

【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】平成20年10月9日(2008.10.9)

【公表番号】特表2004-528165(P2004-528165A)

【公表日】平成16年9月16日(2004.9.16)

【年通号数】公開・登録公報2004-036

【出願番号】特願2002-577097(P2002-577097)

【国際特許分類】

B 0 1 J 37/02 (2006.01)

B 0 1 J 23/66 (2006.01)

B 0 1 J 37/06 (2006.01)

C 0 7 C 67/035 (2006.01)

C 0 7 C 69/56 (2006.01)

C 0 7 B 61/00 (2006.01)

【F I】

B 0 1 J 37/02 1 0 1 A

B 0 1 J 37/02 1 0 1 D

B 0 1 J 23/66 Z

B 0 1 J 37/06

C 0 7 C 67/035

C 0 7 C 69/56

C 0 7 B 61/00 3 0 0

【誤訳訂正書】

【提出日】平成20年8月25日(2008.8.25)

【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】

(a) 20 で測定した pH が少なくとも 3 である水性液体からなる 1 種類以上の水性液体を使用する一連の洗浄が実施されたシリカ系担体か、前記一連の洗浄が実施された 1 種類以上の材料から製造されるシリカ系担体かの担体を選択するステップと、

(b) 前記担体上に 8 族金属化合物を析出させるステップと、

(c) 前記析出させた 8 族金属化合物を金属種に転化させるステップと、

(d) ステップ(c)の前または後に 8 族金属 / 担体組成物 に対して、1 種類以上の水性液体による一連の洗浄を含む精製処理を実施するステップと、
を含む触媒調製方法。

【請求項 2】

水性液体 が水である、請求項 1 に記載の方法。

【請求項 3】

洗浄の程度は、導電性試験によって前記洗浄後の担体で測定した導電率が、未洗浄担体の 30 % 未満の値となる程度であり、前記導電性試験は、前記未洗浄担体試料および前記洗浄後の担体と水試料を接触させて、それぞれの担体試料が 95 で平衡に到達した後で各水試料の導電率を 95 で測定することを含み、水試料の量は 3 g / g 担体試料であり、担体試料と接触させる前の前記水の導電率は 98 で 1.5 μ S (μ モ-) であり、セル定数が 1.0 / cm である導電率測定プローブを使用して前記導電率が測定される、請

求項 1 または 2 に記載の方法。

【請求項 4】

前記洗浄の程度が、前記導電性試験によって前記洗浄後の担体で測定した導電率が前記未洗浄担体の 20 % 未満の値となる程度である、請求項 3 に記載の方法。

【請求項 5】

前記洗浄の程度が、導電性試験によって前記洗浄後の担体で測定した導電率が $75 \mu S$ (μM) 未満となる程度であり、前記導電性試験は、前記洗浄後の担体と水試料を接触させて、前記担体試料が 95 で平衡に到達した後で前記水試料の導電率を 95 で測定することを含み、水試料の量は $3 g / g$ 担体試料であり、前記担体試料と接触させる前の前記水の導電率は 98 で $1.5 \mu S$ (μM) であり、セル定数が $1.0 / cm$ である導電率測定プローブを使用して前記導電率が測定される、請求項 1 から 4 のいずれか 1 項に記載の方法。

【請求項 6】

前記洗浄の程度が、前記導電性試験によって前記洗浄後の担体で測定した導電率が $50 \mu S$ (μM) 未満となる程度である、請求項 5 に記載の方法。

【請求項 7】

8 族金属化合物前駆物質および場合によっては 1 b 族金属化合物前駆物質を含む 1 種類以上の水溶液を前記担体の孔隙に含浸させ、続いて沈殿剤を使用してこのような溶液から前記担体上に 8 族金属化合物および場合によっては 1 b 族金属化合物を析出させることによって、前記 8 族金属そして場合によってはこれに加えて 1 b 族金属を前記担体上に析出させる、請求項 1 から 6 のいずれか 1 項に記載の方法。

【請求項 8】

前記 8 族金属化合物前駆物質および前記任意の 1 b 族金属化合物前駆物質がパラジウムおよび場合によっては金の水溶性の酸および塩から選択され、前記沈殿剤がリチウム、ナトリウム、およびカリウムの水酸化物、重炭酸塩、炭酸塩およびケイ酸塩から選択される、請求項 7 に記載の方法。

