

【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3区分

【発行日】平成30年11月22日(2018.11.22)

【公表番号】特表2018-503713(P2018-503713A)

【公表日】平成30年2月8日(2018.2.8)

【年通号数】公開・登録公報2018-005

【出願番号】特願2017-531343(P2017-531343)

【国際特許分類】

C 08 G 79/00 (2006.01)

C 08 G 77/58 (2006.01)

C 08 G 77/50 (2006.01)

【F I】

C 08 G 79/00

C 08 G 77/58

C 08 G 77/50

【手続補正書】

【提出日】平成30年10月12日(2018.10.12)

【手続補正1】

【補正対象書類名】特許請求の範囲

【補正対象項目名】全文

【補正方法】変更

【補正の内容】

【特許請求の範囲】

【請求項1】

少なくとも1種の式 [ Z<sup>1</sup>OZ<sup>2</sup>OSiCH<sub>2</sub> ]<sub>3</sub> (I)

[式中、各Z<sup>1</sup>およびZ<sup>2</sup>は、独立して、水素原子、C<sub>1</sub>～C<sub>4</sub>アルキル基、または別のモノマーのケイ素原子への結合を表す]

の独立モノマーおよび少なくとも1種の他の三価金属酸化物モノマーのポリマーである、オルガノシリカ材料。

【請求項2】

各Z<sup>1</sup>およびZ<sup>2</sup>が、独立して、水素原子、C<sub>1</sub>～C<sub>2</sub>アルキル基、または別のモノマーのケイ素原子への結合を表す、請求項1に記載のオルガノシリカ材料。

【請求項3】

各Z<sup>1</sup>およびZ<sup>2</sup>が、独立して、水素原子、エチル、または別のモノマーのケイ素原子への結合を表す、請求項1または2に記載のオルガノシリカ材料。

【請求項4】

前記少なくとも1種の他の三価金属酸化物モノマーが、

(i)式M<sup>1</sup>(OZ<sup>3</sup>)<sub>3</sub>(II)

[式中、M<sup>1</sup>は、第13族金属を表し、各Z<sup>3</sup>は、独立して、水素原子、C<sub>1</sub>～C<sub>6</sub>アルキル、または別のモノマーのケイ素原子への結合を表す]

の独立単位、または

(ii)式(Z<sup>4</sup>O)<sub>2</sub>M<sup>2</sup>-O-Si(OZ<sup>5</sup>)<sub>3</sub>(III)

[式中、M<sup>2</sup>は、第13族金属を表し、各Z<sup>4</sup>および各Z<sup>5</sup>は、独立して、水素原子、C<sub>1</sub>～C<sub>6</sub>アルキル基、または別のモノマーのケイ素原子への結合を表す]

の独立単位

である、請求項1～3のいずれか1項に記載のメソポーラスオルガノシリカ材料。

【請求項5】

少なくとも1種の式(II)

[式中、M<sup>1</sup>は、A1またはBであり、各Z<sup>3</sup>は、独立して、水素原子、C<sub>1</sub>～C<sub>4</sub>アルキル基、またはケイ素原子もしくは別のモノマーへの結合を表す]の単位が存在する、請求項4に記載のオルガノシリカ材料。

#### 【請求項6】

少なくとも1種の式(III)

[式中、M<sup>2</sup>は、A1またはBであり、各Z<sup>4</sup>および各Z<sup>5</sup>は、独立して、水素原子、C<sub>1</sub>～C<sub>4</sub>アルキル基、または別のモノマーのケイ素原子への結合を表す]の単位が存在する、請求項4または5に記載のオルガノシリカ材料。

#### 【請求項7】

(i) 式[Z<sup>6</sup>OZ<sup>7</sup>SiCH<sub>2</sub>]<sub>3</sub> (IV)

[式中、各Z<sup>6</sup>は、水素原子、C<sub>1</sub>～C<sub>4</sub>アルキル基、または別のモノマーのケイ素原子への結合を表し、各Z<sup>7</sup>は、ヒドロキシル基、C<sub>1</sub>～C<sub>6</sub>アルキル基、または別のモノマーのケイ素原子に結合した酸素原子を表す]の独立単位、

(ii) 式Z<sup>8</sup>OZ<sup>9</sup>Z<sup>10</sup>Z<sup>11</sup>Si (V)

