

【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2区分

【発行日】平成24年5月17日(2012.5.17)

【公表番号】特表2009-504644(P2009-504644A)

【公表日】平成21年2月5日(2009.2.5)

【年通号数】公開・登録公報2009-005

【出願番号】特願2008-526034(P2008-526034)

【国際特許分類】

C 0 7 C 213/02 (2006.01)

B 0 1 J 23/755 (2006.01)

B 0 1 J 35/10 (2006.01)

B 0 1 D 53/50 (2006.01)

B 0 1 D 53/52 (2006.01)

B 0 1 D 53/77 (2006.01)

B 0 1 D 53/14 (2006.01)

C 0 7 C 217/08 (2006.01)

C 0 9 K 3/00 (2006.01)

C 0 7 B 61/00 (2006.01)

【F I】

C 0 7 C 213/02 Z A B

B 0 1 J 23/74 3 2 1 Z

B 0 1 J 35/10 3 0 1 G

B 0 1 D 53/34 1 2 1 E

B 0 1 D 53/14 1 0 2

C 0 7 C 217/08

C 0 9 K 3/00 S

C 0 7 B 61/00 3 0 0

【手続補正書】

【提出日】平成24年3月21日(2012.3.21)

【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

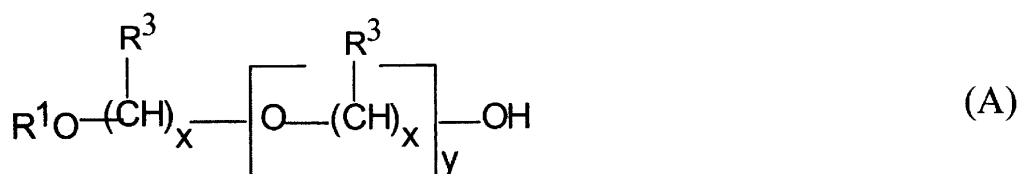
【補正の内容】

【特許請求の範囲】

【請求項1】

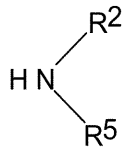
式(A)：

【化1】



で表されるアルキルオキシアルコールを、式(B)：

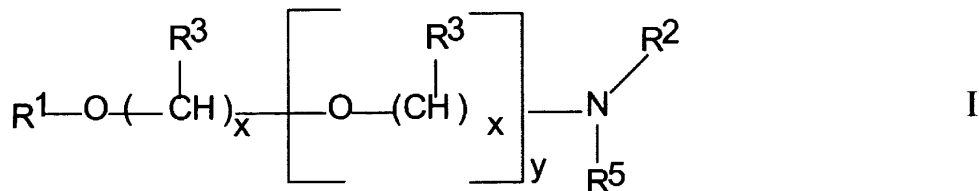
【化 2】



(B)

で表されるアルキルアミンと接触反応させることにより、式 (I) :

【化 3】



で表される吸収剤物質を製造するための方法。

[但し、上記各式において、

x は、2 または 3 であり、

y は、1 または 2 であり、

R¹ は、C₁ ~ C₉ アルキルであり (C₃ ~ C₉ 分枝アルキルまたは C₅ ~ C₉ シクロアルキルを含む)、

R² は、C₃ ~ C₉ 分枝アルキルであり、その際 N は、R² の第二級または第三級炭素原子を介して R² に結合され、

R³ は、水素であり、

R⁵ は、水素である。]

【請求項 2】

前記各式において、

R¹ は、C₁ ~ C₄ アルキル、C₃ ~ C₄ 分枝アルキルであり、

R² は、C₃ ~ C₆ 分枝アルキルである

ことを特徴とする請求項 1 に記載の方法。

【請求項 3】

x が 2 であり、y が 1 であることを特徴とする請求項 2 に記載の方法。

【請求項 4】

x が 2 であり、y が 2 であることを特徴とする請求項 1 に記載の方法。

【請求項 5】

R³ は水素であり、R² は C₄ - 第三級アルキルであり、その際、N は、R² の第三級炭素原子を介して R² に結合されることを特徴とする請求項 3 に記載の方法。

