

(19)日本国特許庁(JP)

(12)特許公報(B2)

(11)特許番号
特許第7248491号
(P7248491)

(45)発行日 令和5年3月29日(2023.3.29)

(24)登録日 令和5年3月20日(2023.3.20)

(51)国際特許分類		F I	
C 0 1 B	33/42 (2006.01)	C 0 1 B	33/42
A 6 1 K	8/25 (2006.01)	A 6 1 K	8/25
A 6 1 Q	1/00 (2006.01)	A 6 1 Q	1/00

請求項の数 6 (全11頁)

(21)出願番号	特願2019-83596(P2019-83596)	(73)特許権者	000215800 テイカ株式会社
(22)出願日	平成31年4月25日(2019.4.25)		大阪府大阪市大正区船町1丁目3番47号
(65)公開番号	特開2020-180019(P2020-180019 A)	(74)代理人	100124648 弁理士 赤岡 和夫
(43)公開日	令和2年11月5日(2020.11.5)	(74)代理人	100060368 弁理士 赤岡 迪夫
審査請求日	令和4年2月8日(2022.2.8)	(74)代理人	100154450 弁理士 吉岡 亜紀子
		(72)発明者	亀井 優一 大阪府大阪市大正区船町1丁目3番47号 テイカ株式会社内
		(72)発明者	橋爪 裕香 大阪府大阪市大正区船町1丁目3番47号 最終頁に続く

(54)【発明の名称】 改質された粘土鉱物

(57)【特許請求の範囲】

【請求項1】

平均粒子径が10 μm以上であり、平均摩擦係数が0.5以下であり、結晶質シリカを実質的に含有しない、改質セリサイト。

【請求項2】

CuK 放射線を用いて測定される粉末X線回折パターンにおいて、 $2\theta = 50.1^\circ \sim 50.3^\circ$ の位置に実質的にピークが観測されない、請求項1に記載の改質セリサイト。

【請求項3】

粘土鉱物と融剤とを混合して混合物を得る混合工程と、前記混合物を焼成して焼成物を得る焼成工程と、前記焼成物を酸で洗浄する洗浄工程とを含み、前記混合物において、前記粘土鉱物中の結晶質シリカ[質量部]に対する融剤の量(mol/g)は、 $0.047 < \{ (前記融剤 [mol]) / (前記粘土鉱物中の結晶質シリカ [質量部]) \} < 0.105$ である、請求項1または請求項2に記載の改質セリサイトの製造方法。

【請求項4】

前記融剤は、炭酸ナトリウム、炭酸カリウム、水酸化ナトリウム、および、水酸化カリウムの少なくとも1つである、請求項3に記載の製造方法。

【請求項5】

前記酸は、フッ酸又は硫酸と硝酸とを混合した混酸である、請求項3又は請求項4に記

載の製造方法。

【請求項 6】

請求項 1 または請求項 2 に記載の改質セリサイトを含む、化粧品。

【発明の詳細な説明】

【技術分野】

【0001】

本発明は、天然の粘土鉱物を改質して得られる改質粘土鉱物に関する。

【背景技術】

【0002】

従来、絹雲母（セリサイト）等の雲母、タルク、カオリナイト、モンモリロナイト等のような粘土鉱物は、化粧料を初め様々な用途に用いられている。しかし、天然の粘土鉱物は結晶質シリカや非晶質シリカを含み、焼成工程の間に非晶質シリカもクリストバライト形態の結晶質シリカに変化することがある。結晶質シリカは、化粧料等に使用する際に安全性の上で課題のある場合があるため、粘土鉱物から除去される必要があった。

