用価値が高まっている。

[0003] チタン酸アルミニウム系セラミックスとしては、たとえばチタン酸アルミニウムマグネシウム結晶からなるセラミックスが知られている。特許文献１には、チタニアセラミックス等のＴｉ含有化合物、アルミナセラミックス等のＡｌ含有化合物、マグネシアセラミックス等のＭｇ含有化合物を含む原料混合物またはその成形体を焼成することによりチタン酸アルミニウムマグネシウム焼成体を調製することが開示されている。

先行技術文献

特許文献

[0004] 特許文献1：国際公開第０５／１０５７０４号パンフレット

発明の概要

発明が解決しようとする課題

[0005] 上記のように、各種金属成分を含有するセラミックス粉末混合物を用い、該混合物をあらかじめ成形体に成形してから焼成することによりチタン酸アルミニウムマグネシウム焼成体を得る場合、機械的強度の高い焼成体を得るためには、セラミックス粉末同士を強固に結着させるために、上記混合物にかなり多量のバインダ（結合剤）を添加する必要がある。

[0006] しかしながら、通常用いられる有機系バインダは、炭素を多く含有する化合物であり、成形体の焼成時における気化・分解により、多量の炭化物を発生させるという問題があった。かかる炭化物は、たとえば、焼成過程において多量の熱エネルギーを加えることにより除去または低減可能ではあるが、焼成時に熱エネルギーを過剰に必要とする、二酸化炭素が発生する、および、焼成体中に灰分や炭素分が残留するなどの問題を招来する。

[0007] そこで、本発明の目的は、バインダを用いることなく、またはバインダの使用量が少ない場合であっても、良好な機械的特性を有するチタン酸アルミニウムマグネシウム焼成体を製造し得る方法を提供することである。

課題を解決するための手段

[0008] 本発明は、アルミニウム源粉末、チタニウム源粉末およびマグネシウム源粉末を含む原料混合物の成形体を焼成する工程を備え、該マグネシウム源粉末は、ハイドロタルサイト系化合物を含有するチタン酸アルミニウム系焼成体の製造方法を提供する。

[0009] 本発明において、上記原料混合物は、バインダを含まないものとすることができる。本発明によれば、バインダを用いることなく機械的強度が高いチタン酸アルミニウム系焼成体を得ることができる。一方、本発明において、上記原料混合物はバインダを含んでいてもよいが、本発明によれば、その使用量が十分低い場合であっても、機械的強度に優れたチタン酸アルミニウム系焼成体を得ることができる。上記原料混合物がバインダを含有する場合において、バインダの使用量はアルミニウム源粉末、チタニウム源粉末およびマグネシウム源粉末の合計量１００質量部に対して、０．３質量部以下とすることができる。

[0010] マグネシウム源粉末中の、ハイドロタルサイト系化合物以外のマグネシウム源の含有量は、ＭｇＯ換算で４０質量%以下であることが好ましい。またＭｇＯ換算のマグネシウム源粉末の使用量は、ＴｉＯ$_2$換算のチタニウム源粉末の使用量とＡｌ$_2$Ｏ$_3$換算のアルミニウム源粉末の使用量との合計量１００質量部に対して０．１～１５質量部であることが好ましい。マグネシウム源粉末の体積基準の累積百分率５０%相当粒子径（Ｄ５０）は０．１～１０μｍであることが好ましい。

[0011] ＴｉＯ$_2$換算のチタニウム源粉末の使用量は、ＴｉＯ$_2$換算のチタニウム源粉末の使用量とＡｌ$_2$Ｏ$_3$換算のアルミニウム源粉末の使用量との合計量１００質量部に対して３０～７０質量部であることが好ましい。アルミニウム源粉末の体積基準の累積百分率５０%相当粒子径（Ｄ５０）は０．１～５０μｍであることが好ましく、またチタニウム源粉末の体積基準の累積百分率５０%相当粒子径（Ｄ５０）は０．１～５０μｍであることが好ましい。

[0012] 上記原料混合物は、ケイ素源粉末をさらに含んでいてもよい。ＳｉＯ$_2$換算のケイ素源粉末の使用量は、ＴｉＯ$_2$換算のチタニウム源粉末の使用量とＡｌ$_2$Ｏ$_3$換算のアルミニウム源粉末の使用量との合計量１００質量部に対して０．１～１０質量部であることが好ましい。

発明の効果

[0013] 本発明の製造方法によれば、良好な機械的特性を有するチタン酸アルミニウムマグネシウム焼成体を製造することが可能となる。また、本発明の製造方法によれば、バインダ、特には有機系バインダの低減または不使用により、焼成時に与える熱エネルギーを低減できるとともに、焼成時における二酸化炭素の発生および焼成体中への灰分、炭素分などの残留を防止または抑制することができる。

発明を実施するための形態

[0014] 本発明のチタン酸アルミニウム系焼成体は、１種以上のアルミニウム源粉末、１種以上のチタニウム源粉末および１種以上のマグネシウム源粉末を含む原料混合物の成形体を焼成することにより製造される。かかる原料混合物

を用いて得られるチタン酸アルミニウム系焼成体は、チタン酸アルミニウムマグネシウム結晶からなる焼成体である。

[0015] 本発明において用いられる原料混合物に含有されるアルミニウム源粉末は、チタン酸アルミニウム系焼成体を構成するアルミニウム成分となる物質の粉末であり、金属成分としてアルミニウムのみを含有する物質の粉末をいう。アルミニウム源粉末としては、たとえば、アルミナ（酸化アルミニウム）の粉末が挙げられる。アルミナは結晶性であってもよく、不定形（アモルファス）であってもよい。アルミナが結晶性である場合、その結晶型としては、γ型、δ型、θ型、α型などが挙げられ、α型のアルミナが好ましく用いられる。

[0016] 本発明で用いられるアルミニウム源粉末は、空気中で焼成することによりアルミナに導かれる物質の粉末であってもよい。かかる物質としては、たとえばアルミニウム塩、アルミニウムアルコキシド、水酸化アルミニウム、アルミニウムなどが挙げられる。

[0017] アルミニウム塩は、無機塩であってもよいし、有機塩であってもよい。アルミニウム無機塩として具体的には、たとえば、硝酸アルミニウム、硝酸アンモニウムアルミニウムなどの硝酸塩；炭酸アンモニウムアルミニウムなどの炭酸塩などが挙げられる。アルミニウム有機塩としては、たとえば、蓚酸アルミニウム、酢酸アルミニウム、ステアリン酸アルミニウム、乳酸アルミニウム、ラウリン酸アルミニウムなどが挙げられる。

[0018] また、アルミニウムアルコキシドとして具体的には、たとえば、アルミニウムイソプロポキシド、アルミニウムエトキシド、アルミニウムｓｅｃ－ブトキシド、アルミニウムｔｅｒｔ－ブトキシドなどが挙げられる。

[0019] 水酸化アルミニウムは結晶性であってもよく、不定形（アモルファス）であってもよい。水酸化アルミニウムが結晶性である場合、その結晶型としては、たとえば、ギブサイト型、バイヤライト型、ノロソトランダイト型、ベーマイト型、擬ベーマイト型などが挙げられる。アモルファスの水酸化アルミニウムとしては、たとえば、アルミニウム塩、アルミニウムアルコキシド

