

【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24年7月5日(2012.7.5)

【公表番号】特表2011-521871(P2011-521871A)

【公表日】平成23年7月28日(2011.7.28)

【年通号数】公開・登録公報2011-030

【出願番号】特願2011-509950(P2011-509950)

【国際特許分類】

C 01 B 39/48 (2006.01)

B 01 J 29/76 (2006.01)

B 01 D 53/94 (2006.01)

【F I】

C 01 B 39/48
B 01 J 29/76 A
B 01 D 53/36 1 0 2 D

【誤訳訂正書】

【提出日】平成24年5月21日(2012.5.21)

【誤訳訂正1】

【訂正対象書類名】特許請求の範囲

【訂正対象項目名】全文

【訂正方法】変更

【訂正の内容】

【特許請求の範囲】

【請求項1】

C H A 骨格構造および

(n Y O₂) : X₂ O₃

[式中、Xは三価元素であり、Yは四価元素であり、nは、少なくとも10、好ましくは少なくとも15である]のモル比を含む組成を有する銅含有ゼオライト材料を製造する方法において、

(i) 少なくとも1つのX₂ O₃源および少なくとも1つのY O₂源、CHA骨格構造を有するゼオライト材料の製造に好適な少なくとも1つの構造誘導剤、ならびに少なくとも1つのCu源を含む水溶液を製造し、前記水溶液がリン源を含まず、および1000 ppm以下のアルカリ金属含量を有し、

(ii) リン源を含まない(i)による水溶液を熱水結晶化し、CHA骨格構造を有する銅含有ゼオライト材料を含む懸濁液を得、

前記構造誘導剤が、水酸化1-アダマンチルトリメチルアンモニウムと水酸化ベンジルトリメチルアンモニウムとの混合物、または水酸化1-アダマンチルトリメチルアンモニウムと水酸化テトラメチルアンモニウムとの混合物、または水酸化1-アダマンチルトリメチルアンモニウムと水酸化ベンジルトリメチルアンモニウムと水酸化テトラメチルアンモニウムとの混合物であり、水酸化1-アダマンチルトリメチルアンモニウムと水酸化ベンジルトリメチルアンモニウム、または水酸化テトラメチルアンモニウム、または水酸化ベンジルトリメチルアンモニウムと水酸化テトラメチルアンモニウムの合計とのモル比が1:5~1:1の範囲であることを特徴とする、上記製造方法。

【請求項2】

Xは、Al、B、In、Gaおよびそれらの2つ以上の混合物からなる群から選択され、Yは、Si、Sn、Ti、Zr、Geおよびそれらの2つ以上の混合物からなる群から選択され、Xは、好ましくはAlであり、Yは、好ましくはSiである、請求項1に記載の方法。

【請求項3】

Cuおよびアンモニアを含む水溶液が、Cu源として使用される、請求項1または2に記載の方法。

【請求項4】

(i)による水溶液の製造のために、(i)により得られた水溶液が、

(nYO₂) : X₂O₃

[式中、nは、少なくとも10、好ましくは少なくとも15、より好ましくは15~70の範囲である]のモル比、および

(mCu) : ((nYO₂) + X₂O₃)

[式中、mは少なくとも0.005、より好ましくは0.02~0.04の範囲である]のモル比を示す量で、少なくとも1つのYO₂源、少なくとも1つのX₂O₃源およびCu源が使用される、請求項1から3までのいずれか1項に記載の方法。

【請求項5】

(ii)が施された水溶液のpHが、12~14の範囲である、請求項1から4までのいずれか1項に記載の方法。

【請求項6】

(iii)による熱水結晶化が、100~200の範囲の温度で、12~144時間の時間にかけて実施される、請求項1から5までのいずれか1項に記載の方法。

【請求項7】

(iv)による熱水結晶化が施された水溶液が、好ましくは、La : Cu原子比が1:10~1:100の範囲になる量でLa源を含む、請求項1から6までのいずれか1項に記載の方法。

【請求項8】

(viii)Cu含有ゼオライト材料を、(ii)により得られた懸濁液から分離すること、

(iv)(viii)により分離されたCu含有ゼオライト材料を、100~150の範囲の温度で乾燥させること、および

(v)(iv)により乾燥されたCu含有ゼオライト材料を、300~600の範囲の温度で焼成することをさらに含む、請求項1から7までのいずれか1項に記載の方法。

【請求項9】

(i)の後に、Cu源が使用されない、請求項1から8までのいずれか1項に記載の方法。

【請求項10】

請求項1から9までのいずれか1項に記載の方法によって得られる、骨格構造CHAを有する、Cu含有ゼオライト材料。

【請求項11】

骨格構造CHAを有し、1000ppm以下のアルカリ金属含量を有し、

(nYO₂) : X₂O₃

[Xは三価元素であり、Yは四価元素であり、nは、少なくとも10、好ましくは少なくとも15、より好ましくは15~70の範囲である]のモル比を含む組成を有するCu含有ゼオライト材料であって、Cu元素として計算されたゼオライト材料のCu含有量は、焼成ゼオライト材料の全質量に対して少なくとも0.5質量%であり、焼成材料のP含量が500ppm未満である、Cu含有ゼオライト材料。

【請求項12】

Cu元素として計算されたゼオライト材料のCu含有量が、焼成ゼオライト材料の全質量に対して、2.0~4.0質量%、好ましくは2.5~3.5質量%の範囲である、請求項10または11に記載のゼオライト材料。