10

【0003】

例えば天然のセリサイトには、結晶質シリカを含有しないものがある。しかし、結晶質シリカ非含有の天然セリサイトは、世界的にも珍しく、資源として枯渇しつつある。

【0004】

そこで、例えば特公平 5 - 68407 号公報（特許文献 1）には、クリストバライトを含む粘土鉱物に、有機カチオン性化合物およびアルカリを作用させ、クリストバライトとアルカリとが選択的に反応してクリストバライトを可溶性のケイ酸アルカリに転化させ、ケイ酸アルカリと有機スメクタイトとの分離を行って、粘土鉱物中のクリストバライトの結晶構造を実質的に消失させることが記載されている。

20

【0005】

また、特開 2009 - 084132 号公報（特許文献 2）には、粘土鉱物の表面領域を改質するため、粘土鉱物粉末とアルカリ剤を混合状態として加熱して粘土鉱物粉末の表面領域を多孔性のゲル化領域に改質する方法が記載されている。

【0006】

また、特表 2016 - 514667 号公報（特許文献 3）には、明るい白色の外観と高い透過率を有し、クリストバライト含有率が低い珪藻土製品の製造方法として、珪藻土鉱石を粉砕して珪藻土粉砕物を製造し、珪藻土粉砕物を焼成して焼成珪藻土を製造し、焼成珪藻土を水酸化カリウムと混合して加熱する工程を含む方法が記載されている。

30

【先行技術文献】

【特許文献】

【0007】

【文献】特公平 5 - 68407 号公報

特開 2009 - 084132 号公報

特表 2016 - 514667 号公報

【発明の概要】

【発明が解決しようとする課題】

40

【0008】

しかしながら、特公平 5 - 68407 号公報（特許文献 1）に記載の方法では、粘土鉱物中のクリストバライトの結晶構造を実質的に消失させることができても、得られる粘土鉱物の感触は滑らかではない。

【0009】

また、特開 2009 - 084132 号公報（特許文献 2）に記載の方法では、表面を改質することはできても、結晶質シリカの除去と、改質された粘土鉱物の感触の滑らかさは十分ではない。

【0010】

また、特表 2016 - 514667 号公報（特許文献 3）に記載の方法でも、クリスト

50

バライト含有率が低い珪藻土製品を得ることはできても、クリストバライトを実質的に完全に除去することはできていない。

【0011】

そこで、本発明の目的は、粘土鉱物の表面の粗面化を抑え、かつ、結晶質シリカが実質的に完全に除去された改質粘土鉱物を提供することである。

【課題を解決するための手段】

【0012】

本発明者らは、鋭意研究の結果、粘土鉱物をアルカリ剤等の融剤で処理する際に、粘土鉱物の表面が粗面化するが、粘土鉱物中の結晶質シリカの量に対する融剤の量を特定の範囲にすることによって、結晶質シリカの除去と、滑らかで良好な感触とを両立させた粘土鉱物を得ることができることを見出した。

10

【0013】

本発明に従った改質された粘土鉱物は、平均摩擦係数が0.5以下であり、結晶質シリカを実質的に含有しない。

【0014】

本発明に従った改質された粘土鉱物においては、CuK α 放射線を用いて測定される粉末X線回折パターンにおいて、 $2\theta = 50.1^\circ \sim 50.3^\circ$ の位置に実質的にピークが観測されないことが好ましい。

【0015】

本発明に従った改質された粘土鉱物においては、平均粒子径が10 μ m以上であることが好ましい。

20

【0016】

本発明に従った改質された粘土鉱物においては、粘土鉱物は、天然の雲母であることが好ましい。

【0017】

本発明に従った改質された粘土鉱物においては、雲母は絹雲母であることが好ましい。

【0018】

本発明に従った改質された粘土鉱物の製造方法は、粘土鉱物と融剤とを混合して混合物を得る混合工程と、混合物を焼成して焼成物を得る焼成工程と、焼成物を酸で洗浄する洗浄工程とを含む。混合物において、粘土鉱物中の結晶質シリカに対する融剤の量(mol/g)は、 $0.047 < \{ (融剤 [mol]) / (粘土鉱物中の結晶質シリカ [質量部]) \} < 0.105$ である。