【請求項 6】

前記アルキルオキシアルコールはメトキシトリエチレングリコールであり、前記アルキルアミンは t - ブチルアミンであることを特徴とする請求項 1 に記載の方法。

【請求項 7】

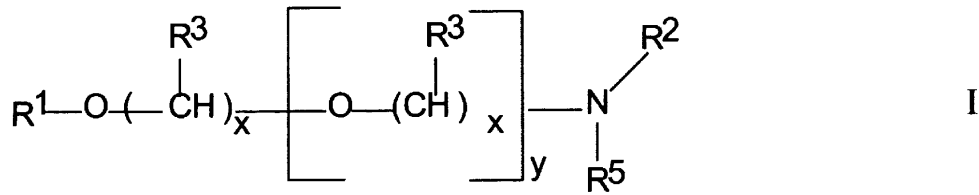
前記触媒は、触媒活性金属を担体上に含み、前記金属充填触媒は、BET 表面積約 50 ~ 約 1200 m² / g を有することによって特徴付けられ、前記担体は微細孔容積約 0.05 cm³ / g 超によって特徴付けられ、前記金属充填触媒は、19.99 nm 以下の細孔に対して標準化された場合に、4.99 nm 以下の細孔が約 30% 以上、および 5 ~ 19.99 nm の細孔が残りを占める細孔サイズ分布を示すことを特徴とする請求項 1 または 2 に記載の方法。

【請求項 8】

H₂S を、H₂S、CO₂ およびガス状の非酸性成分を含むガス状混合物から選択的に

除去するための吸収剤であって、前記吸収剤は、式 (I) :

【化 4】



で表される物質を含むことを特徴とする吸収剤。

[但し、上記各式において、

R¹は、C₁～C₉アルキルであり、(C₃～C₉分枝アルキルまたはC₅～C₉シクロアルキルを含む)、

R²は、C₃～C₉分枝アルキルであり、その際Nは、R²の第二級または第三級炭素原子を介してR²に結合され、

R³は、水素であり、

R⁵は、水素である。]

【請求項 9】

R¹は、C₁～C₄アルキル、C₃～C₄分枝アルキルであり、

R²は、C₃～C₆分枝アルキルである

ことを特徴とする請求項 8 に記載の吸収剤。

【請求項 10】

x が 2 であり、y が 1 であることを特徴とする請求項 8 に記載の吸収剤。

【請求項 11】

x が 2 であり、y が 2 であることを特徴とする請求項 8 に記載の吸収剤。

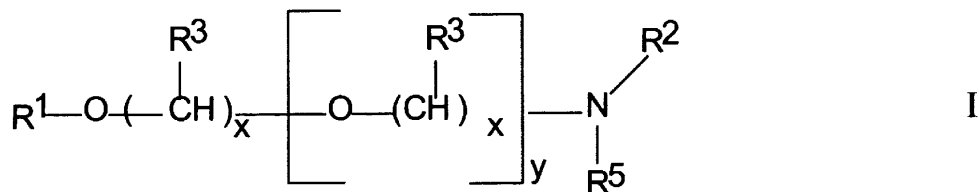
【請求項 12】

R³は、水素であり、R²はC₄-第三級アルキルであり、その際、Nは、R²の第三級炭素原子を介してR²に結合されることを特徴とする請求項 8 に記載の吸収剤。

【請求項 13】

H₂Sを、H₂S、CO₂およびガス状の非酸性成分を含むガス状の混合物から、前記混合物を吸収剤と接触させることによって選択的に除去するための方法であって、前記吸収剤は、式 (I) :

【化 5】



で表される物質を含むことを特徴とする方法。

[但し、上記各式において、

R¹は、C₁～C₉アルキルであり、(C₃～C₉分枝アルキルまたはC₅～C₉シクロアルキルを含む)、

R²は、C₃～C₉分枝アルキルであり、その際Nは、R²の第二級または第三級炭素原子を介してR²に結合され、

R³は、水素であり、

R⁵は、水素である。]

【請求項 14】

R¹は、C₁～C₄アルキル、C₃～C₄分枝アルキルであり、

R^2 は、 $C_3 \sim C_6$ 分枝アルキルである
ことを特徴とする請求項 13 に記載の方法。

【請求項 15】

x が 2 であり、 y が 1 であることを特徴とする請求項 13 に記載の方法。

【請求項 16】

x が 2 であり、 y が 2 であることを特徴とする請求項 13 に記載の方法。

【請求項 17】

R^3 は、水素であり、 R^2 は C_4 - 第三級アルキルであり、その際、 N は、 R^2 の第三級炭素原子を介して R^2 に結合されることを特徴とする請求項 13 に記載の方法。

