【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２部門第１区分
【発行日】令和5年2月28日(2023.2.28)

【公開番号】特開2023-18082(P2023-18082A)
【公開日】令和5年2月7日(2023.2.7)
【年通号数】公開公報(特許)2023-024
【出願番号】特願2022-187184(P2022-187184)
【国際特許分類】
Ｂ０１Ｊ 29/80(2006.01)
Ｂ０１Ｊ 35/08(2006.01)
Ｂ０１Ｊ 37/08(2006.01)
Ｂ０１Ｊ 23/26(2006.01)
Ｂ０１Ｊ 37/04(2006.01)
Ｂ０１Ｊ 23/80(2006.01)
Ｂ０１Ｊ 23/06(2006.01)
Ｂ０１Ｊ 29/40(2006.01)
Ｂ０１Ｊ 29/48(2006.01)
Ｂ０１Ｊ 37/02(2006.01)
Ｃ０７Ｃ 15/08(2006.01)
Ｃ０７Ｃ 1/04(2006.01)
【ＦＩ】
Ｂ０１Ｊ 29/80 Ｍ
Ｂ０１Ｊ 35/08 Ｂ
Ｂ０１Ｊ 37/08
Ｂ０１Ｊ 23/26 Ｍ
Ｂ０１Ｊ 37/04 １０２
Ｂ０１Ｊ 23/80 Ｍ
Ｂ０１Ｊ 23/06 Ｍ
Ｂ０１Ｊ 29/40 Ｍ
Ｂ０１Ｊ 29/48 Ｍ
Ｂ０１Ｊ 37/02 ３０１Ｚ
Ｃ０７Ｃ 15/08
Ｃ０７Ｃ 1/04

【手続補正書】
【提出日】令和5年2月17日(2023.2.17)
【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】
Ａ）合成ガスを触媒反応させてメタノールに転化するための触媒Ａ、及び
Ｂ）触媒反応させてキシレンを生成するための触媒Ｂを含む、合成ガスからパラキシレンを直接製造するための複合触媒であって、
前記触媒Ｂは、コアは水素型ＺＳＭ－５モレキュラーシーブであり、シェルは炭素膜、Ｓｉｌｉｃａｌｉｔｅ－１、ＭＣＭ－４１、ＳＢＡ－１５、ＫＩＴ－６、ＭＳＵシリーズ、シリカ、グラフェン、カーボンナノチューブ、グラファイト、活性炭、金属酸化物膜か

ら選ばれた１つ又は複数であり、前記金属酸化物膜はＣａＯである、コアシェル触媒である、複合触媒。
【請求項２】
シェルはシリカ膜、Ｓｉｌｉｃａｌｉｔｅ－１、金属酸化物膜、ＭＣＭ－４１、ＳＢＡ－１５、ＫＩＴ－６から選ばれた１つ又は複数である、請求項１に記載の複合触媒。
【請求項３】
コアとシェルの重量比は１００：１～１：１００である、請求項１又は２に記載の複合触媒。
【請求項４】
コアとシェルの重量比は１０：１～１：１０である、請求項３に記載の複合触媒。
【請求項５】
コアとシェルの重量比は５：１～１：５である、請求項４に記載の複合触媒。
【請求項６】
コアとシェルの重量比は５：１～１：１である、請求項５に記載の複合触媒。
【請求項７】
前記複合触媒が、触媒Ａと触媒Ｂの混合物の形態を呈し、触媒Ａが触媒Ｂを物理的若しくは化学的にカプセル化するか、又は触媒Ｂが触媒Ａを物理的若しくは化学的にカプセル化する、請求項１～６のいずれかの複合触媒。
【請求項８】
触媒Ａが第１金属成分と第２金属成分を含むか、又は第１金属成分と第２金属成分からなり、第１金属成分はＣｒ、Ｆｅ、Ｚｒ、Ｉｎ、Ｇａ、Ｃｏ、Ｃｕから選ばれた元素、その酸化物、その複合酸化物又はそれらの任意の混合物であり、第２金属成分はＺｎ、Ｎａ、Ａｌ、Ａｇ、Ｃｅ、Ｋ、Ｍｎ、Ｐｄ、Ｎｉ、Ｌａ、Ｖから選ばれた元素、その酸化物、その複合酸化物又はそれらの任意の混合物である、請求項１～７のいずれかに記載の複合触媒。
【請求項９】
第１金属成分がＣｒ、Ｃｏ、Ｃｕ、Ｚｒから選ばれた元素、その酸化物、その複合酸化物又はそれらの任意の混合物であり、及び／又は、第２金属成分がＺｎ、Ａｌから選ばれた元素、その酸化物、その複合酸化物又はそれらの任意の混合物である、請求項８に記載の複合触媒。
【請求項１０】
触媒Ａが$ZnO-Cr_2O_3$である、請求項８又は９に記載の複合触媒。
【請求項１１】
触媒Ａにおける第１金属成分と第２金属成分の金属元素のモル比は、１０００：１～１：１００である、請求項８～１０のいずれかに記載の複合触媒。
【請求項１２】
触媒Ａにおける第１金属成分と第２金属成分の金属元素のモル比は、１００：１～１：５０である、請求項１１に記載の複合触媒。
【請求項１３】
触媒Ａにおける第１金属成分と第２金属成分の金属元素のモル比は、１０：１～１：１０である、請求項１２に記載の複合触媒。
【請求項１４】
触媒Ａにおける第１金属成分と第２金属成分の金属元素のモル比は、３：１～１：３である、請求項１３に記載の複合触媒。
【請求項１５】
触媒Ａと触媒Ｂの重量比が１：９９～９９：１である、請求項１～１４のいずれかに記載の複合触媒。
【請求項１６】
触媒Ａと触媒Ｂの重量比が２０：８０～８０：２０である、請求項１５に記載の複合触媒。

