

(19) 日本国特許庁(JP)

(12) 特 許 公 報(B2)

(11) 特許番号

特許第5911560号

(P5911560)

(45) 発行日 平成28年4月27日(2016.4.27)

(24) 登録日 平成28年4月8日(2016.4.8)

(51) Int.Cl. F I
C O 7 C 5/333 (2006.01)
C O 7 C 11/167 (2006.01)
C O 7 C 11/08 (2006.01)
C O 7 C 63/16 (2006.01)
C O 7 C 51/353 (2006.01)

請求項の数 13 (全 10 頁) 最終頁に続く

(21) 出願番号	特願2014-503061 (P2014-503061)	(73) 特許権者	501073862
(86) (22) 出願日	平成24年3月21日(2012.3.21)		エボニック デグサ ゲーエムベーハー
(65) 公表番号	特表2014-519478 (P2014-519478A)		Evonik Degussa GmbH
(43) 公表日	平成26年8月14日(2014.8.14)		ドイツ連邦共和国 エッセン レリングハウザー シュトラーセ 1-11
(86) 国際出願番号	PCT/EP2012/054975		Rellinghauser Strasse 1-11, D-45128 Essen, Germany
(87) 国際公開番号	W02012/136479	(74) 代理人	100114890
(87) 国際公開日	平成24年10月11日(2012.10.11)		弁理士 アインゼル・フェリックス＝ラインハルト
審査請求日	平成27年2月16日(2015.2.16)	(74) 代理人	100099483
(31) 優先権主張番号	102011006721.3		弁理士 久野 琢也
(32) 優先日	平成23年4月4日(2011.4.4)		
(33) 優先権主張国	ドイツ(DE)		

最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 1-ブテンおよび1, 3-ブタジエン誘導体の製造方法

(57) 【特許請求の範囲】

【請求項1】

1-ブテンおよび1, 3-ブタジエン誘導体の製造方法であって、以下の方法工程：

a) n-ブタン、水素、別の易沸性の副成分および高沸分を含んでいる出発ガス流を非酸化的に触媒により脱水素化し、その結果、未反応のn-ブタン、1-ブテン、両方の2-ブテン、1, 3-ブタジエン、水素、別の易沸性の副成分および高沸分を含んでいる混合生成物が生じる工程；

b) 水素、別の易沸分および高沸分を分離し、その結果、n-ブタン、1-ブテン、両方のブテンおよび1, 3-ブタジエンを含んでいる混合生成物が得られる工程；

c) 方法工程b) で得られた1, 3-ブタジエンの一部を反応させて誘導体にする工程；

d) 方法工程c) で得られた1, 3-ブタジエン誘導体を分離する工程；

e) 方法工程c) で誘導体化されなかった1, 3-ブタジエンを選択的水素化して1-ブテンにする工程；

f) 工程e) で得られた炭化水素流から1-ブテンを蒸留分離し、その結果残留流が残留する工程、

を含み、

前記1, 3-ブタジエン誘導体が、1, 4-シクロオクタジエン、1, 5, 9-シクロデカトリエン、4-シクロヘキセン-1, 2-ジカルボン酸誘導体、1, 7-オクタジエン、非分岐鎖の非環式オクタトリエン及び2, 7-オクタジエニル化合物からなる群から選択される、前記方法。

10

20

【請求項 2】

方法工程 f) で生じる残留流が、すべてまたは部分的に出発ガス流に供給される、請求項 1 に記載の方法。

【請求項 3】

前記残留流中に存在する直鎖ブテンが、供給の前に少なくとも部分的に反応して、この反応生成物が供給の前に前記残留流から除去される、請求項 2 に記載の方法。

【請求項 4】

前記反応が、オリゴマー化である、請求項 3 に記載の方法。

【請求項 5】

方法工程 a) からの前記出発ガス流が、フィールドブタンの n-ブタン留分である、請求項 1 から 4 までのいずれか 1 項に記載の方法。 10

【請求項 6】

方法工程 a) からの出発ガス流が、スチームクラッカーまたは FC クラッカーの C₄ カットの後処理からの直鎖 C₄ 炭化水素の混合物である、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 7】