【手続補正 2】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0017

【補正方法】変更

【補正の内容】

【0017】

【特許文献 1】米国特許第 4, 112, 052 号明細書

【特許文献 2】米国特許第 4, 112, 051 号明細書

【特許文献 3】英国特許第 2, 017, 524 A 号明細書

【特許文献 4】米国特許第 4, 405, 581 号明細書

【特許文献 5】米国特許第 4, 405, 583 号明細書

【特許文献 6】米国特許第 4, 405, 585 号明細書

【特許文献 7】米国特許第 4, 487, 967 号明細書

【特許文献 8】米国特許第 4, 665, 195 号明細書

【特許文献 9】米国特許第 4, 471, 138 号明細書

【特許文献 10】米国特許第 4, 417, 075 号明細書

【特許文献 11】米国特許第 4, 894, 178 号明細書

【特許文献 12】米国特許第 3, 697, 445 号明細書

【特許文献 13】米国特許第 4, 251, 394 号明細書

【特許文献 14】米国特許第 4, 251, 672 号明細書

【特許文献 15】米国特許第 4, 263, 173 号明細書

【特許文献 16】米国特許第 4, 263, 225 号明細書

【特許文献 17】米国特許第 4, 273, 680 号明細書

【特許文献 18】米国特許第 4, 273, 939 号明細書

【特許文献 19】米国特許第 4, 307, 248 号明細書

【特許文献 20】米国特許第 4, 318, 829 号明細書

【特許文献 21】米国特許出願第 388, 966 号明細書

【特許文献 22】米国特許出願第 388, 967 号明細書

【特許文献 23】PCT/US2005/003062 号明細書 (米国特許第 7, 442, 840 号明細書)

【非特許文献 1】Frazier および Kohl 著 (Ind. and Eng. Chem.、第 42 号、第 2288 頁、1950 年)

【手続補正 3】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0019

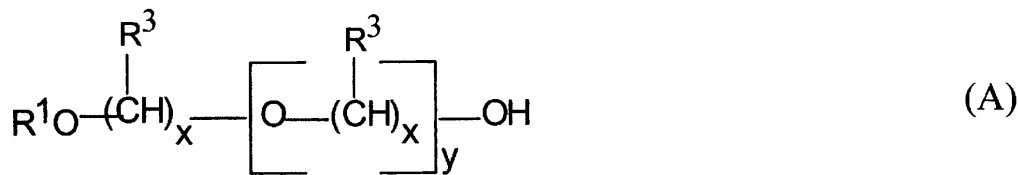
【補正方法】変更

【補正の内容】

【0019】

アルキルアミンアルキルオキシ (アルコール) モノアルキルエーテルは、式

【化 4】



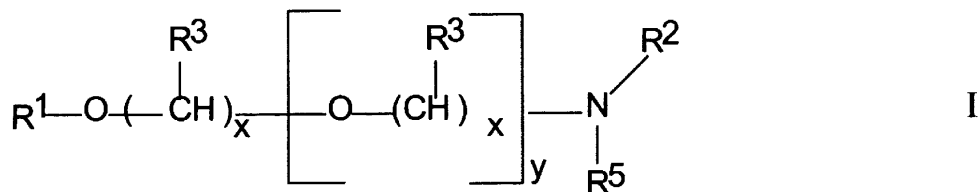
のアルキルオキシアルコールエーテルを、式

【化 5】



のアルキルアミンと接触反応させることによって製造されて、式

【化 6】



の生成物が得られる。

その際、

x は、2、3、または 4 であり、

y は、1、2、3、4、または 5（好ましくは 1 または 2）であり、

R¹ は、C₁ ~ C₉ アルキル、C₃ ~ C₉ 分枝アルキル、C₅ ~ C₉ シクロアルキル、C₆ ~ C₁₀ アリール、アルキルアリール、またはアリールアルキル（好ましくは、C₁ ~ C₄ アルキル、C₃ ~ C₄ 分枝アルキル、より好ましくは C₁ ~ C₂ アルキル）であり、そのために短鎖アルキルオキシエーテルは、エンドキャップされたアルキルオキシアルコールモノアルキルエーテルであり、環化に耐性があり、