30

【0019】

本発明に従った製造方法においては、融剤は、炭酸ナトリウム、炭酸カリウム、水酸化ナトリウム、および、水酸化カリウムの少なくとも1つであることが好ましい。

【0020】

本発明に従った製造方法においては、酸は、フッ酸や硫酸と硝酸とを混合した混酸であることが好ましい。

【0021】

本発明に従った化粧料は、上記のいずれかに記載の改質された粘土鉱物を含む。

40

【発明の効果】

【0022】

本発明に従えば、粘土鉱物の表面の粗面化を抑え、かつ、結晶質シリカが実質的に完全に除去された改質粘土鉱物を提供することができる。

【図面の簡単な説明】

【0023】

【図1】(A)参考例1、(B)比較例1、(C)実施例1の粉末X線回折パターンを示す図である。

【発明を実施するための形態】

【0024】

50

以下、本発明の実施形態を説明する。なお、本発明は、以下に示される実施形態に限定されるものではなく、本発明の技術的思想を逸脱しない範囲内で各種の変更が可能である。

【0025】

本発明に従った改質された粘土鉱物は、粘土鉱物と融剤とを混合して混合物を得る混合工程と、混合物を焼成して焼成物を得る焼成工程と、焼成物を酸で洗浄する洗浄工程とを含む製造方法によって製造される。

【0026】

混合工程では、粘土鉱物として、好ましくは天然の雲母が用いられ、より好ましくは絹雲母が用いられる。

【0027】

融剤は、炭酸ナトリウム、炭酸カリウム、水酸化ナトリウム、および、水酸化カリウムの少なくとも1つであることが好ましい。融剤は、より好ましくは、炭酸ナトリウムである。

【0028】

混合物において、粘土鉱物中の結晶質シリカ[質量部]に対する融剤の量[mol/g]は、 $0.047 < \{ (\text{融剤} [\text{mol}]) / (\text{粘土鉱物中の結晶質シリカ} [\text{質量部}]) \} < 0.105$ であり、好ましくは $0.050 < \{ (\text{融剤} [\text{mol}]) / (\text{粘土鉱物中の結晶質シリカ} [\text{質量部}]) \} < 0.100$ であり、より好ましくは $0.054 < \{ (\text{融剤} [\text{mol}]) / (\text{粘土鉱物中の結晶質シリカ} [\text{質量部}]) \} < 0.072$ である。

【0029】

粘土鉱物と融剤の混合は、乾式で行われてもよいし、水混練されてもよい。

【0030】

焼成工程では、混合物が加熱されて焼成される。焼成温度は、限定ではなく、700～750であることが好ましい。焼成時間は、限定ではなく、2時間～3時間が好ましい。

【0031】

洗浄工程では、焼成物が酸で洗浄される。酸は、塩酸やフッ酸、硫酸と硝酸との混酸を用いることができるが、フッ酸又は硫酸と硝酸との混酸が好ましい。混酸の混合比は、限定ではなく、硫酸[mol]：硝酸[mol] = 1：3～3：1のものなどが使用できる。洗浄温度は、限定ではなく、20～80であることが好ましい。

【0032】

このような製造方法で得られる、本発明に従った改質された粘土鉱物は、平均摩擦係数が0.5以下であり、結晶質シリカを実質的に含有しない。

【0033】

本明細書において、平均摩擦係数は、カトーテック株式会社製摩擦感テスターKES-SEを用いて、測定条件を基盤：人工皮革、塗布量：2.0mg/cm²、荷重：50g、速さ：1.0mm/secとして測定される平均摩擦係数を意味する。

【0034】

結晶質シリカを実質的に含有しないことは、CuK α 放射線を用いて測定される粉末X線回折パターンにおいて、 $2\theta = 50.1^\circ \sim 50.3^\circ$ の位置に実質的にピークが観測されないことによって確認される。結晶質シリカの含有量は、測定された粉末X線回折パターンの $2\theta = 50.1^\circ \sim 50.3^\circ$ の位置のピーク強度から計算される。