【請求項１７】
触媒Ａと触媒Ｂの重量比が３０：７０～７０：３０である、請求項１６に記載の複合触媒。
【請求項１８】
触媒Ａと触媒Ｂの重量比が５０：５０～７５：２５である、請求項１７に記載の複合触媒。
【請求項１９】
１）触媒Ａの粉末と触媒Ｂの粉末をそれぞれ製造する工程、
２ａ）触媒Ａの粉末と触媒Ｂの粉末を任意に選択した接着剤と混合してから、複合触媒に成形する工程、又は
２ｂ）触媒Ａの粉末と触媒Ｂの粉末をそれぞれ成形することで、触媒Ａの成形体と触媒Ｂの成形体を得てから、これらを混合する工程、又は
２ｃ）触媒Ａをコアとし、触媒Ｂをシェルとして物理的又は化学的にカプセル化する工程、又は
２ｄ）触媒Ｂをコアとし、触媒Ａをシェルとして物理的又は化学的にカプセル化する工程を含む、
請求項１～１８のいずれかに記載の複合触媒の製造方法。
【請求項２０】
触媒Ａは逐次含浸法、共含浸法、尿素法及び共沈法から選ばれたいずれか１つ又は複数により製造される、請求項１９に記載の方法。
【請求項２１】
逐次含浸法、共含浸法、尿素法及び／又は共沈法による触媒Ａの焼成工程において、工程条件は、焼成雰囲気が空気であり、及び／又は、焼成温度が２００～７００℃であり、及び／又は、焼成時間が３～８時間である、請求項２０に記載の方法。
【請求項２２】
焼成温度が４００～６００℃である、請求項２１に記載の方法。
【請求項２３】
焼成時間が４～６時間である、請求項２１又は２２に記載の方法。
【請求項２４】
請求項１～１８のいずれかに記載の複合触媒又は請求項１９～２３のいずれかに記載の製造方法により製造された複合触媒の、合成ガスからパラキシレンを直接製造するための触媒としての使用。
【請求項２５】
合成ガスにおける水素と一酸化炭素のモル比が０．１～５であり、反応圧力が１～１０ＭＰａであり、反応温度が１５０～６００℃であり、及び／又は、空間速度は２００～８０００h^{-1}である、請求項２４に記載の使用。
【請求項２６】
合成ガスにおける水素と一酸化炭素のモル比が１～４である、請求項２５に記載の使用。
【請求項２７】
反応圧力が２～８ＭＰａである、請求項２５又は２６に記載の使用。
【請求項２８】
反応温度が２５０～５００℃である、請求項２５～２７のいずれかに記載の使用。
【請求項２９】
空間速度は５００～５０００h^{-1}である、請求項２５～２８のいずれかに記載の使用。
【請求項３０】
合成ガスを通気して反応させる前に、複合触媒をまず還元前処理する、請求項２５～２９のいずれかに記載の使用。
【請求項３１】

還元前処理の工程条件としては、還元ガスが純水素であり、前処理温度が３００～７００℃であり、前処理圧力が０．１～１ＭＰａであり、前処理水素ガスの体積空間速度が５００～８０００ｈ$^{-1}$であり、及び／又は前処理還元時間が２～１０時間である、請求項３０に記載の使用。

【請求項３２】

前処理温度が４００～６００℃である、請求項３１に記載の使用。

【請求項３３】

前処理圧力が０．１～０．５ＭＰａである、請求項３１又は３２に記載の使用。

【請求項３４】

前処理水素ガスの体積空間速度が１０００～４０００ｈ$^{-1}$である、請求項３１～３３のいずれかに記載の使用。

【請求項３５】

前処理還元時間が４～６時間である、請求項３１～３４のいずれかに記載の使用。

【請求項３６】

Ａ）触媒Ａ及び触媒Ｂを含む複合触媒を用いて合成ガスを触媒反応させてメタノールに転化する工程、及び

Ｂ）触媒Ａ及び触媒Ｂを含む複合触媒を用いてキシレンを生成する工程を含む、合成ガスからパラキシレンを直接製造する方法であって、前記触媒Ｂがコアは水素型ＺＳＭ－５モレキュラーシーブであり、シェルは炭素膜、Ｓｉｌｉｃａｌｉｔｅ－１、ＭＣＭ－４１、ＳＢＡ－１５、ＫＩＴ－６、ＭＳＵシリーズ、シリカ、グラフェン、カーボンナノチューブ、グラファイト、活性炭、金属酸化物膜から選ばれた１つ又は複数であり、前記金属酸化物膜はＣａＯであるコアシェル触媒である、方法。