などのような水溶性アルミニウム化合物の水溶液を加水分解して得られるアルミニウム加水分解物も挙げられる。

[0020] 上記のなかでも、アルミニウム源粉末としては、アルミナ粉末および水酸化アルミニウム粉末が好ましく用いられ、より好ましくは、α型のアルミナ粉末である。なお、アルミニウム源粉末は、その製造工程において不可避的に含まれる微量成分を含有し得る。

[0021] アルミニウム源粉末の粒径は、特に限定されないが、レーザ回折法により測定される、体積基準の累積百分率５０%相当粒子径（Ｄ５０）が０．１～５０μｍであるものを好ましく用いることができる。チタン酸アルミニウムマグネシウムを効率よく生成させる観点から、アルミニウム源粉末のＤ５０は、より好ましくは０．３～３０μｍである。

[0022] 上記原料混合物に含有されるチタニウム源粉末は、チタン酸アルミニウム系焼成体を構成するチタン成分となる物質の粉末であり、金属元素としてチタンを含有する物質をいう。かかる物質としては、たとえば酸化チタンの粉末が挙げられる。酸化チタンとしては、たとえば、酸化チタン(ＩＶ)、酸化チタン(ＩＩＩ)、酸化チタン(ＩＩ)などが挙げられ、酸化チタン(ＩＶ)が好ましく用いられる。酸化チタン(ＩＶ)は結晶性であってもよく、不定形（アモルファス）であってもよい。酸化チタン（ＩＶ）が結晶性である場合、その結晶型としては、アナターゼ型、ルチル型、ブルッカイト型などが挙げられる。より好ましくは、アナターゼ型、ルチル型の酸化チタン(ＩＶ)である。

[0023] 本発明で用いられるチタニウム源粉末は、空気中で焼成することによりチタニア（酸化チタン）に導かれる物質の粉末であってもよい。かかる物質としては、たとえば、チタニウム塩、チタニウムアルコキシド、水酸化チタニウム、窒化チタン、硫化チタン、チタンなどが挙げられる。

[0024] チタニウム塩として具体的には、三塩化チタン、四塩化チタン、硫化チタン(ＩＶ)、硫化チタン(ＶＩ)、硫酸チタン(ＩＶ)などが挙げられる。チタニウムアルコキシドとして具体的には、チタン(ＩＶ)エトキシド、チタン(ＩＶ

)メトキシド、チタン(ＩＶ)ｔ－ブトキシド、チタン(ＩＶ)イソブトキシド、チタン(ＩＶ)ｎ－プロポキシド、チタン(ＩＶ)テトライソプロポキシド、および、これらのキレート化物などが挙げられる。

[0025] 上記のなかでも、チタニウム源粉末としては、酸化チタン粉末が好ましく用いられ、より好ましくは、酸化チタン(ＩＶ)粉末である。なお、チタニウム源粉末は、その製造工程において不可避的に含まれる微量成分を含有し得る。また、チタニウム源粉末として、その表面にアルミナ、シリカ、ジルコニア、水酸化アルミニウムなどからなる薄い表面層がコートされたものを用いることもできる。また、チタニウム源粉末として、チタン酸アルミニウムやチタン酸アルミニウムマグネシウムのようなチタンを含む複合酸化物を用いることもできる。

[0026] チタニウム源粉末の粒径は、特に限定されないが、レーザ回折法により測定される、体積基準の累積百分率５０%相当粒子径（Ｄ５０）が０．１～５０μｍであるものを好ましく用いることができる。チタン酸アルミニウムマグネシウムを効率よく生成させる観点から、チタニウム源粉末のＤ５０は、より好ましくは０．１～３０μｍである。

[0027] チタニア〔TiO_2〕換算のチタニウム源粉末の使用量とアルミナ〔Al_2O_3〕換算のアルミニウム源粉末の使用量との合計量１００質量部に対して、通常、チタニア換算のチタニウム源粉末の使用量が３０質量部～７０質量部、アルミナ換算のアルミニウム源粉末の使用量が７０質量部～３０質量部であり、好ましくはチタニア換算のチタニウム源粉末の使用量が４０質量部～６０質量部、アルミナ換算のアルミニウム源粉末の使用量が６０質量部～４０質量部である。

[0028] 本発明において、アルミナ〔Al_2O_3〕換算のアルミニウム源粉末の質量x_1は、下記式（Ａ）により求められる。

$$x_1 = N_{10} \times x_{10} \quad \cdots (A)$$

式（Ａ）中、N_{10}はAl_2O_3の式量を表し、x_{10}はアルミナ〔Al_2O_3〕換算のアルミニウム源粉末のモル量を表す。アルミナ〔Al_2O_3〕換算のアルミニウ

ム源粉末のモル量x_{10}は、下記式（Ａ－１）により求められる。

x_{10}＝（w_1×M_1）／（N_1×２）　・・・（Ａ－１）

式（Ａ－１）中、w_1はアルミニウム源粉末の使用量（ｇ）を表し、M_1はアルミニウム源粉末１モル中のアルミニウムのモル数を表し、N_1は使用したアルミニウム源粉末の式量を表す。本発明において２種以上のアルミニウム源粉末を使用する場合、式（Ａ－１）によって各アルミニウム源粉末のアルミナ〔Al_2O_3〕換算のモル量を求め、各モル量を合計することによって、使用するアルミニウム源粉末のアルミナ〔Al_2O_3〕換算のモル量を求めることができる。

[0029] 本発明において、チタニア〔TiO_2〕換算のチタニウム源粉末の質量x_2は、下記式（Ｂ）により求められる。

x_2＝N_{20}×x_{20}　・・・（Ｂ）

式（Ｂ）中、N_{20}はTiO_2の式量を表し、x_{20}はチタニア〔TiO_2〕換算のチタニウム源粉末のモル量を表す。チタニア〔TiO_2〕換算のチタニウム源粉末のモル量x_{20}は、下記式（Ｂ－１）により求められる。

x_{20}＝（w_2×M_2）／N_2　・・・（Ｂ－１）

式（Ｂ－１）中、w_2はチタニウム源粉末の使用量（ｇ）を表し、M_2はチタニウム源粉末１モル中のチタニウムのモル数を表し、N_2は使用したチタニウム源粉末の式量を表す。本発明において２種以上のチタニウム源粉末を使用する場合、式（Ｂ－１）によって各チタニウム源粉末のチタニア〔TiO_2〕換算のモル量を求め、各モル量を合計することによって、使用するチタニウム源粉末のチタニア〔TiO_2〕換算のモル量を求めることができる。

[0030] 次に、マグネシウム源粉末について説明する。本発明で用いられるマグネシウム源粉末は、１種以上のハイドロタルサイト系化合物を含有する。ここで、「ハイドロタルサイト系化合物」とは、ハイドロタルサイトおよびハイドロタルサイト類化合物を包含する。「ハイドロタルサイト」とは、式：$Mg_6Al_2(OH)_{16}CO_3・4H_2O$（Ｍｇ、Ａｌは、それぞれ２価、３価である）で表される層状の結晶構造を有する層状複水酸化物である。また、本発明