【0035】

また、本発明に従った改質された粘土鉱物においては、平均粒子径が10 μ m以上であることが好ましい。平均粒子径は、レーザー回折光散乱法による粒度測定に基づく値であり、粒度分布測定機としては「マイクロトラックHRA」（マイクロトラック・ベル社製）にて、溶媒にメタノールを用い、1分間超音波分散させることによって測定される。改質された粘土鉱物を化粧料として用いる場合、平均粒子径が大きい方がより滑らかな感触になる。しかし、例えば天然の結晶質シリカ非含有のセリサイトは、平均粒子径が10 μ mよりも小さく、天然のセリサイトで平均粒子径が10 μ mよりも大きなものは結晶質シ

10

20

30

40

50

リカが除去されていないという問題があった。そこで、本発明に従った改質された粘土鉱物においては、平均粒子径を10 μm以上にすることで、より感触の滑らかな粘土鉱物を提供することができる。

【0036】

本発明に従った改質された粘土鉱物は、様々な用途に用いられる。例えば、化粧品として用いられる。

【0037】

本発明を要約すると以下の通りである。

【0038】

(1) 本発明に従った改質された粘土鉱物は、平均摩擦係数が0.5以下であり、結晶質シリカを実質的に含有しない。

10

【0039】

(2) 本発明に従った改質された粘土鉱物においては、CuK_α放射線を用いて測定される粉末X線回折パターンにおいて、 $2\theta = 50.1^\circ \sim 50.3^\circ$ の位置に実質的にピークが観測されないことが好ましい。

【0040】

(3) 本発明に従った改質された粘土鉱物においては、平均粒子径が10 μm以上であることが好ましい。

【0041】

(4) 本発明に従った改質された粘土鉱物においては、粘土鉱物は、天然の雲母であることが好ましい。

20

【0042】

(5) 本発明に従った改質された粘土鉱物においては、雲母は絹雲母であることが好ましい。

【0043】

(6) 本発明に従った改質された粘土鉱物の製造方法は、粘土鉱物と融剤とを混合して混合物を得る混合工程と、混合物を焼成して焼成物を得る焼成工程と、焼成物を酸で洗浄する洗浄工程とを含む。混合物において、粘土鉱物中の結晶質シリカに対する融剤の量(mol/g)は、 $0.047 < \{ (\text{融剤} [\text{mol}]) / (\text{粘土鉱物中の結晶質シリカ} [\text{質量部}]) \} < 0.105$ である。

30

【0044】

(7) 本発明に従った製造方法においては、融剤は、炭酸ナトリウム、炭酸カリウム、水酸化ナトリウム、および、水酸化カリウムの少なくとも1つであることが好ましい。

【0045】

(8) 本発明に従った製造方法においては、酸は、フッ酸又は硫酸と硝酸とを混合した混酸であることが好ましい。

【0046】

(9) 本発明に従った化粧品は、上記のいずれかに記載の改質された粘土鉱物を含む。

【0047】

本発明に従えば、粘土鉱物の表面の粗面化を抑え、かつ、結晶質シリカが実質的に完全に除去された改質粘土鉱物を提供することができる。

40

【実施例】

【0048】

(参考例1~3)

加工しない市販のセリサイトを粘土鉱物の参考例とした。参考例1のセリサイトは、ジャパンセリサイト製JS-A(結晶質シリカ含有量1.0%)であった。参考例2のセリサイトは、参考例1のセリサイト(ジャパンセリサイト製JS-A)のロット違いであり、結晶質シリカ含有量が0.7%であった。参考例3のセリサイトは、参考例1のセリサイトに結晶質シリカ(standard reference material 1878b respirable alpha quartz)を混合したものであり、混合粉体中の結晶質シリカ含有量が1.6%であった。

50

【 0 0 4 9 】

(実施例 1)