【請求項 9】

前記析出した 8 族金属化合物と、存在するのであれば析出した 1 b 族金属化合物とが、還元剤として水素を使用する還元によって金属種に転化される、請求項 1 から 8 のいずれか 1 項に記載の方法。

【請求項 10】

(e) アルカリ金属源を含浸するステップをさらに含む、請求項 1 から 9 のいずれか 1 項に記載の方法。

【請求項 11】

請求項 1 から 10 のいずれか 1 項に記載の触媒調製方法によって得られる、カルボン酸アルケニルの調製用触媒。

【請求項 12】

前記 8 族金属としてパラジウムを $10 mmol / kg$ から $500 mmol / kg$ 触媒の範囲の量で含み、さらに 1 b 族金属として金を $1 mmol / kg$ から $200 mmol / kg$ 触媒の範囲の量で含み、アルカリ金属を $0.1 mol / kg$ から $5 mol / kg$ 触媒の範囲の量で含む、請求項 11 に記載の触媒。

【請求項 13】

オレフィンと、カルボン酸と、酸素とを含む混合物を請求項 11 または 12 に記載の触媒の存在下で反応させることを含むカルボン酸アルケニルの調製方法。

【誤訳訂正 2】

【訂正対象書類名】明細書

【訂正対象項目名】0029

【訂正方法】変更

【訂正の内容】

【0029】

好適には、水性液体は低導電率である。このような低導電率水性液体は、イオン交換溶液を形成するために加えられる塩を含まないことが多い。好適には、98 で測定した場合の導電率は最大 $500 \mu S (\mu M)$ (モ-は \cdot^{-1} 、あるいはジーメンズまたは S である) であり、より好適には最大 $100 \mu S (\mu M)$ であり、好ましくは最大 $20 \mu S (\mu M)$ 、特に最大 $5 \mu S (\mu M)$ である。同じ基準で、多くの場合で導電率は少なくとも $0.1 \mu S (\mu M)$ であり、より多くの場合で少なくとも $0.2 \mu S (\mu M)$ である。本明細書において導電性は、セル定数が $1.0 / cm$ の導電率測定プローブを使用して測定された電気伝導率であると理解されたい。好適には、YSI モデル 35 (YSI Model 35) (商標) コンダクタンス計に接続された YSI モデル 3401 (YSI Model 3401) (商標) 導電率測定プローブが使用される。通常、このような低導電率水性液体は脱イオン水性液体である。通常は酸性形態の陽イオン交換材料または塩基性形態の陰イオン交換材料であるイオン交換樹脂などのイオン交換材料を使用して脱イオン化することによって脱イオン水性液体が得られ、好ましくは酸性形態 (H^+) の陽イオン交換材料および塩基性 (OH^-) 形態の陰イオン交換材料が使用される。

【誤訳訂正 3】

【訂正対象書類名】明細書

【訂正対象項目名】0031

【訂正方法】変更

【訂正の内容】

【0031】

洗浄は導電性試験を実施することによって監視することができ、この導電性試験は、未洗浄または洗浄後の担体試料を水試料と接触させ、それぞれの担体試料が 95 で平衡に到達してから各水試料の導電率の測定を行うことを含む。この導電性試験では、導電率は 95 で測定され、水試料の量は $3 g / g$ 担体試料であり、担体試料と接触させる前の水の導電率は 98 で $1.5 \mu S (\mu M)$ である。導電性試験での使用に好適な水は、 H^+ 形態の陽イオン交換材料と OH^- 形態の陰イオン交換材料を使用して脱イオン化された水である。

【誤訳訂正 4】

【訂正対象書類名】明細書

【訂正対象項目名】0032

【訂正方法】変更

【訂正の内容】

【0032】

通常、導電性試験によって洗浄後の担体で測定される導電率が、未洗浄担体の 50 % 未満、好ましくは 30 % 未満、より好ましくは 20 % 未満の値となる程度まで担体が洗浄される。多くの場合、導電性試験によって測定される導電率が未洗浄担体の値の少なくとも 1 %、さらに多くの場合で少なくとも 5 % となる程度まで担体が洗浄される。