方法工程 c) の 1, 3-ブタジエンが、電子不足の C-C 多重結合を有するジエノフィルと反応して、ディールス・アルダー生成物になる、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】

前記ジエノフィルが、
・無水マレイン酸、
・マレイン酸およびそのアルキルエステル、ここで、このアルキル基は同一または異なっていてよく、かつそれぞれ 1～10 個の炭素原子を有している、
・フマル酸およびそのアルキルエステル、ここで、このアルキル基は同一または異なっていてよく、かつそれぞれ 1～10 個の炭素原子を有している、
・マレイン酸イミドおよびその N-置換誘導体、ここで、窒素に接している置換基は、1～10 個の炭素原子を有している、
から選択される、請求項 7 に記載の方法。 20

【請求項 9】

方法工程 c) の 1, 3-ブタジエンが、プロトン性求核試薬と反応して、相応の 2, 7-オクタジエニル誘導体になり、前記求核基が 1 位の炭素に結合している、請求項 1 から 6 までのいずれか 1 項に記載の方法。 30

【請求項 10】

2, 7-オクタジエニル化合物として、1-メトキシオクター-2, 7-ジエンが形成される、請求項 9 に記載の方法。

【請求項 11】

方法工程 e) の選択的水素化が、パラジウム触媒の使用下に行われる、請求項 1 から 10 までのいずれか 1 項に記載の方法。

【請求項 12】

前記パラジウム触媒が、活性炭、酸化アルミニウムから選択される担体に設けられている、請求項 11 に記載の方法。 40

【請求項 13】

方法工程 f) で得られる 1-ブテンが、その後に続く方法工程 g) でエチレンまたはプロピレンと反応してコオリゴマーになる、請求項 1 から 12 までのいずれか 1 項に記載の方法。

【発明の詳細な説明】

【技術分野】

【0001】

本発明は、1-ブテンおよび、n-ブタンまたはn-ブタンを含んでいる直鎖の C₄ 炭 50

化水素の混合物からの1, 3-ブタジエン誘導体の製造方法に関する。

【0002】

1-ブテンおよび1, 3-ブタジエンの誘導体は、多数の生成物を製造するための重要な中間生成物である。例えば、1-ブテンは、エチレンポリマーまたはプロピレンポリマーの変性のために使用することができる。ブタジエン後続生成物の1-メトキシ-2, 7-オクタジエンは、例えば1-オクテンを合成するための中間生成物である。

【0003】

不飽和C₄炭化水素は、プロピレンおよびエチレンを製造するために運転されるクラッカー、例えばスチームクラッカーまたはFCクラッカーのC₄留分から得ることができる。例えば、スチームクラッカーのC₄留分から1-ブテンおよび1, 3-ブタジエンを分離することができ、FCクラッカーのC₄カットから1-ブテンを分離することができる。C₄カットの量は、エチレンおよびプロピレンの生成に連動しており、十分な量で得られない。

10

【0004】

それとは別にさらに、直鎖の不飽和C₄炭化水素は、n-ブタンの脱水素化により製造することができる。ここで、未反応のn-ブタン、1-ブテン、両方の2-ブテンおよび1, 3-ブタジエンを含んでいる反応混合物が生じる。

【0005】

DE10350045には、n-ブタンから1-ブテンを獲得する方法が記載されている。ここで、n-ブタンは脱水素化されて、脱水素化生成物からC₄炭化水素ではない副生成物が分離された後に、ブタジエンは選択的に水素化されて直鎖ブテンになる。この水素化混合物から1-ブテンが蒸留分離されて、主に2-ブテンおよびn-ブタンからなる残留している混合物は、脱水素化段階に返送される。