セリサイト (参考例 1) 1 0 0 質量部と、融剤として炭酸ナトリウム (富士フィルム和光純薬製) 7 質量部を卓上ブレンダーにて混合し、得られた粉体を卓上電気炉にて 7 5 0 で 2 時間焼成した。ここで得られた焼成物を水に分散させ、硫酸と硝酸をモル比で 3 : 1 となるように混合した混酸を用いて pH を 1 に調整し、8 0 で 2 時間熟成することで酸洗浄した。その後、吸引ろ過・水洗を行い、得られたケーキを再度水に分散させ、水酸化ナトリウムを用いて pH を 7 に調整し、再度吸引ろ過した。そこで得られたケーキを乾燥することで実施例 1 のセリサイトを作製した。

【 0 0 5 0 】

(実施例 2)

酸洗浄に使用する酸を 0 . 5 % フッ酸水溶液に変更した以外は、実施例 1 と同様にして実施例 2 のセリサイトを作製した。

【 0 0 5 1 】

(実施例 3)

混合するセリサイトを参考例 2 のセリサイトに変更し、さらに炭酸ナトリウムの混合量を 5 質量部に減少させた以外は、実施例 1 と同様にして実施例 3 のセリサイトを作製した。

【 0 0 5 2 】

(実施例 4)

混合するセリサイトを参考例 3 に変更し、更に炭酸ナトリウムの混合量を 1 0 質量部に増加させた以外は、実施例 1 と同様にして実施例 4 のセリサイトを作製した。

【 0 0 5 3 】

(実施例 5)

混合条件をセリサイト (参考例 1) 1 0 0 質量部と炭酸ナトリウム 7 質量部と水 8 6 質量部を混練する方法に変更し、酸洗浄時の熟成 pH を 2 に変更した以外は、実施例 1 と同様にして実施例 5 のセリサイトを作製した。

【 0 0 5 4 】

(実施例 6)

焼成条件を 7 0 0 、 3 時間に変更した以外は、実施例 1 と同様にして実施例 6 のセリサイトを作製した。

【 0 0 5 5 】

(実施例 7)

酸洗浄時の熟成温度を 2 0 に変更した以外は、実施例 1 と同様にして実施例 7 のセリサイトを作製した。

【 0 0 5 6 】

(実施例 8)

酸洗浄時の熟成温度を 6 0 に変更した以外は、実施例 1 と同様にして実施例 8 のセリサイトを作製した。

【 0 0 5 7 】

(実施例 9)

混合する炭酸ナトリウム (7 質量部) を水酸化カリウム (富士フィルム和光純薬製) 3 質量部に変更した以外は、実施例 6 と同様にして実施例 9 のセリサイトを作製した。

【 0 0 5 8 】

(実施例 1 0)

混合する炭酸ナトリウム (7 質量部) を炭酸カリウム (富士フィルム和光純薬製) 1 0 質量部に変更した以外は、実施例 6 と同様にして実施例 1 0 のセリサイトを作製した。

【 0 0 5 9 】

(実施例 1 1)

酸洗浄時の酸を塩酸に変更した以外は、実施例 1 と同様にして実施例 1 1 のセリサイトを作製した。

10

20

30

40

50

【 0 0 6 0 】

(比較例 1)

混合する炭酸ナトリウムを 5 質量部に減少させた以外は実施例 1 と同様にして比較例 1 のセリサイトを作製した。

【 0 0 6 1 】

(比較例 2)

セリサイト (参考例 1) 1 0 0 質量部と炭酸ナトリウム 1 1 . 1 質量部と水 8 8 . 8 質量部を混練し、得られた混練物を卓上電気炉にて 8 0 0 で 1 時間焼成した。ここで得られた焼成物を 1 0 倍の体積量の水で洗浄し、吸引ろ過した。上記洗浄操作を更に 2 回繰り返した後に、塩酸中和を行い、ろ過・乾燥した。更に得られた粉末を水に分散させ、塩酸を用いて pH を 2 に調整し、2 0 で 2 時間熟成した。その後、ろ過・乾燥を行い、比較例 2 のセリサイトを作製した。

