

【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2区分

【発行日】平成17年12月22日(2005.12.22)

【公表番号】特表2004-528386(P2004-528386A)

【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2002-591425(P2002-591425)

【国際特許分類第7版】

C 07 C 17/152

C 07 C 21/02

// C 07 B 61/00

【F I】

C 07 C 17/152

C 07 C 21/02

C 07 B 61/00 300

【手続補正書】

【提出日】平成17年4月22日(2005.4.22)

【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】

酸化的ハロゲン化および任意的な脱水素方法であって、反応物である3個以上の炭素原子を有する炭化水素またはこれらのハロゲン化誘導体を、反応物炭化水素に比べてより多くのハロゲン置換数を有するとともに3個以上の炭素原子を有するハロゲン化炭化水素および任意的に3個以上の炭素原子を有するオレフィンを調製するために充分なプロセス条件の下、触媒の存在下で、ハロゲン源および任意的に酸素源と接触させることを含み、前記触媒が希土類ハロゲン化物または希土類オキシハライドを含み、該触媒中にセリウムが存在する場合には該触媒中に少なくとも1種の他の希土類元素も存在することを条件とし、希土類元素/レドックス遷移金属の原子比が約10/1よりも大きくなるように該触媒がレドックス遷移金属を実質的に含まないことを更に条件とする、方法。

【請求項2】

反応物炭化水素がC<sub>3-20</sub>炭化水素より選択される、請求項1に記載の方法。

【請求項3】

反応物炭化水素がプロパンまたはプロペンより選択される、請求項1または請求項2に記載の方法。

【請求項4】

ハロゲン源が、元素状ハロゲン、ハロゲン化水素、および1以上の不安定ハロゲン置換基を有するハロゲン化炭化水素から成る群より選択される、請求項1~3のいずれか一項に記載の方法。

【請求項5】

ハロゲン源が元素状塩素、元素状臭素または塩化水素である、請求項1~4のいずれか一項に記載の方法。

【請求項6】

1/1よりも大きく20/1よりも小さいハロゲン源/反応物炭化水素のモル比で行われる、請求項1~5のいずれか一項に記載の方法。

**【請求項 7】**

該方法が酸素を含む、請求項 1 ~ 6 のいずれか一項に記載の方法。

**【請求項 8】**

ハロゲン源が酸素源に対して本質的に化学量論的な量で供給される、請求項 7 に記載の方法。

**【請求項 9】**

酸素源が、分子状酸素、空気または酸素濃縮空気から成る群より選択される、請求項 7 または請求項 8 に記載の方法。

**【請求項 10】**

2 / 1 よりも大きく 2 0 / 1 よりも小さい反応物炭化水素 / 酸素源のモル比で行われる、請求項 7 ~ 9 のいずれか一項に記載の方法。

**【請求項 11】**

窒素、ヘリウム、アルゴン、一酸化炭素、二酸化炭素、メタンおよびこれらの混合物から成る群より選択される希釈剤を更に含む、請求項 1 に記載の方法。

**【請求項 12】**

希釈剤が、反応物炭化水素、ハロゲン源、酸素源および希釈剤の全モル数を基準として、10 モル% よりも大きく 90 モル% よりも小さい量で用いられる、請求項 11 に記載の方法。

**【請求項 13】**

希土類ハロゲン化物が  $5 \text{ m}^2 / \text{g}$  よりも大きな BET 表面積を有する、請求項 1 ~ 12 のいずれか一項に記載の方法。

**【請求項 14】**

希土類ハロゲン化物が式  $\text{M}_3\text{X}$  (式中 M は、ランタン、セリウム、ネオジム、プラセオジム、ジスプロシウム、サマリウム、イットリウム、ガドリニウム、エルビウム、イッテルビウム、ホルミウム、テルビウム、ユウロピウム、ツリウム、ルテチウムおよびこれらの混合物から成る群より選択される少なくとも 1 種の希土類元素であり ; X は塩化物、臭化物またはヨウ化物である) により表わされる、請求項 1 ~ 13 のいずれか一項に記載の方法。

**【請求項 15】**

X が塩化物であり、M がランタンまたはランタンと他の希土類元素との混合物である、請求項 14 に記載の方法。

**【請求項 16】**

希土類オキシハライド担体が  $12 \text{ m}^2 / \text{g}$  よりも大きな BET 表面積を有する、請求項 1 ~ 15 のいずれか一項に記載の方法。