20

【0006】

DE10231633は、n-ブタンからの4-ビニルシクロヘキセンの製造方法を開示している。ここで、n-ブタンは脱水素化されて、脱水素化生成物からC₄炭化水素ではない副生成物が分離された後に、ブタジエンは触媒反応して4-ビニルシクロヘキセンになる。4-ビニルシクロヘキセンの分離後、直鎖ブテン、n-ブタンおよび場合によりブタジエンを含んでいる、残りの炭化水素混合物は、脱水素化反応器に返送される。

【0007】

前記両方の方法は、それぞれ1つの成分だけが脱水素化混合物から得られることが共通している。

30

【0008】

n-ブタンの脱水素化で生じる反応混合物は、直鎖ブテンの他に、n-ブタンおよび1, 3-ブタジエンを含んでいる。さらなる工程で反応して後続生成物になりうる純粋な1-ブテンおよび純粋な1, 3-ブタジエンを、このような混合物から蒸留により得ることは、それらの沸点差がわずかなために経済的ではない。同様に、抽出（蒸留）による1, 3-ブタジエンの分離も高価で、費用がかかる。

【0009】

本発明の課題は、1-ブテンおよびブタジエン誘導体をn-ブタンから経済的に製造することができる方法を提供することにある。

40

【0010】

前記課題は、以下に記載される方法により解決される。

【0011】

1-ブテンおよび1, 3-ブタジエン誘導体の製造方法であって、以下の方法工程：
a) n-ブタン、水素、別の易沸性の副成分、高沸分および任意に水を含んでいる出発ガス流を非酸化的に触媒により脱水素化し、その結果、未反応のn-ブタン、1-ブテン、両方の2-ブテン、1, 3-ブタジエン、水素、別の易沸性の副成分、高沸分および任意に水を含んでいる混合生成物が生じる工程、ここで、前記出発ガス流は、C₄イソ化合物を有していない；

50

b) 水素、別の易沸分、高沸分、および水がある場合は水を分離し、その結果、n-ブタン、1-ブテン、両方のブテンおよび1, 3-ブタジエンを含んでいる混合生成物が得られる工程；

c) 方法工程b) で得られた1, 3-ブタジエンの一部を反応させて誘導体にする工程；

d) 方法工程c) で得られた1, 3-ブタジエン誘導体を分離する工程；

e) 方法工程c) で誘導体化されなかった1, 3-ブタジエンを選択的水素化して1-ブテンにする工程；

f) 工程e) で得られた炭化水素流から1-ブテンを蒸留分離し、その結果残留流が残留する工程、

を含む前記方法。

10

【0012】

前記方法の1つの実施態様では、方法工程f) で生じた残留流は、すべてまたは部分的に前記出発ガス流に供給される、つまり方法工程a) が進行している脱水素化装置に返送される。

【0013】

本発明は、n-ブタンから経済的に1-ブテンおよびブタジエン誘導体を製造することができるという利点がある。ここで、前記両方の目的生成物の比率は、脱水素化条件およびブタジエン変換率の設定により変化してよい。本発明の特別な実施態様は、脱水素化で生じたオレフィンの非常に高い含分が有用な生成物に変えられるため、ブテンのわずかな量のみが、返送流によって脱水素化反応器に運び入れられることを特徴としている。

20

【0014】

本発明の1つの実施態様では、残留流中に存在する直鎖ブテンは、供給の前に少なくとも部分的に反応し、この反応生成物は、供給の前に残留流から取り除かれる。

【0015】

本発明の1つの実施態様では、前記反応はオリゴマー化である。

【0016】

出発物質

本発明による方法のための出発物質として、フィールドブタン (Fieldbutane) のn-ブタン留分、スチームクラッカーまたはFCクラッカーのC₄カットの後処理で生じる直鎖のC₄炭化水素の混合物、または別の技術的プロセスで生じる直鎖のC₄炭化水素の別の混合物を使用してよい。