R² は、C₃ ~ C₉ 直鎖または分枝アルキル（好ましくは C₃ ~ C₆ 直鎖または分枝アルキル、より好ましくは C₃ ~ C₄ 直鎖または分枝アルキル）であり、好ましくはその際、N は、第二級または第三級炭素原子（好ましくは第三級炭素原子、最も好ましくは t-ブチル基の第三級炭素原子）を介して R² に結合され、

R⁵ は、水素または C₁ ~ C₉ アルキル（好ましくは水素または C₁ ~ C₄ アルキル、より好ましくは水素または C₁ ~ C₂ アルキル、最も好ましくは水素）であり、

R³ は、H または C₁ ~ C₅ アルキルである。

【手続補正 4】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0020

【補正方法】変更

【補正の内容】

【0020】

短鎖アルキルオキシグリコールをエンドキャップすることによって、反応体は、接触アルキルアミノ化工程において環化に耐性があるアルキルオキシアルコールモノアルキルエーテルである。

【手続補正5】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0021

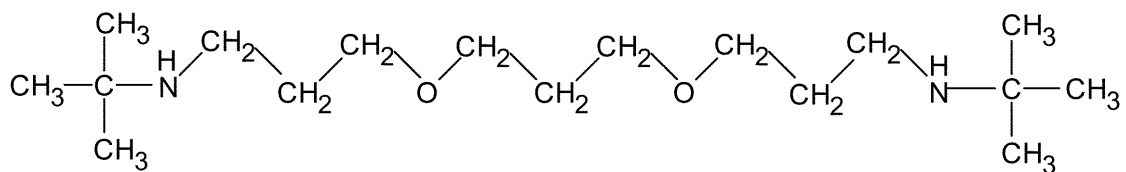
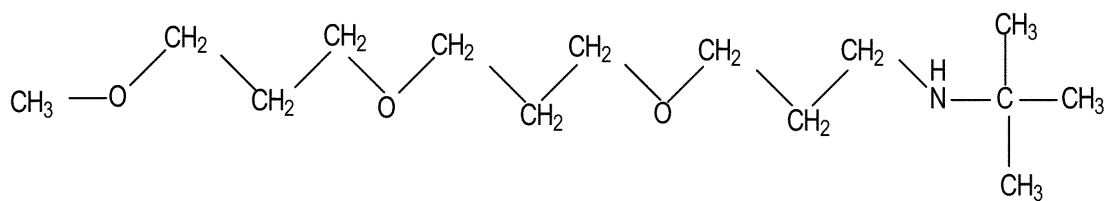
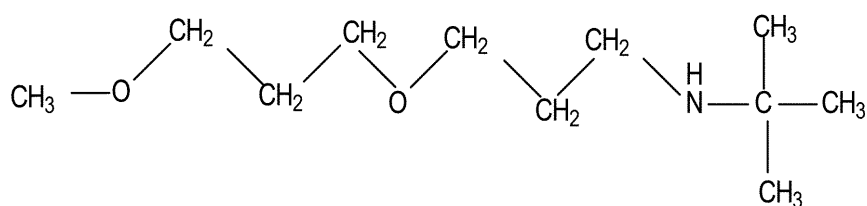
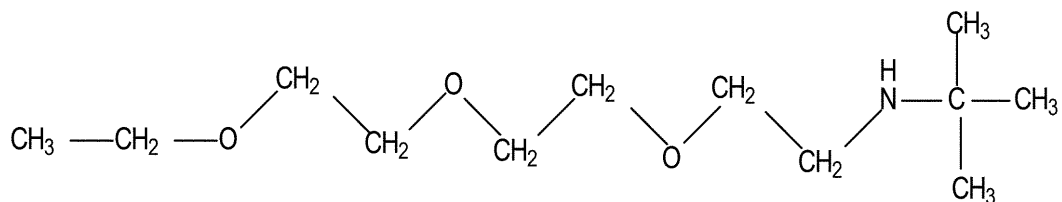
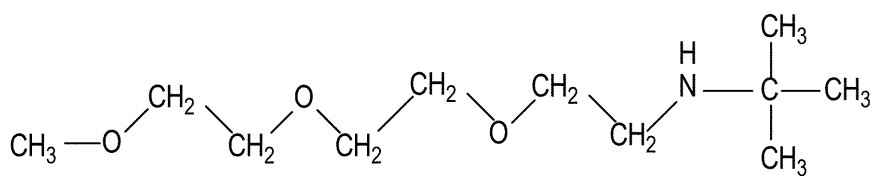
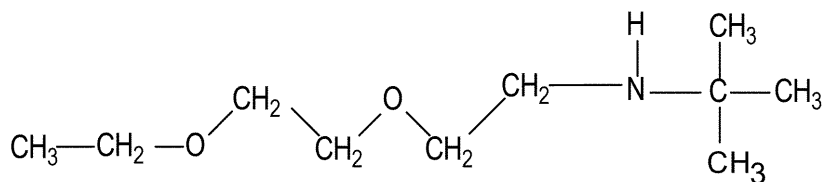
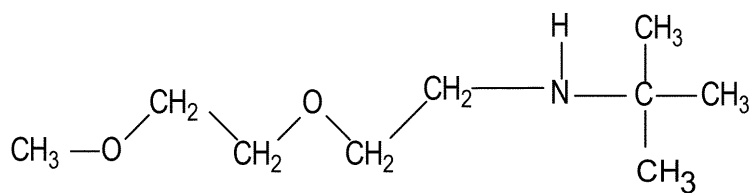
【補正方法】変更