において、「ハイドロタルサイト類化合物」とは、２価のＭｇおよび３価のＡｌを含む、ハイドロタルサイトと同様の層状結晶構造を有する化合物と定義される。このようなハイドロタルサイト系化合物をマグネシウム源として用いることにより、バインダを使用することなく、あるいはバインダの添加量が少ない場合であっても、機械的強度の高いチタン酸アルミニウム系焼成体を得ることができる。また、バインダ、特には有機バインダの使用量を低減または省略することが可能となるため、焼成時に与える熱エネルギーを低減できるとともに、焼成時における二酸化炭素の発生および焼成体中への灰分、炭素分などの残留を防止または抑制することができる。

[0031] ハイドロタルサイト類化合物としては、入手が比較的容易であることから、一般式：$Mg_xAl_y(OH)_zCO_3 \cdot wH_2O$で表される化合物を好ましく用いることができる。ここで、上記一般式中におけるｘは３～７程度であり、ｙは１～３程度であり、ｚは１０～１８程度であり、ｗは２～６程度である。上記一般式で表されるハイドロタルサイト類化合物としては、たとえば、協和化学工業（株）製の「ＤＨＴ－４Ａ」（$Mg_{4.5}Al_2(OH)_{13}CO_3 \cdot 3.5H_2O$）、「ＤＨＴ－６」（$Mg_6Al_2(OH)_{16}CO_3 \cdot 4H_2O$）などを挙げることができる。

[0032] マグネシウム源粉末は、ハイドロタルサイト系化合物のみからなっていてもよいし、ハイドロタルサイト系化合物とハイドロタルサイト系化合物以外のマグネシウム源との混合物であってもよい。しかし、バインダの使用量を極力削減する（好ましくはゼロとする）ためには、マグネシウム源粉末中のハイドロタルサイト系化合物の含有率をできるだけ多くすることが好ましく、マグネシウム源粉末がハイドロタルサイト系化合物のみからなることがより好ましい。ハイドロタルサイト系化合物以外のマグネシウム源を併用する場合、その含有率は、マグネシウム源粉末中、マグネシア（ＭｇＯ）換算で、たとえば４０質量%以下とすることができる。ハイドロタルサイト系化合物以外のマグネシウム源の含有率は、好ましくはマグネシア（ＭｇＯ）換算で３０質量%以下、より好ましくはマグネシア（ＭｇＯ）換算で２０質量%

以下、さらに好ましくはマグネシア（ＭｇＯ）換算で１０質量%以下、最も好ましくはマグネシア（ＭｇＯ）換算で５質量%以下である。

[0033] 本発明において、マグネシア〔ＭｇＯ〕換算のマグネシウム源粉末の質量x_3は、下記式（Ｃ）により求められる。

$x_3 = N_{30} \times x_{30}$ ・・・（Ｃ）

式（Ｃ）中、N_{30}はＭｇＯの式量を表し、x_{30}はマグネシア〔ＭｇＯ〕換算のマグネシウム源粉末のモル量を表す。マグネシア〔ＭｇＯ〕換算のマグネシウム源粉末のモル量x_{30}は、下記式（Ｃ－１）により求められる。

$x_{30} = (w_3 \times M_3) / N_3$ ・・・（Ｃ－１）

式（Ｃ－１）中、w_3はマグネシウム源粉末の使用量（ｇ）を表し、M_3はマグネシウム源粉末１モル中のマグネシウムのモル数を表し、N_3は使用したマグネシウム源粉末の式量を表す。本発明において２種以上のマグネシウム源粉末を使用する場合、式（Ｃ－１）によって各マグネシウム源粉末のマグネシア〔ＭｇＯ〕換算のモル量を求め、各モル量を合計することによって、使用するマグネシウム源粉末のマグネシア〔ＭｇＯ〕換算のモル量を求めることができる。

[0034] ハイドロタルサイト系化合物以外のマグネシウム源としては、マグネシア（酸化マグネシウム）の粉末のほか、空気中で焼成することによりマグネシアに導かれる物質の粉末が挙げられる。後者の例としては、たとえば、マグネシウム塩、マグネシウムアルコキシド、水酸化マグネシウム、窒化マグネシウム、マグネシウムなどが挙げられる。

[0035] マグネシウム塩として具体的には、塩化マグネシウム、過塩素酸マグネシウム、リン酸マグネシウム、ピロリン酸マグネシウム、蓚酸マグネシウム、硝酸マグネシウム、炭酸マグネシウム、酢酸マグネシウム、硫酸マグネシウム、クエン酸マグネシウム、乳酸マグネシウム、ステアリン酸マグネシウム、サリチル酸マグネシウム、ミリスチン酸マグネシウム、グルコン酸マグネシウム、ジメタクリル酸マグネシウム、安息香酸マグネシウムなどが挙げられる。

[0036] マグネシウムアルコキシドとして具体的には、マグネシウムメトキシド、マグネシウムエトキシドなどが挙げられる。なお、マグネシウム源粉末は、その製造工程において不可避的に含まれる微量成分を含有し得る。

[0037] また、ハイドロタルサイト系化合物以外のマグネシウム源として、マグネシウム源とアルミニウム源とを兼ねた化合物の粉末を用いることもできる。このような化合物としては、たとえば、マグネシアスピネル（$MgAl_2O_4$）やチタン酸アルミニウムマグネシウムが挙げられる。ハイドロタルサイト系化合物以外のマグネシウム源粉末としては、１種のみが用いられてもよいし、２種以上を併用してもよい。

[0038] マグネシウム源粉末（ハイドロタルサイト系化合物粉末およびハイドロタルサイト系化合物以外のマグネシウム源粉末）の粒径は、特に限定されないが、レーザ回折法により測定される、体積基準の累積百分率５０%相当粒子径（Ｄ５０）が０．１～１０μｍであるものを好ましく用いることができる。チタン酸アルミニウムマグネシウムを効率よく生成させる観点から、マグネシウム源粉末のＤ５０は、より好ましくは０．１～２．０μｍである。

[0039] 原料混合物中における、マグネシア〔ＭｇＯ〕換算のマグネシウム源粉末の含有量は、チタニア〔TiO_2〕換算のチタニウム源粉末の使用量とアルミナ〔Al_2O_3〕換算のアルミニウム源粉末の使用量との合計量１００質量部に対して、０．１質量部～１５質量部であることが好ましく、より好ましくは０．１～１０質量部である。

[0040] 上記原料混合物は、１種以上のケイ素源粉末をさらに含有していてもよい。ケイ素源粉末は、シリコン成分となってチタン酸アルミニウム系焼成体に含まれる物質の粉末であり、ケイ素源粉末の併用により、耐熱性がより向上されたチタン酸アルミニウム系焼成体を得ることが可能となる。ケイ素源粉末としては、たとえば、二酸化ケイ素、一酸化ケイ素などの酸化ケイ素（シリカ）の粉末が挙げられる。