30

【0017】

フィールドブタンとは、天然ガス、ならびに約-30℃に冷却することにより液状の形でガスから分離される石油随伴ガスの「湿っている」含分のC₄留分を表す。低温蒸留により、組成が鉱床により定まらないが、一般にイソブタン約30質量%およびn-ブタン65質量%を含んでいるフィールドブタンがそこから得られる。さらなる成分は、通常、炭素原子4個未満の炭化水素約2質量%、および炭素原子4個超の炭化水素約3質量%である。この混合物は、本発明による方法におけるイソブタンの蒸留分離後に装入してよい。任意に、本発明による方法の脱水素化工程の前では、炭素原子4個を有していない炭化水素も、すべてまたは部分的に分離される。

40

【0018】

前記方法の1つの実施態様では、方法工程a) からの出発ガス流は、フィールドブタンのn-ブタン留分である。

【0019】

前記方法のさらなる実施態様では、方法工程a) からの出発ガス流は、スチームクラッカーまたはFCクラッカーのC₄カットの後処理からの直鎖のC₄炭化水素の混合物である。

【0020】

1, 3-ブタジエンの誘導体化

前記副生成物の分離後に得られた炭化水素混合物は、実質的にn-ブタン、1-ブテン

50

、両方の2-ブテンおよび1, 3-ブタジエンを含んでいる。

【0021】

前記混合物は反応に供され、この反応では1, 3-ブタジエンは反応するが、直鎖ブテンは反応しない。

【0022】

前記方法の1つの実施態様では、1, 3-ブタジエンが方法工程c)で反応して、4-ビニルシクロヘキセン、1, 4-シクロオクタジエン、1, 5, 9-シクロデカトリエン、4-シクロヘキセン-1, 2-ジカルボン酸誘導体、1, 7-オクタジエン、非分岐鎖の非環式オクタトリエン、2, 7-オクタジエニル誘導体から選択される1つの誘導体になる。

10

【0023】

1, 3-ブタジエンから4-ビニルシクロヘキセンへの反応は、US 5, 196, 621またはEP 0 397 266に記載の通り、例えばCu(1)担持触媒で行われてよい。

【0024】

1, 3-ブタジエンは、溶解されたニッケル・アルモ有機触媒の存在下に反応して、1, 4-シクロオクタジエンおよび/または1, 5, 9-シクロデカトリエンになりうる。

【0025】

1, 3-ブタジエンから1, 7-オクタジエンへの還元的二量化は、DE 1 014 9347もしくはDE 1 020 06031413. 1に記載の通り実施されてよい。

20

【0026】

1, 3-ブタジエンからオクタトリエン、特に1, 3, 7-オクタトリエンへの二量化は、DE 1 020 04060520に記載の通り、パラジウムカルベン錯体で実施されてよい。

【0027】

前記方法の1つの実施態様では、1, 3-ブタジエンは、方法工程c)で、電子不足のC-C多重結合を有しているジエノフィルと反応してディールス・アルダー生成物になる。この多重結合は、C-C二重結合またはC-C三重結合であってよい。

【0028】

三重結合を有するジエノフィルは、例えば：
プロピオール酸；プロピオール酸エステル、ここで、このエステルの酸素原子に結合している基は、1~20個の炭素原子を有してよい；プロピナール；プロピノール；アセチレンジカルボン酸；アセチレンジカルボン酸モノエステルおよびアセチレンジカルボン酸ジエステル、ここで、このエステルの酸素原子に結合している1つまたは複数の基は、1~20個の炭素原子を有してよい；3-ホルミルプロピオール酸およびそのエステル；ブチンジアル；ブチンジオール、
である。

30

【0029】

二重結合を有するジエノフィルは、1つまたは複数の電子求引性基で置換および共役されている、少なくとも1つの二重結合を有している。相応の電子求引性基(-M効果)は：
：ニトロ基、シアノ基、ホルミル基、ケト基(-C(O)R)、酸基(-C(O)OH)、エステル基(-C(O)OR)または無水物基(-C(O)OC(O)R)である。

