

【公報種別】特許法第17条の2の規定による補正の掲載

【部門区分】第3部門第1区分

【発行日】平成26年10月30日(2014.10.30)

【公開番号】特開2012-211070(P2012-211070A)

【公開日】平成24年11月1日(2012.11.1)

【年通号数】公開・登録公報2012-045

【出願番号】特願2012-43206(P2012-43206)

【国際特許分類】

C 01B 33/18 (2006.01)

【F I】

C 01B 33/18 E

【手続補正書】

【提出日】平成26年9月10日(2014.9.10)

【手続補正1】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0022

【補正方法】変更

【補正の内容】

【0022】

本発明の第13の観点は、第10の観点に基づく発明であって、更に造粒工程が、ヒュームドシリカを用いてシリカ質のゲルを生成させ、このシリカ質のゲルを乾燥して乾燥粉とし、この乾燥粉を粉碎した後、分級することにより平均粒径D₅₀が10～3000μmのシリカ粉末を得る工程であるとき、得られる合成非晶質シリカ粉末の炭素濃度が2ppm未満、塩素濃度が2ppm未満であることを特徴とする。

【手続補正2】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0055

【補正方法】変更

【補正の内容】

【0055】

第2の方法としては、有機系シリコン化合物としてテトラメトキシシラン1molに対して、超純水0.5～3mol、エタノール0.5～3molを準備する。準備した超純水、エタノールを容器内に入れ、窒素、アルゴン等の雰囲気にて、温度を60℃に保持して攪拌しながら、テトラメトキシシランを添加して加水分解させる。テトラメトキシシランを添加してから5～120分間、攪拌した後、テトラメトキシシラン1molに対して1～50molの超純水を更に添加し、1～12時間攪拌を継続し、シリカ質のゲルを生成させる。このとき、攪拌速度は100～300rpmの範囲にするのが好ましい。次に、上記シリカ質のゲルを乾燥用容器に移しこれを乾燥機に入れ、乾燥機内に好ましくは10～20L/minの流量で窒素、アルゴン等を流しながら、200～300℃の温度で6～48時間乾燥させて乾燥粉を得る。次に、この乾燥粉を乾燥機から取り出し、ロールクラッシャー等の粉碎機を用いて、粉碎する。ロールクラッシャーを用いる場合は、ロール隙間0.2～2.0mm、ロール回転数3～200rpmに適宜調整して行う。最後に、粉碎した乾燥粉を振動フルイ等を用いて分級することにより、平均粒径D₅₀が10～3000μm、好ましくは70～1300μmのシリカ粉末が得られる。

【手続補正3】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0067

【補正方法】変更

【補正の内容】**【0067】****<実施例2>**

先ず、テトラメトキシシラン1molに対して、超純水1mol、エタノール1molを準備した。準備した超純水、エタノールを容器内に入れ、窒素雰囲気にて、温度を60℃に保持して攪拌しながら、テトラメトキシシランを添加して加水分解させた。テトラメトキシシランを添加してから60分間、攪拌した後、テトラメトキシシラン1molに対して25molの超純水を更に添加し、6時間攪拌を継続し、シリカ質のゲルを生成させた。このとき、攪拌速度は100rpmとした。次に、上記シリカ質のゲルを乾燥用容器に移しこれを乾燥機に入れ、乾燥機内に20L/minの流量で窒素を流しながら、200℃の温度で24時間乾燥させて乾燥粉を得た。この乾燥粉を乾燥機から取り出し、ロールクラッシャーを用いて粉碎した。このときロール隙間を0.2mm、ロール回転数を55rpmに調整して行った。粉碎した乾燥粉を目開き100μm及び目開き175μmの振動フルイを用いて分級し、平均粒径D₅₀が135μmのシリカ粉末を得た。

【手続補正4】**【補正対象書類名】明細書****【補正対象項目名】0087****【補正方法】変更****【補正の内容】****【0087】****<比較例3>**

先ず、テトラメトキシシラン1molに対して、超純水1mol、エタノール1molを準備した。準備した超純水、エタノールを容器内に入れ、窒素雰囲気にて、温度を60℃に保持して攪拌しながら、テトラメトキシシランを添加して加水分解させた。テトラメトキシシランを添加してから60分間、攪拌した後、テトラメトキシシラン1molに対して25molの超純水を更に添加し、6時間攪拌を継続し、シリカ質のゲルを生成させた。このとき、攪拌速度は100rpmとした。次に、上記シリカ質のゲルを乾燥用容器に移しこれを乾燥機に入れ、乾燥機内に20L/minの流量で窒素を流しながら、200℃の温度で24時間乾燥させて乾燥粉を得た。この乾燥粉を乾燥機から取り出し、ロールクラッシャーを用いて粉碎した。このときロール隙間を0.2mm、ロール回転数を55rpmに調整して行った。粉碎した乾燥粉を目開き75μm及び目開き150μmの振動フルイを用いて分級し、平均粒径D₅₀が126μmのシリカ粉末を得た。

【手続補正5】**【補正対象書類名】明細書****【補正対象項目名】0113****【補正方法】変更****【補正の内容】****【0113】****<比較例10>**