[0041] また、ケイ素源粉末は、空気中で焼成することによりシリカに導かれる物質の粉末であってもよい。かかる物質としては、たとえば、ケイ酸、炭化ケ

イ素、窒化ケイ素、硫化ケイ素、四塩化ケイ素、酢酸ケイ素、ケイ酸ナトリウム、オルトケイ酸ナトリウム、長石、ケイ素およびアルミニウムを含む複合酸化物、ガラスフリットなどが挙げられる。なかでも、工業的に入手が容易であることから、長石、ガラスフリットなどが好ましく用いられ、工業的に入手が容易であり、組成が安定している点で、ガラスフリットなどがより好ましく用いられる。なお、ガラスフリットとは、ガラスを粉砕して得られるフレークまたは粉末状のガラスをいう。

[0042] ケイ素源粉末としてガラスフリットを用いる場合、得られるチタン酸アルミニウム系焼成体の耐熱分解性をより向上させるという観点から、屈伏点が７００℃以上のものを用いることが好ましい。本発明において、ガラスフリットの屈伏点は、熱機械分析装置（ＴＭＡ：Ｔｈｅｒｍｏ　Ｍｅｃｈａｎｉｃａｌ　Ａｎａｌｙｓｉｓ）を用いて測定される。ガラスフリットの屈伏点は、ガラスフリットの昇温過程において、膨張が止まり、次に収縮が始まる温度（℃）と定義される。

[0043] 上記ガラスフリットを構成するガラスには、ケイ酸〔SiO_2〕を主成分（全成分中５０質量%超）とする一般的なケイ酸ガラスを用いることができる。ガラスフリットを構成するガラスは、その他の含有成分として、一般的なケイ酸ガラスと同様、アルミナ〔Al_2O_3〕、酸化ナトリウム〔Na_2O〕、酸化カリウム〔K_2O〕、酸化カルシウム〔ＣａＯ〕、マグネシア〔ＭｇＯ〕等を含んでいてもよい。また、ガラスフリットを構成するガラスは、ガラス自体の耐熱水性を向上させるために、ZrO_2を含有していてもよい。

[0044] ケイ素源粉末の粒径は、特に限定されないが、レーザ回折法により測定される、体積基準の累積百分率５０%相当粒子径（Ｄ５０）が１～２０μｍであるものを好ましく用いることができる。チタン酸アルミニウムマグネシウムを効率よく生成させる観点から、ケイ素源粉末のＤ５０は、より好ましくは５～２０μｍである。

[0045] 原料混合物がケイ素源粉末を含む場合、原料混合物中におけるSiO_2（シリカ）換算のケイ素源粉末の含有量は、Al_2O_3（アルミナ）換算でのアルミ

ニウム源粉末とＴｉO_2（チタニア）換算でのチタニウム源粉末との合計量１００質量部に対して、通常０．１質量部～１０質量部であり、好ましくは５質量部以下である。なお、ケイ素源粉末は、その製造工程において不可避的に含まれる微量成分を含有し得る。

[0046] 本発明において、シリカ〔ＳｉO_2〕換算のケイ素源粉末の質量x_4は、下記式（Ｄ）により求められる。

$x_4 = N_{40} \times x_{40}$ ・・・（Ｄ）

式（Ｄ）中、N_{40}はＳｉO_2の式量を表し、x_{40}はシリカ〔ＳｉO_2〕換算のケイ素源粉末のモル量を表す。シリカ〔ＳｉO_2〕換算のケイ素源粉末のモル量x_{40}は、下記式（Ｄ－１）により求められる。

$x_{40} = (w_4 \times M_4) / N_4$ ・・・（Ｄ－１）

式（Ｄ－１）中、w_4はケイ素源粉末の使用量（ｇ）を表し、M_4はケイ素源粉末１モル中のケイ素のモル数を表し、N_4は使用したケイ素源粉末の式量を表す。本発明において２種以上のケイ素源粉末を使用する場合、式（Ｄ－１）によって各ケイ素源粉末のシリカ〔ＳｉO_2〕換算のモル量を求め、各モル量を合計することによって、使用するケイ素源粉末のシリカ〔ＳｉO_2〕換算のモル量を求めることができる。

[0047] なお、上記のように、本発明では、マグネシアスピネル（ＭｇAl_2O_4）、チタン酸アルミニウム、チタン酸アルミニウムマグネシウム等の複合酸化物のように、チタニウム、アルミニウム、マグネシウムおよびケイ素のうち、２つ以上の金属元素を成分とする化合物を原料粉末として用いることができる。この場合、そのような化合物の使用は、それぞれの金属源化合物粉末を混合したことと同じであると考えることができ、このような考えに基づき、原料混合物中におけるアルミニウム源粉末、チタニウム源粉末、マグネシウム源粉末およびケイ素源粉末の含有量が上記範囲内に調整される。

[0048] 上記原料混合物は、たとえば、チタニウム源粉末、アルミニウム源粉末、マグネシウム源粉末および任意で使用されるケイ素源粉末を混合することにより得ることができる。混合には、通常用いられる混合機を用いることがで

き、たとえば、ナウター混合機、レーディゲミキサー混合機などの攪拌混合機；フラッシュブレンダーなどのエアー混合機；ボールミル、振動ミルなどを用いることができる。混合方法は、乾式混合、湿式混合のいずれでもよい。

[0049] 乾式混合を行なう場合、たとえば、チタニウム源粉末、アルミニウム源粉末、マグネシウム源粉末および任意で使用されるケイ素源粉末を混合し、液体媒体中に分散させることなく、粉砕容器内で撹拌すればよく、通常、粉砕メディアの共存下に粉砕容器内で撹拌する。

[0050] 粉砕容器としては、通常、ステンレス鋼などの金属材料で構成されたものが用いられ、内表面がフッ素樹脂、シリコン樹脂、ウレタン樹脂などでコーティングされていてもよい。粉砕容器の内容積は、原料粉末（チタニウム源粉末、アルミニウム源粉末、マグネシウム源粉末および任意で使用されるケイ素源粉末）ならびに粉砕メディアの合計容積に対して、通常、１容量倍～４容量倍、好ましくは１．２容量倍～３容量倍である。

[0051] 粉砕メディアとしては、たとえば、粒子径１ｍｍ～１００ｍｍ、好ましくは５ｍｍ～５０ｍｍのアルミナビーズ、ジルコニアビーズなどが挙げられる。粉砕メディアの使用量は、原料粉末の合計使用量に対して通常、１質量倍～１０００質量倍、好ましくは５質量倍～１００質量倍である。

[0052] 原料粉末の混合・粉砕は、たとえば、粉砕容器内に、上記原料粉末および粉砕メディアを投入した後、粉砕容器を振動させたり、回転させたり、あるいはその両方により行なうことができる。粉砕容器を振動または回転させることにより、原料粉末が粉砕メディアと共に撹拌されて混合されると共に、粉砕される。粉砕容器を振動または回転させるためには、たとえば、振動ミル、ボールミル、遊星ミルなどのような通常の粉砕機を用いることができ、工業的規模での実施が容易である点で、振動ミルが好ましく用いられる。粉砕容器を振動させる場合、その振幅は、通常、２ｍｍ～２０ｍｍ、好ましくは１２ｍｍ以下である。混合・粉砕は、連続式で行なってもよいし、回分式で行なってもよいが、工業的規模での実施が容易である点で、連続式で行な

