

【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27年7月9日(2015.7.9)

【公表番号】特表2015-501276(P2015-501276A)

【公表日】平成27年1月15日(2015.1.15)

【年通号数】公開・登録公報2015-003

【出願番号】特願2014-535857(P2014-535857)

【国際特許分類】

C 01 B 39/48 (2006.01)

【F I】

C 01 B 39/48

【手続補正書】

【提出日】平成27年5月20日(2015.5.20)

【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】

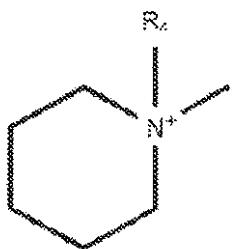
【特許請求の範囲】

【請求項1】

MSEフレームワーク型を有する結晶性モレキュラーシーブの合成方法であって、水源と、ケイ素、スズ、チタン、バナジウム、およびゲルマニウムの少なくとも1つから選択される4価元素、Yの酸化物源と、任意には3価元素、X源と、アルカリ又はアルカリ土類金属、M源と、下記の一般構造: R<sub>1</sub>-R<sub>3</sub>-R<sub>2</sub>を有する有機カチオン、Q源とを含んで成る反応混合物を結晶化させることを含む、方法。

[式中、R<sub>1</sub>およびR<sub>2</sub>は、同じ又は異なっており、R<sub>1</sub>若しくはR<sub>2</sub>又はR<sub>1</sub>およびR<sub>2</sub>の両方が、式

【化1】



(i)

のN-アルキルピペリジニウム基である、又は、R<sub>1</sub>もしくはR<sub>2</sub>またはR<sub>1</sub>およびR<sub>2</sub>の両方が、式

【化2】



(II)

のキヌクリジニウム基であり、

$R_3$  は、式  $(CH_2)_n$  ( $n$  は 4 ~ 6 である) のポリメチレン基である、又は、 $R_3$  は 5 ~ 8 個の炭素原子を有するシクロアルキレン基であり、

$R_4$  は、1 ~ 4 個の炭素原子を有するアルキル基である。】

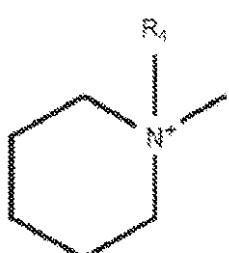
【請求項2】

$R_4$  はメチル基である、請求項1に記載の方法。

【請求項3】

$R_1$  および  $R_2$  が両方とも、式

【化3】



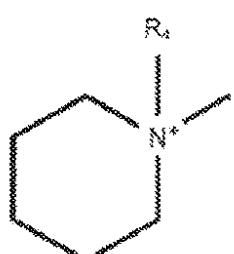
(I)

の  $N$  - アルキルピペリジニウム基である、請求項2に記載の方法。

【請求項4】

$R_1$  が、式

【化4】

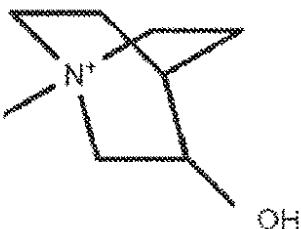


(D)

の  $N$  - アルキルピペリジニウム基であり、

$R_2$  が、式

## 【化5】



(II)