40

【0030】

2つの隣接する置換基が、一緒になって1つの官能基、例えば無水物基を形成することも可能である。

【0031】

好ましく使用されるジエノフィルは以下の通りである：
無水マレイン酸；マレイン酸およびそのアルキルエステル、ここで、このアルキル基は同一または異なっていてよく、かつそれぞれ1~10個の炭素原子、特に1~4個の炭素原子を有している；フマル酸およびそのアルキルエステル、ここで、このアルキル基は同一

50

または異なっていてよく、かつそれぞれ1～10個の炭素原子、特に1～4個の炭素原子を有している；マレイン酸イミド（マレイミド）およびそのN－置換誘導体、ここで、窒素に接している置換基は1～10個、特に1～4個の炭素原子を有している。

【0032】

ここで、4－シクロヘキセン－1，2－ジカルボン酸の誘導体が生じる。これらは、例えば二重結合の水素化およびその後に続くアルコールシス（Alcoholysis）（エステル化、エステル交換）により、1，2－シクロヘキサンジカルボン酸のエステルに変換することができる。7～12個の炭素原子を有しているエステルアルキル基を有するこのエステルは、可塑剤、例えば1，2－シクロヘキサンジカルボン酸ジイソノニルエステルとして使用される。

10

【0033】

前記方法の1つの実施態様では、1，3－ブタジエンは、プロトン性求核試薬（水、アルコール、アミン）と反応して、相応の2，7－オクタジエニル誘導体になり、求核基は1位の炭素に結合している。前記反応（短鎖重合）は、パラジウム錯体により触媒作用が行われる。例えばDE10128144およびDE10312829に記載の通り、パラジウムカルベン錯体を使用するのが好ましい。

【0034】

前記短鎖重合の実施は、DE102005036039の記載と同じように行われてよいが、前記出発流を水素化する予備精製なしに済ますことができることが異なる点である。

20

【0035】

前記方法の1つの実施態様では、2，7－オクタジエニル誘導体として1－メトキシオクター－2，7－ジエンが形成される。

【0036】

1－メトキシオクター－2，7－ジエンは、所望の短鎖重合生成物である。そこから前記両方のオレフィン二重結合の水素化、およびその後に続くメタノールの脱離により1－オクテンを得ることができ、この1－オクテンは、ポリエチレンまたはポリプロピレンの変性のために工業的に使用される。1，3－ブタジエンから出発する、1－オクテンのための3段階の合成は、例えばDE10149348で公開されている。1－メトキシオクターからのメタノールの脱離の場合は、DE10257499の特許請求の範囲に記載される触媒を使用してよい。

30

【0037】

選択的水素化

前記ブタジエン誘導体の分離後に残留しているC₄炭化水素混合物は、未反応の1，3－ブタジエンの他に1－ブテンを含んでおり、事前に分離されていない場合は、n－ブタンおよび両方の2－ブテンを含んでいる。1，3－ブタジエンおよび場合により存在する多価不飽和炭化水素、例えば1，2－ブタジエンの残留量は、さらにn－ブテンの含分を高める選択的水素化により除去される。好適な方法は、例えばF. NierlichらによるIn Erdoel & Kohle, Erdgas, Petrochemie, 1986, 73ページ以下に記載されている。前記方法は、化学量論的量の、完全に溶解された水素を用いて液相で行われる。選択的水素化触媒として、例えば担体上のニッケルおよび特にパラジウム、例えば活性炭または酸化アルミニウム上のパラジウム0.3質量%が好適である。ppm範囲のわずかな量の一酸化炭素は、1，3－ブタジエンの直鎖ブテンへの水素化の選択性を促進し、触媒を不活性化させるポリマー、いわゆる「グリーンオイル」の形成を防ぐ。