うことが好ましい。混合・粉砕に要する時間は、通常、１分～６時間、好ましくは１．５分～２時間である。

[0053] 原料粉末を乾式にて混合および粉砕するにあたっては、粉砕助剤、解膠剤などの添加剤を加えてもよい。粉砕助剤としては、たとえば、モノオール類（メタノール、エタノール、プロパノールなど）、グリコール類（プロピレングリコール、ポリプロピレングリコール、エチレングリコールなど）などのアルコール類；トリエタノールアミンなどのアミン類；パルチミン酸、ステアリン酸、オレイン酸などの高級脂肪酸類；カーボンブラック、グラファイトなどの炭素材料などが挙げられる。これらはそれぞれ単独または２種以上を組み合わせて用いられる。

[0054] 添加剤を用いる場合、その合計使用量は、原料粉末の合計使用量、すなわちチタニウム源粉末、アルミニウム源粉末、マグネシウム源粉末およびケイ素源粉末の合計使用量１００質量部に対して、通常、０．１～１０質量部、好ましくは０．５～５質量部、さらに好ましくは０．７５～２質量部である。

[0055] 一方、湿式で混合するには、たとえば、チタニウム源粉末、アルミニウム源粉末、マグネシウム源粉末および任意で使用されるケイ素源粉末を溶媒中に分散させた状態で混合すればよい。混合方法としては、液体溶媒中の攪拌処理でもよいし、粉砕メディアの共存下に粉砕容器内で撹拌してもよい。粉砕メディアおよび粉砕容器、ならびに粉砕機としては、上記したものを用いることができる。粉砕メディアの共存下に、粉砕容器内で混合・粉砕する場合、乾式混合の場合と同様、粉砕助剤等の添加剤が併用されてもよい。

[0056] 上記溶媒としては、たとえば、モノオール類（メタノール、エタノール、プロパノール、ブタノールなど）、グリコール類（プロピレングリコール、ポリプロピレングリコール、エチレングリコールなど）などのアルコール類；および水などを用いることができる。なかでも、水が好ましく、不純物が少ない点で、より好ましくはイオン交換水が用いられる。溶媒の使用量は、チタニウム源粉末、アルミニウム源粉末、マグネシウム源粉末およびケイ素

源粉末の合計量１００質量部に対して、通常、２０質量部～１０００質量部、好ましくは３０質量部～３００質量部である。

[0057] 湿式で混合するに際して、溶媒には分散剤を添加してもよい。分散剤としては、たとえば、硝酸、塩酸、硫酸などの無機酸；シュウ酸、クエン酸、酢酸、リンゴ酸、乳酸などの有機酸；メタノール、エタノール、プロパノールなどのアルコール類；ポリカルボン酸アンモニウムなどの界面活性剤などが挙げられる。分散剤を使用する場合、その使用量は溶媒１００質量部あたり、通常、０．１質量部～２０質量部、好ましくは０．２質量部～１０質量部である。

[0058] 湿式混合においては、混合後、溶媒を除去することにより、原料混合物を得ることができる。溶媒の除去は、通常、溶媒を留去することにより行なわれる。溶媒を留去する方法としては特に限定されず、室温にて風乾してもよいし、真空乾燥してもよいし、加熱乾燥をしてもよい。乾燥方法は静置乾燥でもよいし、流動乾燥でもよい。加熱乾燥をする際の温度は特に限定されないが、通常、５０℃以上２５０℃以下である。加熱乾燥に用いられる機器としては、たとえば、棚段乾燥機、スラリードライヤー、スプレードライヤーなどが挙げられる。

[0059] なお、湿式で混合するにあたり、用いるアルミニウム源粉末等の種類によっては溶媒に溶解することもあるが、溶媒に溶解したアルミニウム源粉末等は、溶媒留去により、再び固形分となって析出する。

[0060] 本発明においては、上記アルミニウム源粉末、チタニウム源粉末、マグネシウム源粉末および任意で使用されるケイ素源粉末を含む原料混合物を成形して成形体を得た後、当該成形体を焼成することにより、チタン酸アルミニウム系焼成体を得る。成形してから焼成を行なうことにより、原料混合物を直接焼成する場合と比較して、焼成中の収縮を抑えることができることから、得られるチタン酸アルミニウム系焼成体の割れを効果的に抑制でき、また、焼成により生成した多孔質性のチタン酸アルミニウム結晶の細孔形状が維持されたチタン酸アルミニウム系焼成体を得ることができる。成形体の形状

は特に制限されないが、たとえば、ハニカム形状、棒状、チューブ状、板状、るつぼ形状等を挙げることができる。

[0061] 原料混合物の成形に用いる成形機としては、一軸プレス、押出成形機、打錠機、造粒機などが挙げられる。押出し成形を行なう際には、原料混合物に、たとえば、造孔剤、潤滑剤および可塑剤、分散剤、ならびに溶媒などの添加剤を添加して成形することができる。また、押出し成形を行なう際には、原料混合物に、バインダを添加してもよいが、本発明においては、バインダを添加しなくても、あるいはバインダの添加量が僅少な場合であっても、良好な機械的特性を有するチタン酸アルミニウム系焼成体を作製することができる。なお、物質によっては造孔剤とバインダの両方の役割を兼ねるものがある。このような物質は、成形時には粒子同士を接着して成形体を保形させることができ、その後の焼成時にそれ自身が燃焼して空孔を形成させることができるものであり、具体的にはポリエチレンなどが該当し得る。

[0062] 上記造孔剤としては、グラファイト等の炭素材；ポリエチレン、ポリプロピレン、ポリメタクリル酸メチル等の樹脂類；でんぷん、ナッツ殻、クルミ殻、コーンなどの植物系材料；氷；およびドライアイス等などが挙げられる。造孔剤の添加量は、アルミニウム源粉末、チタニウム源粉末、マグネシウム源粉末およびケイ素源粉末の合計量１００質量部に対して、通常、０～４０質量部であり、好ましくは０～２５質量部である。

[0063] 上記潤滑剤および可塑剤としては、グリセリンなどのアルコール類；カプリル酸、ラウリン酸、パルミチン酸、アラギン酸、オレイン酸、ステアリン酸などの高級脂肪酸；ステアリン酸アルミニウムなどのステアリン酸金属塩などが挙げられる。潤滑剤および可塑剤の添加量は、アルミニウム源粉末、チタニウム源粉末、マグネシウム源粉末およびケイ素源粉末の合計量１００質量部に対して、通常、０～１０質量部であり、好ましくは１～５質量部である。