先ず、テトラメトキシシラン1molに対して、超純水1mol、エタノール1molを準備した。準備した超純水、エタノールを容器内に入れ、窒素雰囲気にて、温度を60℃に保持して攪拌しながら、テトラメトキシシランを添加して加水分解させた。テトラメトキシシランを添加してから60分間、攪拌した後、テトラメトキシシラン1molに対して25molの超純水を更に添加し、6時間攪拌を継続し、シリカ質のゲルを生成させた。このとき、攪拌速度は100rpmとした。次に、上記シリカ質のゲルを乾燥用容器に移しこれを乾燥機に入れ、乾燥機内に20L/minの流量で窒素を流しながら、200℃の温度で24時間乾燥させて乾燥粉を得た。この乾燥粉を乾燥機から取り出し、ロールクラッシャーを用いて粉碎した。このときロール隙間を0.6mm、ロール回転数を100rpmに調整して行った。粉碎した乾燥粉を目開き550μm及び目開き650μmの振動フルイを用いて分級し、平均粒径D₅₀が590μmのシリカ粉末を得た。

【手続補正6】**【補正対象書類名】**明細書**【補正対象項目名】**0133**【補正方法】**変更**【補正の内容】****【0133】**

上記、造粒した粉末を、石英製容器に入れて、大気雰囲気にて1400、72時間焼成を行い、平均粒径D₅₀が625μmのシリカ粉末を得た。

【手続補正7】**【補正対象書類名】**明細書**【補正対象項目名】**0142**【補正方法】**変更**【補正の内容】****【0142】**

<実施例10>

先ず、テトラメトキシシラン1molに対して、超純水0.5mol、エタノール0.5molを準備した。準備した超純水、エタノールを容器内に入れ、窒素雰囲気にて、温度を60に保持して攪拌しながら、テトラメトキシシランを添加して加水分解させた。テトラメトキシシランを添加してから120分間、攪拌した後、テトラメトキシシラン1molに対して20molの超純水を更に添加し、6時間攪拌を継続し、シリカ質のゲルを生成させた。このとき、攪拌速度は150rpmとした。次に、上記シリカ質のゲルを乾燥用容器に移しこれを乾燥機に入れ、乾燥機内に10L/minの流量で窒素を流しながら、250の温度で24時間乾燥させて乾燥粉を得た。この乾燥粉を乾燥機から取り出し、ロールクラッシャーを用いて粉碎した。このときロール隙間を0.2mm、ロール回転数を60rpmに調整して行った。粉碎した乾燥粉を目開き75μm及び目開き250μmの振動フルイを用いて分級し、平均粒径D₅₀が132μmのシリカ粉末を得た。

【手続補正8】**【補正対象書類名】**明細書**【補正対象項目名】**0178**【補正方法】**変更**【補正の内容】****【0178】**

上記、造粒した粉末を、石英製容器に入れて、大気雰囲気にて1400、72時間焼成を行い、平均粒径D₅₀が623μmのシリカ粉末を得た。

【手続補正9】**【補正対象書類名】**明細書**【補正対象項目名】**0187**【補正方法】**変更**【補正の内容】****【0187】**

【表2】

| | シリカ粉末 | | 球状化処理条件 | | | | | |
|-------|-----------|---------------------------|---------|-----------------|----------------|-------------------|-----------------|----------------------|
| | 原料 | 平均粒径D50 [μm] | | 高周波周波数 [MHz] | 高周波出力A [kW] | Arガス流量 [L/min] | 酸素流量 [L/min] | 原料粉末供給速度B [kg/hr] |
| | | 焼成前 | 焼成後 | | | | | |
| 実施例5 | ヒュームドシリカ | 132 | 91 | 4 | 90 | 70 | 35 | 9.2 |
| 実施例6 | ヒュームドシリカ | 136 | 95 | 4 | 100 | 60 | 55 | 12.7 |
| 実施例7 | ヒュームドシリカ | 461 | 322 | 5 | 120 | 90 | 65 | 20.3 |
| 実施例8 | ヒュームドシリカ | 895 | 625 | 5 | 180 | 110 | 130 | 55.4 |
| 実施例9 | 四塩化珪素 | 143 | 98 | 4 | 100 | 60 | 55 | 10.6 |
| 実施例10 | テトラメトキシラン | 132 | 91 | 4 | 100 | 60 | 60 | 10.8 |
| 比較例12 | ヒュームドシリカ | 132 | 92 | 4 | 120 | 55 | 110 | 10.4 |
| 比較例13 | ヒュームドシリカ | 139 | 97 | 4 | 120 | 70 | 130 | 41.5 |
| 比較例14 | ヒュームドシリカ | 146 | 102 | 3 | 90 | 35 | 60 | 36.2 |
| 比較例15 | ヒュームドシリカ | 132 | 99 | 3 | 60 | 25 | 75 | 21.1 |
| 比較例16 | ヒュームドシリカ | 456 | 319 | 4 | 40 | 25 | 30 | 1.7 |
| 比較例17 | ヒュームドシリカ | 442 | 308 | 4 | 40 | 30 | 40 | 13.6 |
| 比較例18 | ヒュームドシリカ | 891 | 623 | 2 | 30 | 25 | 20 | 2.2 |
| 比較例19 | ヒュームドシリカ | 877 | 614 | 2 | 30 | 15 | 50 | 11.3 |