[式中、各Z<sup>8</sup>は、水素原子またはC<sub>1</sub>～C<sub>4</sub>アルキル基、または別のモノマーのケイ素原子への結合を表し、Z<sup>9</sup>、Z<sup>10</sup>およびZ<sup>11</sup>は、それぞれ独立して、ヒドロキシル基、C<sub>1</sub>～C<sub>4</sub>アルキル基、C<sub>1</sub>～C<sub>4</sub>アルコキシ基、窒素含有C<sub>1</sub>～C<sub>10</sub>アルキル基、窒素含有ヘテロアラルキル基、窒素を含有していて任意に置換されたヘテロシクロアルキル基、および別のモノマーのケイ素原子に結合した酸素原子からなる群から選択される]の独立単位、

(iii) 式Z<sup>12</sup>Z<sup>13</sup>Z<sup>14</sup>Si-R-SiZ<sup>12</sup>Z<sup>13</sup>Z<sup>14</sup> (VI)

[式中、各Z<sup>12</sup>は、独立して、ヒドロキシル基、C<sub>1</sub>～C<sub>4</sub>アルコキシ基、または別のコモノマーのケイ素原子に結合した酸素原子を表し、各Z<sup>13</sup>およびZ<sup>14</sup>は、独立して、ヒドロキシル基、C<sub>1</sub>～C<sub>4</sub>アルコキシ基、C<sub>1</sub>～C<sub>4</sub>アルキル基、または別のモノマーのケイ素原子に結合した酸素を表し、Rは、C<sub>1</sub>～C<sub>8</sub>アルキレン基、C<sub>2</sub>～C<sub>8</sub>アルケニレン基、C<sub>2</sub>～C<sub>8</sub>アルキニレン基、窒素含有C<sub>2</sub>～C<sub>10</sub>アルキレン基、任意に置換されたC<sub>6</sub>～C<sub>20</sub>アラルキル、および任意に置換されたC<sub>4</sub>～C<sub>20</sub>ヘテロシクロアルキル基からなる群から選択される]

の独立単位、および

(iv) それらの組合せ

からなる群から選択されるモノマーをさらに含む、請求項1～6のいずれか1項に記載のオルガノシリカ材料。

#### 【請求項8】

約1.5nm～約20.0nmの平均細孔径を有する、請求項1～7のいずれか1項に記載のオルガノシリカ材料。

#### 【請求項9】

約200m<sup>2</sup>/g～約2500m<sup>2</sup>/gの全表面積を有する、請求項1～8のいずれか1項に記載のオルガノシリカ材料。

#### 【請求項10】

約0.1cm<sup>3</sup>/g～約5.0cm<sup>3</sup>/gの細孔体積を有する、請求項1～9のいずれか1項に記載のオルガノシリカ材料。

#### 【請求項11】

前記材料の前記細孔内に組み込まれた少なくとも1種の触媒金属をさらに含む、請求項1～10のいずれか1項に記載のオルガノシリカ材料。

#### 【請求項12】

前記触媒金属が、第6族元素、第8族元素、第9族元素、第10族元素およびそれらの組合せからなる群から選択される、請求項11に記載のオルガノシリカ材料。

#### 【請求項13】

構造指向剤またはポロゲンを本質的に使用せずに製造される、請求項1～12のいずれ

か 1 項に記載のオルガノシリカ材料。

**【請求項 14】**

a ) 芳香族含有量が低下した反応生成物を製造するために有効な芳香族水素化条件下で操作される反応段階において、水素含有処理気体の存在下、芳香族を含む炭化水素供給流を水素化触媒と接触させることを含み、

前記水素化触媒が、請求項 12 に記載のオルガノシリカ材料を含む、炭化水素供給流の芳香族水素化方法。

**【請求項 15】**

式 (II) の M<sup>1</sup> が A1 である、請求項 14 に記載の芳香族水素化方法。

**【請求項 16】**

式 (III) の M<sup>2</sup> が A1 である、請求項 14 に記載の芳香族水素化方法。

**【請求項 17】**

前記オルガノシリカ材料が、約 100 m<sup>2</sup> / g ~ 約 1300 m<sup>2</sup> / g の全表面積を有する、請求項 14 に記載の芳香族水素化方法。