[0064] 上記分散剤としては、たとえば、硝酸、塩酸、硫酸などの無機酸；シュウ酸、クエン酸、酢酸、リンゴ酸、乳酸などの有機酸；メタノール、エタノー

ル、プロパノールなどのアルコール類；ポリカルボン酸アンモニウム、ポリオキシアルキレンアルキルエーテルなどの界面活性剤などが挙げられる。分散剤の添加量は、アルミニウム源粉末、チタニウム源粉末、マグネシウム源粉末およびケイ素源粉末の合計量１００質量部に対して、通常、０～２０質量部であり、好ましくは２～８質量部である。

[0065] また、上記溶媒としては、たとえば、モノオール類（メタノール、エタノール、ブタノール、プロパノールなど）、グリコール類（プロピレングリコール、ポリプロピレングリコール、エチレングリコールなど）などのアルコール類；および水などを用いることができる。なかでも、水が好ましく、不純物が少ない点で、より好ましくはイオン交換水が用いられる。溶媒の使用量は、アルミニウム源粉末、チタニウム源粉末、マグネシウム源粉末およびケイ素源粉末の合計量１００質量部に対して、通常、１０質量部～１００質量部、好ましくは２０質量部～８０質量部である。

[0066] 上記バインダとしては、メチルセルロース、カルボキシルメチルセルロース、ナトリウムカルボキシルメチルセルロースなどのセルロース類；ポリビニルアルコールなどのアルコール類；リグニンスルホン酸塩などの塩；パラフィンワックス、マイクロクリスタリンワックス等のワックス；ＥＶＡ、ポリエチレン、ポリスチレン、液晶ポリマー、エンジニアリングプラスチックなどの熱可塑性樹脂などが挙げられる。バインダの添加量は、アルミニウム源粉末、チタニウム源粉末、マグネシウム源粉末およびケイ素源粉末の合計量１００質量部に対して、０．３質量部以下であることが好ましい。バインダを添加する場合、バインダは焼成されることによってCO_2やH_2Oのガス成分となって焼成体の外へ飛散するが、バインダが焼成、除去された後は空隙が存在し、焼成体の機械的強度に悪影響を与える場合がある。このような観点からバインダは添加しないことがより好ましい。

[0067] 成形体の焼成における焼成温度は、通常、１３００℃以上、好ましくは１４００℃以上である。また、生成されるチタン酸アルミニウム系焼成体を加工しやすいものにするため、焼成温度は、通常、１６５０℃以下、好ましく

は１６００℃以下、より好ましくは１５５０℃以下である。焼成温度までの昇温速度は特に限定されるものではないが、通常、２℃／時間～５００℃／時間である。ケイ素源粉末を用いる場合には、焼成工程の前に、１１００～１３００℃の温度範囲で３時間以上保持する工程を設けることが好ましい。これにより、ケイ素源粉末の融解、拡散を促進させることができる。原料混合物がバインダ等を含む場合、焼成工程には、これを除去するための脱脂工程が含まれる。脱脂は、典型的には、焼成温度に至るまでの昇温段階（たとえば、１５０～４００℃の温度範囲）になされる。脱脂工程おいては、昇温速度を極力おさえることが好ましい。

[0068] 焼成は通常、大気中で行なわれるが、用いる原料粉末（すなわちアルミニウム源粉末、チタニウム源粉末、マグネシウム源粉末およびケイ素源粉末）の種類や使用量比によっては、窒素ガス、アルゴンガスなどの不活性ガス中で焼成してもよいし、一酸化炭素ガス、水素ガスなどのような還元性ガス中で焼成してもよい。また、水蒸気分圧を低くした雰囲気中で焼成を行なってもよい。

[0069] 焼成は、通常、管状電気炉、箱型電気炉、トンネル炉、遠赤外線炉、マイクロ波加熱炉、シャフト炉、反射炉、ロータリー炉、ローラーハース炉などの通常の焼成炉を用いて行なわれる。焼成は回分式で行なってもよいし、連続式で行なってもよい。また、静置式で行なってもよいし、流動式で行なってもよい。

[0070] 焼成に要する時間は、原料混合物の成形体がチタン酸アルミニウムマグネシウム結晶に遷移するのに十分な時間であればよく、原料混合物の量、焼成炉の形式、焼成温度、焼成雰囲気などにより異なるが、通常は１０分～７２時間である。

[0071] 以上のようにして、チタン酸アルミニウム系焼成体を得ることができる。このようなチタン酸アルミニウム系焼成体は、成形直後の成形体の形状をほぼ維持した形状を有する。得られたチタン酸アルミニウム系焼成体は、研削加工等により、所望の形状に加工することもできる。

[0072] 本発明により得られるチタン酸アルミニウム系焼成体は、Ｘ線回折スペクトルにおいて、チタン酸アルミニウムマグネシウムの結晶パターンを含むものであるが、そのほかに、たとえばシリカ、アルミナ、チタニアなどの結晶パターンを含んでいてもよい。本発明のチタン酸アルミニウム系焼成体は、組成式：$Al_{2(1-x)}Mg_xTi_{(1+x)}O_5$で表すことができる。ｘの値は０．０１以上であり、好ましくは０．０１以上０．７以下、より好ましくは０．０２以上０．５以下である。

実施例

[0073] 以下、本発明を実施例によりさらに詳細に説明するが、本発明はこれらに限定されるものではない。なお、得られたチタン酸アルミニウム系焼成体のチタン酸アルミニウム化率（ＡＴ化率）、三点曲げ強度、および用いた原料粉末のＤ５０は、下記方法により測定した。

[0074] （１）ＡＴ化率

チタン酸アルミニウム化率（ＡＴ化率）は、粉末Ｘ線回折スペクトルにおける2θ＝２７．４°の位置に現れるピーク〔チタニア・ルチル相（１１０）面に帰属される〕の積分強度（I_T）と、2θ＝３３．７°の位置に現れるピーク〔チタン酸アルミニウムマグネシウム相（２３０）面に帰属される〕の積分強度（I_{AT}）とから、下記式により算出した。

ＡＴ化率＝I_{AT}／（I_T＋I_{AT}）×１００（％）

（２）三点曲げ強度

各実施例および比較例で得られたチタン酸アルミニウム系焼成体の三点曲げ強度を、ＪＩＳ　Ｒ　１６０１に準じて測定し、その機械的強度を評価した。

[0075] （３）原料粉末の粒度分布

体積基準の累積百分率５０％相当粒子径（Ｄ５０）は、レーザ回折式粒度分布測定装置〔日機装社製「Ｍｉｃｒｏｔｒａｃ　ＨＲＡ（Ｘ－１００）」〕を用いて測定した。

[0076] ＜実施例１＞

原料粉末および添加剤として以下のものを用いた。下記に示す「質量部」は、原料粉末（アルミニウム源粉末、チタニウム源粉末、マグネシウム源粉末およびケイ素源粉末）、添加剤、ならびに水の合計量を１００質量部としたときの値である。下記の原料粉末の仕込み組成は、アルミナ〔Al_2O_3〕、チタニア〔TiO_2〕、マグネシア〔ＭｇＯ〕およびシリカ〔SiO_2〕換算のモル比で、〔Al_2O_3〕／〔TiO_2〕／〔ＭｇＯ〕／〔SiO_2〕＝３４．３％／５０．２％／９．４％／６．１％である。