【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】

通常、導電性試験によって洗浄後の担体で測定される導電率が $200 \mu S (\mu M)$ 未満、より一般的には $75 \mu S (\mu M)$ 未満、好ましくは $50 \mu S (\mu M)$ 未満となる程度まで担体が洗浄される。導電性試験によって測定される導電率ができるだけ低くなるように担体を洗浄することができる。しかし実際には、導電性試験によって測定される導電率が $2 \mu S (\mu M)$ を超え、より多くの場合には $3 \mu S (\mu M)$ を超える程度まで担体を洗浄することができる。

【誤訳訂正 6】

【訂正対象書類名】明細書

【訂正対象項目名】0042

【訂正方法】変更

【訂正の内容】

【0042】

好適な8族金属化合物前駆物質および1b族金属化合物前駆物質は、例えば、塩化物、硝酸塩、亜硝酸塩、および硫酸塩などの水溶性の酸および塩である。好ましいこのような8族含有酸および塩は、塩化パラジウム(II)、硝酸パラジウム(II)、および硫酸パラジウム(II)であり、特に、四塩化パラジウム(II)ナトリウムである。好ましいこのような1b族金属含有酸および塩は、塩化金(III)であり、特にテトラクロロ金(III)酸である。沈殿剤としては、例えば、アルカリ金属水酸化物、アルカリ金属重炭酸塩、アルカリ金属炭酸塩が挙げられ、好ましくはアルカリ金属ケイ酸塩が挙げられる。好適なアルカリ金属はリチウム、ナトリウム、およびカリウムである。好ましい沈殿剤はケイ酸ナトリウム、有用な形態のケイ酸ナトリウムはメタケイ酸ナトリウム五水和物である。好適には沈殿剤は8族金属および場合によっては1b族金属の合計に対して過剰で使用される。例えば、沈殿剤は8族金属化合物前駆物質1モル当たり1モルから3モル、好ましくは1.5モルから2.5モルの量で使用する事ができる。1b族金属前駆物質が存在する場合、1b族金属化合物前駆物質1モル当たり例えば2モルから10モル、好ましくは2.5モルから8モルの追加の沈殿剤を使用することができる。

【誤訳訂正7】

【訂正対象書類名】明細書

【訂正対象項目名】0081

【訂正方法】変更

【訂正の内容】

【0081】

1.25gのシリカ球担体試料(球の直径5mm、表面積 $137\text{ m}^2/\text{g}$ 、吸水能力 0.63 ml/g 、スドケミー(Sud Chemie)より商標KA-160で入手した)を空气中120℃で乾燥させ、デシケーター中で周囲温度まで冷却した後、四塩化パラジウム(II)ナトリウム(Na_2PdCl_4)とテトラクロロ金酸(HAuCl_4)を脱イオン水に溶解した溶液15.7ml(0.220gのパラジウムと0.121gの金を含有)を含浸させた。担体を入れた容器を軽く振って、担体に溶液が吸収されるようにした。溶液が完全に吸収されてから、含浸させた担体を室温で2時間静置した。

【誤訳訂正8】

【訂正対象書類名】明細書

【訂正対象項目名】0087

【訂正方法】変更

【訂正の内容】

【0087】

(本発明による)

ステップ1で使用する前にシリカ球担体試料の洗浄を行ったことを除けば、実施例1の手順を繰り返した。この洗浄は、連続的に再補充される容器(流速 0.76 l/min)中の沸騰脱イオン水(6kg、98℃における導電率 $1.5\text{ }\mu\text{S}(\mu\text{モ-})$)に500gの担体試料を浸漬することによって実施した。洗浄水の導電率を95℃で連続的に測定した。12分後、導電率のピーク値は $60\text{ }\mu\text{S}(\mu\text{モ-})$ となり、120分後には導電率は $6\text{ }\mu\text{S}(\mu\text{モ-})$ となり、この時点の担体でステップ1の乾燥を実施した。

【誤訳訂正9】

【訂正対象書類名】明細書

【訂正対象項目名】0093

【訂正方法】変更

【訂正の内容】

【 0 0 9 3 】

1. 洗浄し乾燥させた担体試料 25 g に、四塩化パラジウム (I I) ナトリウム (Na_2PdCl_4) とテトラクロロ金酸 (HAuCl_4) を脱イオン水に溶解した溶液 15.7 ml (0.220 g のパラジウムと 0.121 g の金を含有) を含浸させた。担体を入れた容器を軽く振って、担体に溶液が吸収されるようにした。溶液が完全に吸収されてから、含浸させた担体を室温で 2 時間静置した。