のキヌクリジニウム基であり、および、nが4又は5である、請求項2に記載の方法。

## 【請求項5】

前記反応混合物中のモル比Q/YO<sub>2</sub>が、約0.01～約1.0の範囲にある、請求項1に記載の方法。

## 【請求項6】

前記反応混合物中のモル比Q/YO<sub>2</sub>が、約0.05～約0.7の範囲にある、請求項1に記載の方法。

## 【請求項7】

前記反応混合物が、アルミニウム、ホウ素、ガリウム、鉄、およびクロムの少なくとも1つから選択される、3価元素、Xの酸化物源を含んで成る、請求項1に記載の方法。

## 【請求項8】

前記反応混合物中のモル比YO<sub>2</sub>/X<sub>2</sub>O<sub>3</sub>が、約4～約200の範囲にある、請求項7に記載の方法。

## 【請求項9】

前記反応混合物中のモル比YO<sub>2</sub>/X<sub>2</sub>O<sub>3</sub>が、約8～約120の範囲にある、請求項7に記載の方法。

## 【請求項10】

前記反応混合物が、下記のモル組成：

YO<sub>2</sub>/X<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 約4～約200

H<sub>2</sub>O/YO<sub>2</sub> 約5～約200

OH<sup>-</sup>/YO<sub>2</sub> 約0.05～約1

M/YO<sub>2</sub> 約0.05～約2

Q/YO<sub>2</sub> 約0.01～約1

を有する、請求項7に記載の方法。

## 【請求項11】

前記反応混合物が、下記のモル組成：

YO<sub>2</sub>/X<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 約8～約120

H<sub>2</sub>O/YO<sub>2</sub> 約14～約50

OH<sup>-</sup>/YO<sub>2</sub> 約0.10～約0.53

M/YO<sub>2</sub> 約0.15～約0.9

Q/YO<sub>2</sub> 約0.05～約0.7

を有する、請求項7に記載の方法。

## 【請求項12】

前記4価元素、Yがケイ素である、請求項1に記載の方法。

## 【請求項13】

前記3価元素、Xがアルミニウムである、請求項1に記載の方法。

## 【請求項14】

前記アルカリ又はアルカリ土類金属、Mが、ナトリウムおよびカリウムの少なくとも1つを含んで成る、請求項1に記載の方法。

## 【請求項15】

前記アルカリ又はアルカリ土類金属、Mがカリウムである、請求項1に記載の方法。

**【請求項16】**

前記反応混合物が、MSEフレームワーク型モレキュラーシープの種結晶を含んで成っていない、請求項1に記載の方法。

**【請求項17】**

MSEフレームワーク型モレキュラーシープの種結晶が、前記反応混合物中のモル比種結晶/YO<sub>2</sub>が約0.001～約0.1となる量で存在する、請求項1に記載の方法。

**【請求項18】**

前記結晶化が、約100～約200の温度で最大約28日間行われる、請求項1に記載の方法。

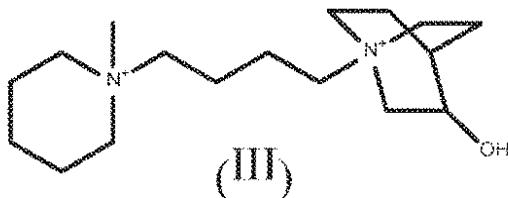
**【請求項19】**

前記結晶化が、約145～約175の温度で約24時間～約170時間行われる、請求項1に記載の方法。

**【請求項20】**

Qが、式

**【化6】**

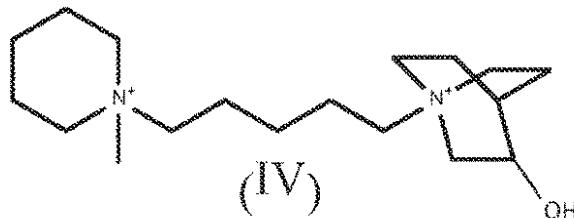


の3-ヒドロキシ-1-(4-(1-メチルピペリジン-1-イウム-1-イル)ブチル)キヌクリジン-1-イウムジカチオンである、請求項1に記載の方法。

**【請求項21】**

Qが、式

**【化7】**

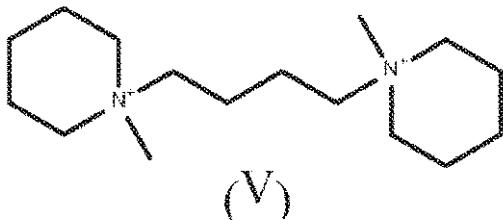


の3-ヒドロキシ-1-(5-(1-メチルピペリジン-1-イウム-1-イル)ペンチル)キヌクリジン-1-イウムジカチオンである、請求項1に記載の方法。

**【請求項22】**

Qが、式

**【化8】**



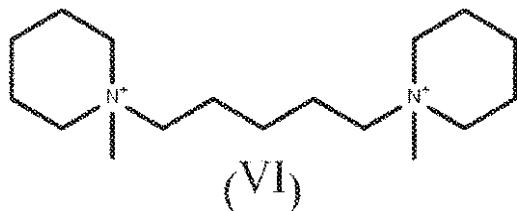
の1,1'-(ブタン-1,4-ジイル)ビス(1-メチルピペリジン-1-イウム)ジ