**【請求項 18】**

前記少なくとも 1 種の触媒材料が、白金、パラジウム、ニッケルおよびそれらの組合せからなる群から選択される、請求項 17 に記載の芳香族水素化方法。

**【請求項 19】**

前記少なくとも 1 種の触媒材料が、活性材料および不活性材料、合成または天然由来ゼオライト、無機材料、クレー、アルミナ、シリカ、シリカ - アルミナ、チタニア、ジルコニア、酸化セリウム、酸化マグネシウム、酸化ニオブ、酸化タンタル、活性炭、セラミックスおよびそれらの組合せからなる群から選択される結合剤材料をさらに含む、請求項 18 に記載の芳香族水素化方法。

**【手続補正 2】**

**【補正対象書類名】** 明細書

**【補正対象項目名】** 0448

**【補正方法】** 変更

**【補正の内容】**

**【0448】**

実施例 8 - CO<sub>2</sub> 等温線

図 21 に示される通り、CO<sub>2</sub> 吸着等温線は、試料 1A、比較試料 2 および試料 5 において測定した。試料 1A は、比較試料 2 と比較して、同様の CO<sub>2</sub> 吸収を有した。

本明細書の開示内容は、以下の態様を含み得る。

**(態様 1)**

少なくとも 1 種の式 [ Z<sup>1</sup> O Z<sup>2</sup> O S i C H<sub>2</sub> ]<sub>3</sub> (I)

[ 式中、各 Z<sup>1</sup> および Z<sup>2</sup> は、独立して、水素原子、C<sub>1</sub> ~ C<sub>4</sub> アルキル基、または別のモノマーのケイ素原子への結合を表す ]

の独立モノマーおよび少なくとも 1 種の他の三価金属酸化物モノマーのポリマーである、オルガノシリカ材料。

**(態様 2)**

各 Z<sup>1</sup> および Z<sup>2</sup> が、独立して、水素原子、C<sub>1</sub> ~ C<sub>2</sub> アルキル基、または別のモノマーのケイ素原子への結合を表す、態様 1 に記載のオルガノシリカ材料。

**(態様 3)**

各 Z<sup>1</sup> および Z<sup>2</sup> が、独立して、水素原子、エチル、または別のモノマーのケイ素原子への結合を表す、態様 1 または 2 に記載のオルガノシリカ材料。

**(態様 4)**

前記少なくとも 1 種の他の三価金属酸化物モノマーが、

(i) 式 M<sup>1</sup> (O Z<sup>3</sup>)<sub>3</sub> (II)

[ 式中、M<sup>1</sup> は、第 13 族金属を表し、各 Z<sup>3</sup> は、独立して、水素原子、C<sub>1</sub> ~ C<sub>6</sub> アルキル、または別のモノマーのケイ素原子への結合を表す ]