40

【0038】

1－ブテンの分離

水素化された流出物（Hydrieraustrag）は、1－ブテンに、ならびにn－ブタンおよび直鎖ブテン、主に2－ブテンからの混合物に蒸留分離される。

【0039】

50

蒸留留分の使用

前記得られた1-ブテンは、イソ化合物を含んでいない。この1-ブテンは、特に、エチレンもしくはプロピレンを有するコオリゴマーの製造のために、またはポリオレフィン（LLDPE）中のモノマーとして使用してよい。

【0040】

前記方法のさらなる実施態様では、方法工程（f）で得られた1-ブテンは、その後続く方法工程（g）でエチレンまたはプロピレンと反応してコオリゴマーになる。

【0041】

n-ブタン／2-ブテン留分は、すべてまたは部分的に脱水素化反応器に返送されてよい。

10

【0042】

任意に、返送前に直鎖ブテンの一部は、反応および反応生成物の分離により除去されてよい。

【0043】

所望の中間生成物を提供する好適な反応は、例えばオリゴマー化またはヒドロホルミル化である。

【0044】

前記オリゴマー化は、酸性触媒またはニッケルを含んでいる触媒の使用下に、均一または不均一に実施してよい。ニッケル固定床触媒でオリゴマー化が行われるのが好ましい。このような方法は、例えばEvonik Oxeno GmbH社のオクトール法である。ここで主に生じる8個および12個の炭素原子を有するオレフィン、可塑剤または洗剤の製造のための中間生成物である。

20

【0045】

ヒドロホルミル化では、n-ペンタナールおよび2-メチルブタナールからの混合物が生じる。使用された触媒の選択により、前記両方のアルデヒドの質量比は変化してよい。異性化する条件下では、95%超の選択性のn-ペンタナールを製造することが可能である。そのためには、例えばEP0213639に記載の通り、触媒系を使用してよい。このような混合物は、特に、2-プロピルヘプタノールの高い含分を有するデカノール混合物の製造に好適である。

【図面の簡単な説明】

30

【0046】

【図1】本発明の1つの実施態様をブロック図で示した図

【図2】本発明の第二の実施態様をブロック図で示した図

【0047】

実施例

本発明の2つの実施例を、図1および図2のブロック図により説明する。

【0048】

図1に示された実施例では、n-ブタンを含んでいる出発流（1）が、返送流（25／26）と一緒に脱水素化装置（2）に導通される（場合により、水蒸気または酸素が導通されてよい；これは図1に示されていない）。脱水素化混合物（3）は、蒸留装置（4）内で易沸分（5）、水を含めた高沸分（6）およびC₄留分（7）に分離される。流（7）から、n-ブタンおよび両方の2-ブテンの一部が分離され（流（9））、このn-ブタンは脱水素化反応に返送される。塔頂流（10）中の1, 3-ブタジエンの一部は、反応器（11）内で、場合により試薬（12）の添加下に誘導体化される。反応混合物（13）から、後処理装置（14）内で目的生成物のブタジエン誘導体（15）およびC₄留分（16）が分離される。場合により存在する試薬、触媒の分離およびそれらの返送は、示されていない。なおも少量の1, 3-ブタジエンを含んでいるC₄留分（16）は、反応器（17）で水素（18）と選択的に水素化される。水素化された流出物（19）は、水素化装置（20）で1-ブテン（21）、第二目的生成物（22）、n-ブタンと直鎖ブタンからの混合物（23）ならびに場合により高沸分を有する留分に分離される。こ

40

50

の流（２３）は、場合により部分流（２４）の取り出し後に、前記脱水素化反応器に返送される。

【００４９】

前記実施態様では、塔（８）は任意である。前記塔の使用は、流（１０）中の１，３－ブタジエンの濃度が高められるという利点を提供する。それにより、反応器（１１）では、１，３－ブタジエンのためのより高い反応速度を達成することができる。しかし、前記塔のための設備投資およびその運転費用は好ましくない。