10

【 0 0 6 2 】

(比較例 3)

セリサイト (参考例 1) 1 0 0 質量部と炭酸ナトリウム 1 1 . 1 質量部と水 8 8 . 8 質量部を混練し、得られた混練物を卓上電気炉にて 8 0 0 で 1 時間焼成した。得られた焼成物を実施例 1 と同様の洗浄処理を行い、比較例 3 のセリサイトを作製した。

【 0 0 6 3 】

各参考例、実施例、および、比較例のセリサイト (粘土鉱物) の粘土鉱物中の結晶質シリカ 1 0 0 質量部に対する融剤の量 (質量部) を表 1 に示す。

20

【 0 0 6 4 】

30

40

50

【表 1】

	処理前の粘土 鉱物の結晶質 シリカ含有量 (%)	融剤種類	粘土鉱物中の 結晶質シリカ 100質量部 に対する融剤 の量(質量部)	融剤の 分子量	粘土鉱物中の 結晶質シリカに 対する融剤の量 (mol/g)
参考例 1	1.0	—	—	—	—
参考例 2	0.7	—	—	—	—
参考例 3	1.6	—	—	—	—
実施例 1	1.0	炭酸ナトリウム	7.0	106	0.066
実施例 2	1.0	炭酸ナトリウム	7.0	106	0.066
実施例 3	0.7	炭酸ナトリウム	5.0	106	0.067
実施例 4	1.6	炭酸ナトリウム	10.0	106	0.059
実施例 5	1.0	炭酸ナトリウム	7.0	106	0.066
実施例 6	1.0	炭酸ナトリウム	7.0	106	0.066
実施例 7	1.0	炭酸ナトリウム	7.0	106	0.066
実施例 8	1.0	炭酸ナトリウム	7.0	106	0.066
実施例 9	1.0	水酸化カリウム	3.0	56	0.054
実施例 10	1.0	炭酸カリウム	10.0	138	0.072
実施例 11	1.0	炭酸ナトリウム	7.0	106	0.066
比較例 1	1.0	炭酸ナトリウム	5.0	106	0.047
比較例 2	1.0	炭酸ナトリウム	11.1	106	0.105
比較例 3	1.0	炭酸ナトリウム	11.1	106	0.105

10

20

30

【0065】

(結晶質シリカの含有量)

得られた参考例、実施例、および、比較例のセリサイト(粘土鉱物)の結晶質シリカの含有量を測定した。Philips社製XRD装置「X'pert-PRO」を用い、CuのK線で、実施例及び比較例で得られたセリサイト中の結晶質シリカのピーク強度(セリサイトの回折ピークによる妨害を受けない $2\theta = 50.1^\circ \sim 50.3^\circ$ 付近における回折ピーク)を測定した。そのピーク強度から、予め作製した検量線を用いて、結晶質シリカの含有率を測定した。検量線は結晶質シリカを含まない、かつ、 $2\theta = 50.1^\circ \sim 50.3^\circ$ 付近に回折ピークを有さないセリサイト(三信鉱工製セリサイトFSE)に、標準試料(standard reference material 1878b respirable alpha quartz)を均一に混合して作製した試料を用いて作製した。また、ピーク強度は回折パターンにおけるピークの存在しない点を結んだ線をベースラインとして、各ピークのピークトップから引いた垂線におけるピークトップからベースラインと交わる点までの線分の長さを各ピークの強度とした。図1に実施例1、参考例1、比較例1のX線回折パターンを示す。

40

【0066】

(平均摩擦係数)

得られた参考例、実施例、および、比較例のセリサイト(粘土鉱物)の平均摩擦係数を測定した。平均摩擦係数は、カトーテック株式会社製摩擦感テスターKES-SEを用いて、測定条件を基盤：人工皮革、塗布量： 2.0 mg/cm^2 、荷重：50g、速さ： 1.0 mm/sec として測定された。