【補正の内容】

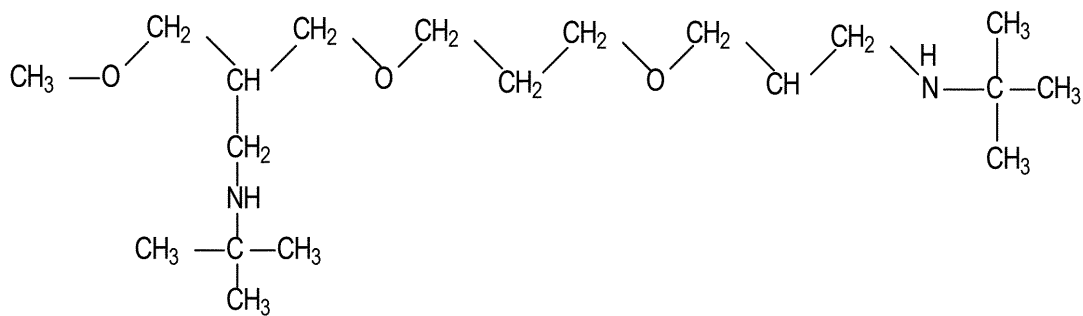
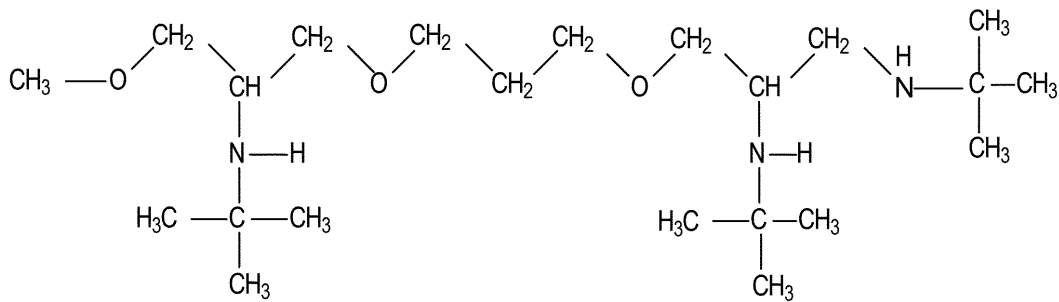
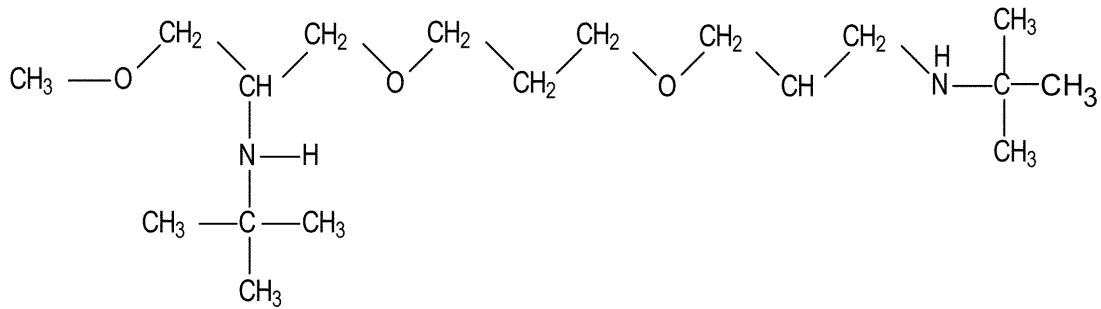
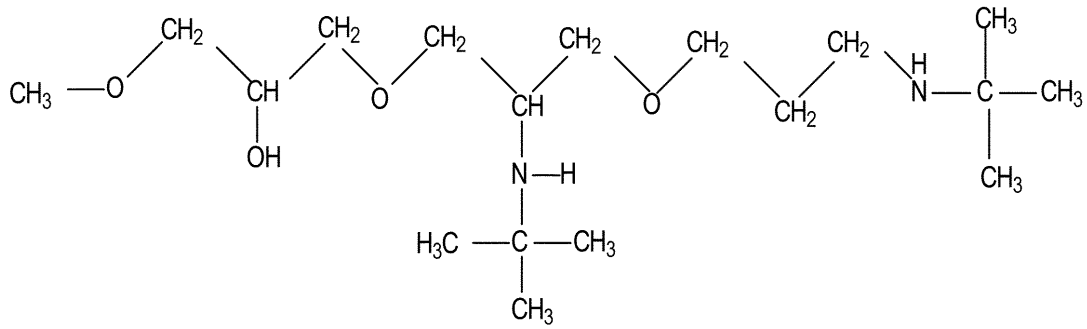
【0021】