【００５０】

本発明の第二の実施態様は、図２に示されている。第二の実施態様は、返送流（２６）から、反応器（２７）中の直鎖ブテンの一部が、場合により試薬（２８）の添加下に反応して、*n*－ブタン、未反応のブテンと前記反応の生成物とからなる流（２９）になることが第一の実施態様と異なっている。反応生成物（３１）および場合により分離装置（３０）内の別の物質を分離した後、*n*－ブタンおよび直鎖ブテンを含んでいる流（３２）は、脱水素化反応器に送り込まれる。

10

【００５１】

前記実施態様では、流（９）だけ、または流（２３）だけ、または前記両方の流の一部が、任意の比で前記反応器に送り込まれることは任意である。

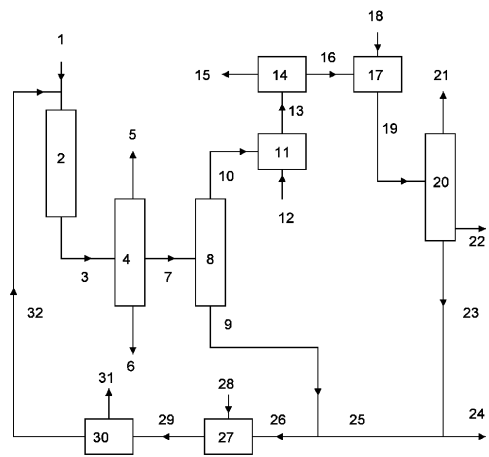
【符号の説明】

【００５２】

１ *n*－ブタンを含んでいる出発流、 ２ 脱水素化装置、 ３ 脱水素化混合物、
４ 蒸留装置、 ５ 易沸分、 ６ 水を含めた高沸分、 ７ C_4 留分、 ８ 塔、
９ 流、 １０ 塔頂流、 １１ 反応器、 １２ 試薬、 １３ 反応混合物、 １４
後処理装置、 １５ ブタジエン誘導体、 １６ C_4 留分、 １７ 反応器、 １８
水素、 １９ 水素化された流出物、 ２０ 水素化装置、 ２１ １－ブテン、 ２
２ 第二目的生成物、 ２３ *n*－ブタンと直鎖ブテンとからの混合物、 ２４ 部分流、
２５ 返送流、 ２６ 返送流、 ２７ 反応器、 ２８ 試薬、 ２９ *n*－ブタン、
未反応のブテンと反応生成物とからなる流、 ３０ 分離装置、 ３１ 反応生成物、
３２ *n*－ブタンおよび直鎖ブテンを含んでいる流

20

【図 2】



Figur 2

フロントページの続き

(51)Int.Cl.		F I	
C 0 7 C	43/15	(2006.01)	C 0 7 C 43/15
C 0 7 C	11/12	(2006.01)	C 0 7 C 11/12
C 0 7 C	11/21	(2006.01)	C 0 7 C 11/21
C 0 7 C	13/263	(2006.01)	C 0 7 C 13/263
C 0 7 C	13/277	(2006.01)	C 0 7 C 13/277
C 0 7 C	13/20	(2006.01)	C 0 7 C 13/20
C 0 7 C	2/06	(2006.01)	C 0 7 C 2/06
C 0 7 B	61/00	(2006.01)	C 0 7 B 61/00 3 0 0

(72)発明者 ディートリヒ マシュマイアー
ドイツ連邦共和国 レックリングハウゼン ヴィッキングシュトラッセ 5 アー

審査官 前田 憲彦

(56)参考文献 特表2005-525349 (JP, A)
米国特許出願公開第2007/0167661 (US, A1)
特表2005-536498 (JP, A)
特表2008-515631 (JP, A)
特表2008-511577 (JP, A)

(58)調査した分野(Int.Cl., DB名)
C 0 7 C 5/00
C 0 7 C 2/00
C 0 7 C 11/00
C 0 7 C 13/00
C 0 7 C 43/00
C 0 7 C 51/00
C 0 7 C 63/00
CAplus/REGISTRY (STN)