**【請求項 17】**

希土類オキシハライド担体が式  $\text{MO}_3\text{X}$  (式中 M は、ランタン、セリウム、ネオジム、プラセオジム、ジスプロシウム、サマリウム、イットリウム、ガドリニウム、エルビウム、イッテルビウム、ホルミウム、テルビウム、ユウロピウム、ツリウム、ルテチウムおよびこれらの混合物から成る群より選択される少なくとも 1 種の希土類元素であり ; X は塩化物、臭化物またはヨウ化物である) により表わされる、請求項 1 ~ 16 のいずれか一項に記載の方法。

**【請求項 18】**

X が塩化物であり、M がランタンまたはランタンと他の希土類元素との混合物である、請求項 17 に記載の方法。

**【請求項 19】**

触媒が担体に結合されるか又は担体とともに押し出される、請求項 1 ~ 18 のいずれか一項に記載の方法。

**【請求項 20】**

100 よりも高く 600 よりも低い温度で行われる、請求項 1 ~ 19 のいずれか一項に記載の方法。

**【請求項 2 1】**

14 p s i a ( 97 k P a ) 以上であって 150 p s i a ( 1,034 k P a ) よりも小さい圧力で行われる、請求項 1～20 のいずれか一項に記載の方法。

**【請求項 2 2】**

0.1 h<sup>-1</sup> よりも大きく 1,000 h<sup>-1</sup> よりも小さい、反応物炭化水素、ハロゲン源、任意的な酸素源および任意的な希釈剤を含む全供給物の重量空間速度で行われる、請求項 1～21 のいずれか一項に記載の方法。

**【請求項 2 3】**

オレフィンが同時生成物として生成する、請求項 1～22 のいずれか一項に記載の方法。

**【請求項 2 4】**

ハロゲン化炭化水素生成物が、オレフィン系生成物への転化のためにリサイクルされる、請求項 1～23 のいずれか一項に記載の方法。

**【請求項 2 5】**

オレフィンが同時生成物として生成し、ハロゲン化炭化水素生成物への転化のためにリサイクルされる、請求項 1～23 のいずれか一項に記載の方法。

**【請求項 2 6】**

塩化アリルおよびプロピレンの調製方法であって、プロパンを、塩化アリルおよび同時生成物であるプロピレンが生成するように 150 よりも高く 500 よりも低い温度において触媒の存在下で、塩素源および酸素源と接触させることを含み、前記触媒が希土類ハロゲン化物または希土類オキシハライド化合物を含み、該触媒中にセリウムが存在する場合には該触媒中に少なくとも 1 種の他の希土類元素も存在することを条件とし、希土類元素 / レドックス遷移金属の原子比が約 10 / 1 よりも大きくなるように該触媒がレドックス遷移金属を実質的に含まないことを更に条件とする、方法。

**【請求項 2 7】**

触媒が希土類塩化物または希土類オキシクロライドである、請求項 26 に記載の方法。

**【請求項 2 8】**

希土類がランタンである、請求項 26 または請求項 27 に記載の方法。

**【請求項 2 9】**

塩化アリルの生産を最大にするように、同時生成物であるプロピレンがリサイクルされる、請求項 26～28 のいずれか一項に記載の方法。

**【請求項 3 0】**

プロピレンの生産を最大にするように、塩化アリル生成物が該反応器にリサイクルされる、請求項 26～28 のいずれか一項に記載の方法。

**【請求項 3 1】**

酸化的ハロゲン化および任意的な脱水素の方法であって、反応物である 3 個以上の炭素原子を有するアルカンまたはこれらのハロゲン化誘導体を、反応物炭化水素に比べてより多くのハロゲン置換数を有するとともに 3 個以上の炭素原子を有するハロゲン化炭化水素および任意的に 3 個以上の炭素原子を有するオレフィンを調製するために充分な条件の下、触媒の存在下で、ハロゲン源および任意的に酸素源と接触させることを含み、前記触媒が鉄および銅を実質的に含まない希土類ハロゲン化物または希土類オキシハライドを含み、該触媒中にセリウムが存在する場合には該触媒中に少なくとも 1 種の他の希土類元素も存在することを条件とする、方法。

**【請求項 3 2】**

反応物オレフィンがアルカンであり、ハロゲン化炭化水素が塩化アリルであり、オレフィンがプロピレンである、請求項 31 に記載の方法。