の独立単位、または( i i ) 式 ( Z<sup>4</sup> O )<sub>2</sub> M<sup>2</sup> - O - S i ( O Z<sup>5</sup> )<sub>3</sub> ( I I I )[式中、M<sup>2</sup>は、第13族金属を表し、各Z<sup>4</sup>および各Z<sup>5</sup>は、独立して、水素原子、C<sub>1</sub>～C<sub>6</sub>アルキル基、または別のモノマーのケイ素原子への結合を表す]の独立単位である、態様1～3のいずれか1項に記載のメソポーラスオルガノシリカ材料。(態様5)少なくとも1種の式(I I)[式中、M<sup>1</sup>は、A1またはBであり、各Z<sup>3</sup>は、独立して、水素原子、C<sub>1</sub>～C<sub>4</sub>アルキル基、またはケイ素原子もしくは別のモノマーへの結合を表す]の単位が存在する、態様4に記載のオルガノシリカ材料。(態様6)少なくとも1種の式(I I I)[式中、M<sup>2</sup>は、A1またはBであり、各Z<sup>4</sup>および各Z<sup>5</sup>は、独立して、水素原子、C<sub>1</sub>～C<sub>4</sub>アルキル基、または別のモノマーのケイ素原子への結合を表す]の単位が存在する、態様4または5に記載のオルガノシリカ材料。(態様7)( i ) 式 [ Z<sup>6</sup> O Z<sup>7</sup> S i C H<sub>2</sub> ]<sub>3</sub> ( I V )[式中、各Z<sup>6</sup>は、水素原子、C<sub>1</sub>～C<sub>4</sub>アルキル基、または別のモノマーのケイ素原子への結合を表し、各Z<sup>7</sup>は、ヒドロキシル基、C<sub>1</sub>～C<sub>6</sub>アルキル基、または別のモノマーのケイ素原子に結合した酸素原子を表す]の独立単位、( i i ) 式 Z<sup>8</sup> O Z<sup>9</sup> Z<sup>1</sup><sub>0</sub> Z<sup>1</sup><sub>1</sub> S i ( V )[式中、各Z<sup>8</sup>は、水素原子またはC<sub>1</sub>～C<sub>4</sub>アルキル基、または別のモノマーのケイ素原子への結合を表し、Z<sup>9</sup>、Z<sup>1</sup><sub>0</sub>およびZ<sup>1</sup><sub>1</sub>は、それぞれ独立して、ヒドロキシル基、C<sub>1</sub>～C<sub>4</sub>アルキル基、C<sub>1</sub>～C<sub>4</sub>アルコキシ基、窒素含有C<sub>1</sub>～C<sub>1</sub><sub>0</sub>アルキル基、窒素含有ヘテロアラルキル基、窒素を含有していて任意に置換されたヘテロシクロアルキル基、および別のモノマーのケイ素原子に結合した酸素原子からなる群から選択される]の独立単位、( i i i ) 式 Z<sup>1</sup><sub>2</sub> Z<sup>1</sup><sub>3</sub> Z<sup>1</sup><sub>4</sub> S i - R - S i Z<sup>1</sup><sub>2</sub> Z<sup>1</sup><sub>3</sub> Z<sup>1</sup><sub>4</sub> ( V I )[式中、各Z<sup>1</sup><sub>2</sub>は、独立して、ヒドロキシル基、C<sub>1</sub>～C<sub>4</sub>アルコキシ基、または別のコモノマーのケイ素原子に結合した酸素原子を表し、各Z<sup>1</sup><sub>3</sub>およびZ<sup>1</sup><sub>4</sub>は、独立して、ヒドロキシル基、C<sub>1</sub>～C<sub>4</sub>アルコキシ基、C<sub>1</sub>～C<sub>4</sub>アルキル基、または別のモノマーのケイ素原子に結合した酸素を表し、Rは、C<sub>1</sub>～C<sub>8</sub>アルキレン基、C<sub>2</sub>～C<sub>8</sub>アルケニレン基、C<sub>2</sub>～C<sub>8</sub>アルキニレン基、窒素含有C<sub>2</sub>～C<sub>1</sub><sub>0</sub>アルキレン基、任意に置換されたC<sub>6</sub>～C<sub>2</sub><sub>0</sub>アラルキル、および任意に置換されたC<sub>4</sub>～C<sub>2</sub><sub>0</sub>ヘテロシクロアルキル基からなる群から選択される]の独立単位、および( i v ) それらの組合せからなる群から選択されるモノマーをさらに含む、態様1～6のいずれか1項に記載のオルガノシリカ材料。(態様8)約1.5nm～約20.0nmの平均細孔径を有する、態様1～7のいずれか1項に記載のオルガノシリカ材料。(態様9)約200m<sup>2</sup>/g～約2500m<sup>2</sup>/gの全表面積を有する、態様1～8のいずれか1項に記載のオルガノシリカ材料。(態様10)約0.1cm<sup>3</sup>/g～約5.0cm<sup>3</sup>/gの細孔体積を有する、態様1～9のいずれか1項に記載のオルガノシリカ材料。

( 態様 1 1 )

前記材料の前記細孔内に組み込まれた少なくとも 1 種の触媒金属をさらに含む、態様 1 ~ 10 のいずれか 1 項に記載のオルガノシリカ材料。

( 態様 1 2 )

前記触媒金属が、第 6 族元素、第 8 族元素、第 9 族元素、第 10 族元素およびそれらの組合せからなる群から選択される、態様 1 1 に記載のオルガノシリカ材料。

( 態様 1 3 )

構造指向剤またはポロゲンを本質的に使用せずに製造される、態様 1 ~ 1 2 のいずれか 1 項に記載のオルガノシリカ材料。