望ましい生成物には、例として、かつ限定することなく、次のものが含まれる。

【化 1 2】



【化 1 3】



【手続補正 6】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0056

【補正方法】変更

【補正の内容】

【0056】

合成例

a. t-ブチルアミン(TBA) 109.9gを、モノメトキシジエチレングリコール 91.2gと、窒素下にオートクレーブ中室温で組み合わせた(モル比2:1)。(特許文献23)に記載される要件を満足する新規ニッケル充填触媒0.503g(0.25

重量%)を用い、オートクレーブへ加えた。触媒は、ニッケル64%を含み、還元率0.35を有した(特許文献23)の実施例1(b))。出発水素圧(室温)は、100psiであった。三回の別個の運転を、1800rpmで攪拌しながら、200、220、および225で行い、試料を時間毎に採取した。結果を図2に示す。これは、収率が、温度の上昇と共に向上したことを示す。生成物の収率が、少なくとも約80%に達した際に(未反応t-ブチルアミンを考慮に入れて調整された)、反応器からの流出物は、精製または分離なしに、 H_2S の吸収反応で用いられることができ、生成物は、実質的に、望ましくない副生物を含まない。

【手続補正7】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0057

【補正方法】変更

【補正の内容】

【0057】

b. t-ブチルアミン(TBA)を、上記の実施例(a)の手順を用いて、別々に、モノメトキシジエチレングリコール、モノエトキシジエチレングリコール、モノプロトキシジエチレングリコール、およびモノメトキシトリエチレングリコールの部分と反応させた(モル比2:1)。各場合において、生成物の収率(未反応TBAを考慮に入れて調整された)は、5~7時間で、収率90%以上を達成した。これを図3に示す。この生成レベルを達成することによって、別個の時間を要する精製工程の必要性が、省略される。

【手続補正8】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0058

【補正方法】変更

【補正の内容】

【0058】

c. t-ブチルアミンを、実施例(a)の触媒0.25重量%により225で、個々に、トリエチレングリコールおよびモノメトキシトリエチレングリコールと反応させた(モル比2:1)。5時間後、モノメトキシトリエチレングリコール-t-ブチルアミンの収率約95%が得られた。同じ5時間に亘って、トリエチレングリコールからの生成物の収率は、トリエチレングリコール-t-ブチルアミン約55%、およびビス-(t-ブチルアミノ)トリエチレングリコール10~12%であった(全収率約65~67%に対する)。しかし、時間がたち、トリエチレングリコールを用いる運転の期間が長くなると(例えば、22時間)、トリエチレングリコール-t-ブチルアミンの収率は、それが、ビス-(t-ブチルアミノ)トリエチレングリコールに転化され、その収率が、収率約63%へ増大(組み合わせ収率約95%以上に対する)するにつれて減少した(図4)。