カチオンである、請求項 1 に記載の方法。

【請求項 2 3】

Q が、式

【化 9】



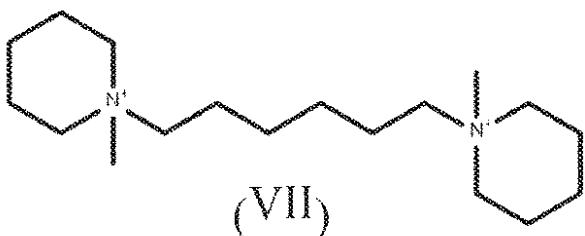
の 1 , 1 ' - ( ペンタン - 1 , 5 - ジイル ) ビス ( 1 - メチルピペリジン - 1 - イウム )

ジカチオンである、請求項 1 に記載の方法。

【請求項 2 4】

Q が、式

【化 1 0】



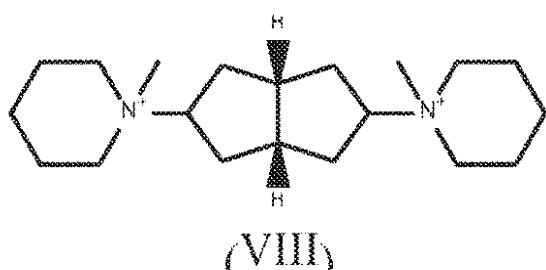
の 1 , 1 ' - ( ヘキサン - 1 , 6 - ジイル ) ビス ( 1 - メチルピペリジン - 1 - イウム )

ジカチオンである、請求項 1 に記載の方法。

【請求項 2 5】

Q が、式

【化 1 1】



の 1 , 1 ' - ( ( 3 a s , 6 a s ) - オクタヒドロペンタレン - 2 , 5 - ジイル ) ビス (

1 - メチルピペリジン - 1 - イウム ) ジカチオンである、請求項 1 に記載の方法。

【請求項 2 6】

M S E フレームワーク型を有し、かつ 3 - ヒドロキシ - 1 - ( 4 - ( 1 - メチルピペリジン - 1 - イウム - 1 - イル ) プチル ) キヌクリジン - 1 - イウム、1 - ( 5 - ( 1 - メチルピペリジン - 1 - イウム - 1 - イル ) ペンチル ) キヌクリジン - 1 - イウム、1 , 1 ' - ( ブタン - 1 , 4 - ジイル ) ビス ( 1 - メチルピペリジン - 1 - イウム ) 、1 , 1 ' - ( ペンタン - 1 , 5 - ジイル ) ビス ( 1 - メチルピペリジン - 1 - イウム ) 、1 , 1 ' - ( ヘキサン - 1 , 6 - ジイル ) ビス ( 1 - メチルピペリジン - 1 - イウム ) 、および 1 , 1 ' - ( ( 3 a s , 6 a s ) - オクタヒドロペンタレン - 2 , 5 - ジイル ) ビス ( 1 - メチルピペリジン - 1 - イウム ) から成る群から選択されるジカチオンをその細孔構造内に含んで成る結晶性モレキュラーシーブ。

【請求項 2 7】

無水物で合成形態として下記のラインを含むX線回析パターンを有する、請求項26に記載のモレキュラーシープ。

<u>d (Å)</u>	<u>相対強度 [100×1/1 (o)]</u>
<u>13.56+/-0.39</u>	<u>VW</u>
<u>12.93+/-0.37</u>	<u>M-S</u>
<u>10.92+/-0.31</u>	<u>W</u>
<u>10.16+/-0.29</u>	<u>VW-W</u>
<u>9.15+/-0.26</u>	<u>VW-W</u>
<u>8.19+/-0.23</u>	<u>VW</u>
<u>4.58+/-0.13</u>	<u>W</u>
<u>4.54+/-0.13</u>	<u>W</u>
<u>4.44+/-0.12</u>	<u>W</u>
<u>4.32+/-0.12</u>	<u>VW</u>
<u>4.23+/-0.12</u>	<u>VW</u>
<u>4.10+/-0.12</u>	<u>VS</u>
<u>4.06+/-0.12</u>	<u>M</u>
<u>3.98+/-0.11</u>	<u>W</u>
<u>3.88+/-0.11</u>	<u>M</u>
<u>3.80+/-0.11</u>	<u>VW</u>
<u>3.40+/-0.10</u>	<u>VW</u>
<u>3.24+/-0.09</u>	<u>W</u>
<u>2.90+/-0.08</u>	<u>VW</u>