50

【 0 0 6 7 】

(平均粒子径)

得られた参考例、実施例、および、比較例のセリサイト（粘土鉱物）の平均粒子径を測定した。平均粒子径は、レーザー回折光散乱法による粒度測定に基づく値であり、粒度分布測定機としては「マイクロトラックHRA」（マイクロトラック・ベル社製）にて、溶媒にはメタノールを用い、1分間超音波分散させて測定した。

【 0 0 6 8 】

結果を表2に示す。

【 0 0 6 9 】

【表2】

10

	結晶質シリカの 含有率 (%)	平均摩擦係数	平均粒子径 (μm)
参考例1	1.0	0.35	20.6
参考例2	0.7	0.35	21.2
参考例3	1.6	0.34	21.1
実施例1	0	0.42	19.2
実施例2	0	0.45	20.3
実施例3	0	0.45	20.6
実施例4	0	0.46	19.3
実施例5	0	0.48	19.2
実施例6	0	0.43	20.0
実施例7	0	0.48	19.4
実施例8	0	0.47	19.3
実施例9	0	0.47	22.0
実施例10	0	0.48	21.4
実施例11	0	0.38	19.7
比較例1	0.2	0.43	20.0
比較例2	0	0.52	20.3
比較例3	0	0.52	19.8

20

30

【 0 0 7 0 】

表2に示すように、実施例1～11のセリサイトは、結晶質シリカを実質的に含まず、かつ、表面の平均摩擦係数が0.5以下であった。比較例1では、粘土鉱物中の結晶質シリカに対する融剤の量が0.047mol/gであり、結晶質シリカを十分に除去することができなかった。一方、比較例2,3では、粘土鉱物中の結晶質シリカに対する融剤の量が0.105mol/gであり、結晶質シリカを実質的に完全に除去することはできたが、平均摩擦係数が0.5を超えており、表面が粗面化されていることがわかる。このように、本発明に従えば、粘土鉱物の表面の粗面化を抑え、かつ、結晶質シリカが実質的に完全に除去された改質粘土鉱物を提供することができる。

40

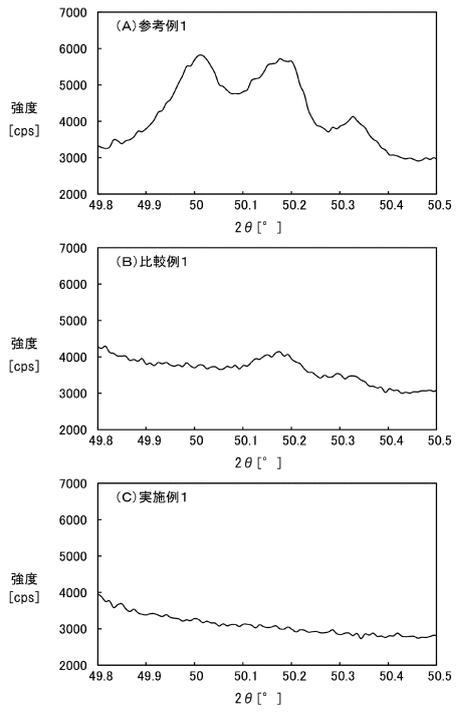
【 0 0 7 1 】

以上に開示された実施の形態と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慮されるべきである。本発明の範囲は、以上の実施の形態と実施例ではなく、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修正や変形を含むものである。

50

【図面】

【図 1】



10

20

30

40

50

フロントページの続き

号 テイカ株式会社内

審査官 高 橋 真由

- (56)参考文献 特開2002-020218(JP,A)
特開昭62-059518(JP,A)
特開2008-050520(JP,A)
特開2011-207687(JP,A)
特開2006-327961(JP,A)
- (58)調査した分野 (Int.Cl., DB名)
C01B 33/00 - 33/193
A61K 8/25
A61Q 1/00