【請求項13】

好ましくは、La : Cu原子比が1:10~1:100の範囲になる量でLaをさらに含む、請求項10から12までのいずれか1項に記載のゼオライト材料。

【請求項 14】

Xは、A1、B、In、Gaおよびそれらの2つ以上の混合物からなる群から選択され、Yは、Si、Sn、Ti、Zr、Geおよびそれらの2つ以上の混合物からなる群から選択され、Xは、好ましくはA1であり、Yは、好ましくはSiである、請求項10から13までのいずれか1項に記載のゼオライト材料。

【請求項 15】

アルカリ金属含有量が500 ppm以下、好ましくは300 ppm以下である、請求項10から14までのいずれか1項に記載のゼオライト材料。

【請求項 16】

焼成ゼオライト材料の全有機炭素(TOC)含有量が、焼成ゼオライト材料の全質量に對して0.1質量%以下である、請求項10から15までのいずれか1項に記載のゼオライト材料。

【請求項 17】

示差熱分析により測定された熱安定性が、1100～1400の範囲、好ましくは1150～1400の範囲である、請求項10から16までのいずれか1項に記載のゼオライト材料。

【請求項 18】

焼成ゼオライト材料の結晶子の少なくとも90%の縁が、SEMにより測定された平均長さが1～3マイクロメートルの範囲である、請求項10から17までのいずれか1項に記載のゼオライト材料。

【請求項 19】

好ましくは耐火性担体に堆積される、請求項10から18までのいずれか1項に記載のゼオライト材料を含む、触媒。

【請求項 20】

窒素酸化物NO_xの選択的還元(SCR)；NH₃の酸化、特にディーゼルシステムにおけるNH₃スリップの酸化；N₂Oの分解；予混合圧縮着火(HCCI)エンジンなどの高度排気システムにおける排気制御のための触媒として；流動触媒分解(FCC)法における添加剤として；有機変換反応における触媒として；または「固定源」法における触媒として、最も好ましくは窒素酸化物NO_xの選択的還元のための触媒としての、請求項13に記載のゼオライト材料または請求項19に記載の触媒の使用方法。

【誤訳訂正2】

【訂正対象書類名】明細書

【訂正対象項目名】0010

【訂正方法】変更

【訂正の内容】

【0010】

本発明のさらなる目的は、CHA骨格構造を有する無リンCu含有ゼオライト材料、特に、Cu含有量が高いCHA骨格構造を有する無リンCu含有ゼオライト材料を製造するための新規の方法を提供することである。

【誤訳訂正3】

【訂正対象書類名】明細書

【訂正対象項目名】0013

【訂正方法】変更

【訂正の内容】

【0013】

したがって、本発明は、CHA骨格構造および
(nYO₂) : X₂O₃

[式中、Xは三価元素であり、Yは四価元素であり、nは、好ましくは少なくとも10、より好ましくは少なくとも15である]のモル比を含む組成を有する銅含有ゼオライト材料を製造するための方法であって、

(i) 少なくとも 1 つの X_2O_3 源および少なくとも 1 つの YO_2 源、CHA 骨格構造を有するゼオライト材料の製造に好適な少なくとも 1 つの構造誘導剤、ならびに少なくとも 1 つの Cu 源を含む水溶液を製造することであって、前記水溶液がリン源を含まないこと、および

(ii) リン源を含まない (i) による水溶液を熱水結晶化して、CHA 骨格構造を有する銅含有ゼオライト材料を含む懸濁液を得ることを含む方法に関する。

【誤訳訂正 4】

【訂正対象書類名】明細書

【訂正対象項目名】0016

【訂正方法】変更

【訂正の内容】

【0016】

好ましくは、三価元素 X は、A1、B、In、Ga およびそれらの 2 種以上の混合物からなる群から選択される。

【誤訳訂正 5】

【訂正対象書類名】明細書

【訂正対象項目名】0033

【訂正方法】変更

【訂正の内容】

【0033】

したがって、本発明は、X が、A1、B、In、Ga およびそれらの 2 種以上の混合物からなる群から選択され、Y が、Si、Sn、Ti、Zr、Ge およびそれらの 2 種以上の混合物からなる群から選択され、X が好ましくは A1 であり、Y が好ましくは Si である上記方法に関する。

【誤訳訂正 6】

【訂正対象書類名】明細書

【訂正対象項目名】0150

【訂正方法】変更

【訂正の内容】

【0150】

Cu 含有ゼオライト材料自体

本発明は、また、骨格構造 CHA を有し、P を含まず、

(n YO_2) : X_2O_3

[式中、X は三価元素であり、Y は四価元素であり、n は少なくとも 10、好ましくは少なくとも 15 である] のモル比を含む組成を有し、Cu 元素として計算したゼオライト材料の Cu 含有量が、焼成ゼオライト材料の全質量に対して少なくとも 0.5 質量 % である Cu 含有ゼオライト自体に関する。前記記載内容において、「骨格構造 CHA を有し、P を含まない Cu 含有ゼオライト材料自体」という用語は、水を実質的に含まず、構造誘導剤および有機酸などの他の有機化合物が焼成によって実質的に除去された焼成ゼオライト材料に関する。

【誤訳訂正 7】

【訂正対象書類名】明細書

【訂正対象項目名】0158

【訂正方法】変更

【訂正の内容】

【0158】

好ましくは、三価元素 X は、A1、B、In、Ga およびそれらの 2 つ以上の混合物からなる群から選択される。本発明の特に好適な実施態様によれば、三価元素 X は A1 であり、さらにより好ましくは、A1 が、CHA ゼオライト骨格構造を構成する唯一の三価元

素である。