（１）アルミニウム源粉末

酸化アルミニウム粉末（α型結晶、Ｄ５０：０．５μｍ）

１９．５質量部

（２）チタニウム源粉末

酸化チタン粉末（ルチル型結晶、Ｄ５０：０．５μｍ）

２４．３質量部

（３）マグネシウム源粉末

ハイドロタルサイト類化合物粉末（協和化学工業（株）、「ＤＨＴ－４Ａ」、Ｄ５０：０．４μｍ）

３．６質量部

（４）ケイ素源粉末

ガラスフリット（タカラスタンダード社製「ＣＫ０８３２」、Ｄ５０：６．０μｍ）

２．０質量部

（５）添加剤

バインダ（ポリビニルアルコール）

０．１質量部

（６）水

５０．５質量部

上記アルミニウム源粉末、チタニウム源粉末、マグネシウム源粉末、ケイ素源粉末、添加剤および水（合計量１９８ｇ）を、アルミナビーズ〔直径１

５ｍｍ〕５００ｇと共にプラスチック製容器〔内容積１Ｌ〕に投入した。その後、該容器をボールミルにより振動数３０Ｈｚにて４時間回転させることにより、容器内の原料を混合し、前駆体混合物を得た。得られた前駆体混合物を１２０℃で、４時間乾燥させた後、乳鉢を用いて解砕し、原料混合物を得た。得られた原料混合物の２ｇを一軸プレスにて０．３ｔ／ｃｍ^{2}の圧力下で成形することにより、長さ約５０ｍｍ、幅約５ｍｍ、厚さ約４ｍｍの成形体を作製した。次に、この成形体を箱型電気炉にて昇温速度３００℃／ｈで１４５０℃まで昇温し、同温度で４時間保持することにより、チタン酸アルミニウムマグネシウム焼成体を得た。得られた焼成体を組成式：$Al_{2(1-x)}Mg_xTi_{(1+x)}O_5$で表した時のｘの値は０．２４であった。

[0077] 得られた焼成体を乳鉢にて解砕し、粉末Ｘ線回折法により、得られた粉末の回折スペクトルを測定したところ、この粉末は、チタン酸アルミニウムマグネシウムの結晶ピークを示した。この粉末のＡＴ化率を求めたところ、１００％であった。また、焼成体の三点曲げ強度は、１０ＭＰａであり、良好な機械的強度を示した。

[0078] ＜実施例２＞

バインダ（ポリビニルアルコール）を添加しなかったこと以外は実施例１と同様にしてチタン酸アルミニウムマグネシウム焼成体を得た。

[0079] 得られた焼成体を乳鉢にて解砕し、粉末Ｘ線回折法により、得られた粉末の回折スペクトルを測定したところ、この粉末は、チタン酸アルミニウムマグネシウムの結晶ピークを示した。この粉末のＡＴ化率を求めたところ、１００％であった。また、焼成体の三点曲げ強度は、１２ＭＰａであり、良好な機械的強度を示した。

[0080] ＜比較例１＞

原料粉末として以下のものを用いた。下記に示す「質量部」は、原料粉末（アルミニウム源粉末、チタニウム源粉末、マグネシウム源粉末およびケイ素源粉末）、ならびに水の合計量を１００質量部としたときの値である。下記の原料粉末の仕込み組成は、アルミナ〔Al_2O_3〕、チタニア〔TiO_2〕、

マグネシア〔ＭｇＯ〕およびシリカ〔SiO_2〕換算のモル比で、〔Al_2O_3〕／〔TiO_2〕／〔ＭｇＯ〕／〔SiO_2〕＝３４．３％／５０．２％／９．４％／６．１％である。

（１）アルミニウム源粉末

酸化アルミニウム粉末（α型結晶、Ｄ５０：０．５μｍ）

１４．６質量部

（２）チタニウム源粉末

酸化チタン粉末（ルチル型結晶、Ｄ５０：０．５μｍ）

２５．１質量部

（３）マグネシウム源粉末

マグネシアスピネル粉末（Ｄ５０：５．５μｍ）

９．３質量部

（４）ケイ素源粉末

ガラスフリット（タカラスタンダード社製「ＣＫ０８３２」、Ｄ５０：６．０μｍ）

２．０質量部

（５）水

４９．０質量部

上記アルミニウム源粉末、チタニウム源粉末、マグネシウム源粉末、ケイ素源粉末および水（合計量２０４ｇ）を、アルミナビーズ〔直径１５ｍｍ〕５００ｇと共にプラスチック製容器〔内容積１Ｌ〕に投入した。その後、該容器をボールミルにより振動数３０Ｈｚにて４時間回転させることにより、容器内の原料を混合し、前駆体混合物を得た。得られた前駆体混合物を１２０℃で、４時間乾燥させた後、乳鉢を用いて解砕し、原料混合物を得た。得られた原料混合物の２ｇを一軸プレスにて０．３ｔ／ｃm^2の圧力下で成形することにより、長さ約５０ｍｍ、幅約５ｍｍ、厚さ約４ｍｍの成形体を作製した。次に、この成形体を箱型電気炉にて昇温速度３００℃／ｈで１４５０℃まで昇温し、同温度で４時間保持することにより、チタン酸アルミニウム

マグネシウム焼成体を得た。得られた焼成体を組成式：$Al_{2(1-x)}Mg_xTi_{(1+x)}O_5$で表した時のｘの値は０．２４であった。

[0081] 得られた焼成体を乳鉢にて解砕し、粉末Ｘ線回折法により、得られた粉末の回折スペクトルを測定したところ、この粉末は、チタン酸アルミニウムマグネシウムの結晶ピークを示した。この粉末のＡＴ化率を求めたところ、１００％であった。また、焼成体の三点曲げ強度は、７．５ＭＰａであり、機械的強度が低いことが確認された。

[0082] 今回開示された実施の形態および実施例はすべての点で例示であって制限的なものではないと考えられるべきである。本発明の範囲は上記した説明ではなくて特許請求の範囲によって示され、特許請求の範囲と均等の意味および範囲内でのすべての変更が含まれることが意図される。

産業上の利用可能性

[0083] 本発明により得られるチタン酸アルミニウム系焼成体は、たとえば、ルツボ、セッター、コウ鉢、炉材などの焼成炉用冶具；ディーゼルエンジン、ガソリンエンジンなどの内燃機関の排気ガス浄化に用いられる排ガスフィルターや、触媒担体、ビールなどの飲食物の濾過に用いる濾過フィルター、石油精製時に生じるガス成分、たとえば一酸化炭素、二酸化炭素、窒素、酸素などを選択的に透過させるための選択透過フィルターなどのセラミックスフィルター；基板、コンデンサーなどの電子部品などに好適に適用することができる。

請求の範囲

[請求項1] アルミニウム源粉末、チタニウム源粉末およびマグネシウム源粉末を含む原料混合物の成形体を焼成する工程を備え、

前記マグネシウム源粉末は、ハイドロタルサイト系化合物を含有するチタン酸アルミニウム系焼成体の製造方法。

[請求項2] 前記原料混合物は、前記アルミニウム源粉末、前記チタニウム源粉末および前記マグネシウム源粉末の合計量１００質量部に対して、０．３質量部以下のバインダを含む請求項１に記載の方法。

[請求項3] マグネシウム源粉末中の、ハイドロタルサイト系化合物以外のマグネシウム源の含有量は、ＭｇＯ換算で４０質量%以下である請求項１または２に記載の方法。

[請求項4] ＭｇＯ換算のマグネシウム源粉末の使用量は、TiO_2換算のチタニウム源粉末の使用量とAl_2O_3換算のアルミニウム源粉末の使用量との合計量１００質量部に対して０．１～１５質量部である請求項１～３のいずれかに記載の方法。

[請求項5] マグネシウム源粉末の体積基準の累積百分率５０%相当粒子径（Ｄ５０）が０．１～１０μｍである請求項１～４のいずれかに記載の方法。

[請求項6] TiO_2換算のチタニウム源粉末の使用量は、TiO_2換算のチタニウム源粉末の使用量とAl_2O_3換算のアルミニウム源粉末の使用量との合計量１００質量部に対して３０～７０質量部である請求項１～５のいずれかに記載の方法。

[請求項7] アルミニウム源粉末の体積基準の累積百分率５０%相当粒子径（Ｄ５０）が０．１～５０μｍである請求項１～６のいずれかに記載の方法。

[請求項8] チタニウム源粉末の体積基準の累積百分率５０%相当粒子径（Ｄ５０）が０．１～５０μｍである請求項１～７のいずれかに記載の方法。

[請求項9] 前記原料混合物は、ケイ素源粉末をさらに含む請求項１～８のいずれかに記載の方法。

[請求項10] ＳｉＯ$_2$換算のケイ素源粉末の使用量は、ＴｉＯ$_2$換算のチタニウム源粉末の使用量とＡｌ$_2$Ｏ$_3$換算のアルミニウム源粉末の使用量との合計量１００質量部に対して０．１～１０質量部である請求項９に記載の方法。

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.
PCT/JP2010/052280

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER
C04B35/46(2006.01)i, *B01D39/20*(2006.01)i, *C01G23/00*(2006.01)i

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)
C04B35/46, B01D39/20, C01G23/00

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

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

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	WO 2005/095302 A1 (NGK Insulators, Ltd.), 13 October 2005 (13.10.2005), claims; paragraphs [0004], [0005], [0025], [0027], [0053]; tables 2 to 4, batch no. 47 to 51 & US 2005/0221974 A1 & US 2006/0035778 A1 & EP 1736457 A1 & CN 1956936 A	1-10
A	WO 2005/105704 A1 (Ohcera Co., Ltd.), 11 October 2005 (11.10.2005), claims; paragraphs [0018], [0021], [0024], [0031] & US 2007/0224110 A1 & EP 1741684 A1 & CA 2563600 A & KR 10-2007-0012365 A & CN 1946653 A	1-10

☒ 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	Date of mailing of the international search report
15 April, 2010 (15.04.10)	27 April, 2010 (27.04.10)
Name and mailing address of the ISA/ Japanese Patent Office Facsimile No.	Authorized officer Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.
PCT/JP2010/052280

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 2007-1836 A (NGK Insulators, Ltd.), 11 January 2007 (11.01.2007), claims; paragraphs [0047], [0049] & US 2006/0290036 A1	1-10
A	JP 2001-139369 A (Tsutomu FUKUDA), 22 May 2001 (22.05.2001), claims; paragraphs [0008], [0011] & US 6403019 B1 & EP 1156023 A1 & DE 60013408 T & CA 2325172 A & TW 548254 B & AT 275114 T & KR 10-2001-0051471 A	1-10
A	JP 2003-507303 A (Akzo Nobel N.V.), 25 February 2003 (25.02.2003), claims; paragraphs [0009], [0010], [0016] & US 6589902 B1 & EP 1206424 A & WO 2001/012570 A1 & DE 60037519 D & BR 13137 A & CA 2381391 A & CN 1371341 A & AT 381520 T	1-10
A	JP 58-15028 A (Iwatani & Co., Ltd.), 28 January 1983 (28.01.1983), claims; page 2, upper right column, lines 2 to 4 (Family: none)	1-10

国際調査報告

国際出願番号　ＰＣＴ／ＪＰ２０１０／０５２２８０

Ａ．　発明の属する分野の分類（国際特許分類（ＩＰＣ））

Int.Cl.　C04B35/46(2006.01)i, B01D39/20(2006.01)i, C01G23/00(2006.01)i

Ｂ．　調査を行った分野

調査を行った最小限資料（国際特許分類（ＩＰＣ））

Int.Cl.　C04B35/46, B01D39/20, C01G23/00

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	１９７１－２０１０年
日本国実用新案登録公報	１９９６－２０１０年
日本国登録実用新案公報	１９９４－２０１０年

国際調査で使用した電子データベース（データベースの名称、調査に使用した用語）

Ｃ．　関連すると認められる文献

引用文献のカテゴリー＊	引用文献名　及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する請求項の番号
X	WO 2005/095302 A1（日本碍子株式会社）2005.10.13, 特許請求の範囲、【０００４】,【０００５】、【００２５】、【００２７】,【００５３】、表２～４バッチＮｏ．４７－５１ & US 2005/0221974 A1 & US 2006/0035778 A1 & EP 1736457 A1 & CN 1956936 A	1-10
A	WO 2005/105704 A1（オーセラ株式会社）2005.10.11, 特許請求の範囲、【００１８】、【００２１】、【００２４】、【００３１】 & US 2007/0224110 A1 & EP 1741684 A1 & CA 2563600 A & KR 10-2007-0012365 A & CN 1946653 A	1-10

☑　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 １５．０４．２０１０	国際調査報告の発送日 ２７．０４．２０１０
国際調査機関の名称及びあて先 日本国特許庁（ＩＳＡ／ＪＰ） 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）　４Ｔ　９２７０ 小川　武 電話番号　０３－３５８１－１１０１　内線　３４６５

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 2007-1836 A（日本碍子株式会社）2007.01.11，特許請求の範囲、【００４７】、【００４９】 & US 2006/0290036 A1	1-10
A	JP 2001-139369 A（福田　勉）2001.05.22，特許請求の範囲、【０００８】、【００１１】 & US 6403019 B1 & EP 1156023 A1 & DE 60013408 T & CA 2325172 A & TW 548254 B & AT 275114 T & KR 10-2001-0051471 A	1-10
A	JP 2003-507303 A（アクゾ　ノーベル　ナムローゼ　フェンノートシャップ）2003.02.25，特許請求の範囲、【０００９】，【００１０】、【００１６】 & US 6589902 B1 & EP 1206424 A & WO 2001/012570 A1 & DE 60037519 D & BR 13137 A & CA 2381391 A & CN 1371341 A & AT 381520 T	1-10
A	JP 58-15028 A（岩谷産業株式会社）1983.01.28，特許請求の範囲、２頁右上欄２－４行（ファミリーなし）	1-10