

(19) 日本国特許庁 (JP)

(12) 特 許 公 報 (B2)

(11) 特許番号

特許第6576253号

(P6576253)

(45) 発行日 令和1年9月18日 (2019.9.18)

(24) 登録日 令和1年8月30日 (2019.8.30)

|                       |                  |                |       |
|-----------------------|------------------|----------------|-------|
| (51) Int.Cl.          |                  | F I            |       |
| <b>C O 7 D 211/46</b> | <b>(2006.01)</b> | C O 7 D 211/46 |       |
| <b>C O 7 D 211/58</b> | <b>(2006.01)</b> | C O 7 D 211/58 |       |
| <b>C O 7 D 403/14</b> | <b>(2006.01)</b> | C O 7 D 403/14 |       |
| <b>C O 7 B 61/00</b>  | <b>(2006.01)</b> | C O 7 B 61/00  | 3 0 0 |

請求項の数 11 (全 73 頁)

|                    |                               |           |                                                    |
|--------------------|-------------------------------|-----------|----------------------------------------------------|
| (21) 出願番号          | 特願2016-10886 (P2016-10886)    | (73) 特許権者 | 501073862                                          |
| (22) 出願日           | 平成28年1月22日 (2016.1.22)        |           | エボニック デグサ ゲーエムベーハー                                 |
| (65) 公開番号          | 特開2016-132672 (P2016-132672A) |           | Evonik Degussa GmbH                                |
| (43) 公開日           | 平成28年7月25日 (2016.7.25)        |           | ドイツ連邦共和国 エッセン レリングハウザー シュトラッセ 1-11                 |
| 審査請求日              | 平成30年7月27日 (2018.7.27)        |           | Rellinghauser Strasse 1-11, D-45128 Essen, Germany |
| (31) 優先権主張番号       | 15152068.1                    | (74) 代理人  | 100114890                                          |
| (32) 優先日           | 平成27年1月22日 (2015.1.22)        |           | 弁理士 アインゼル・フェリックス＝ラインハルト                            |
| (33) 優先権主張国・地域又は機関 | 欧州特許庁 (EP)                    | (74) 代理人  | 100116403                                          |
|                    |                               |           | 弁理士 前川 純一                                          |
|                    |                               | (74) 代理人  | 100135633                                          |
|                    |                               |           | 弁理士 二宮 浩康                                          |

最終頁に続く

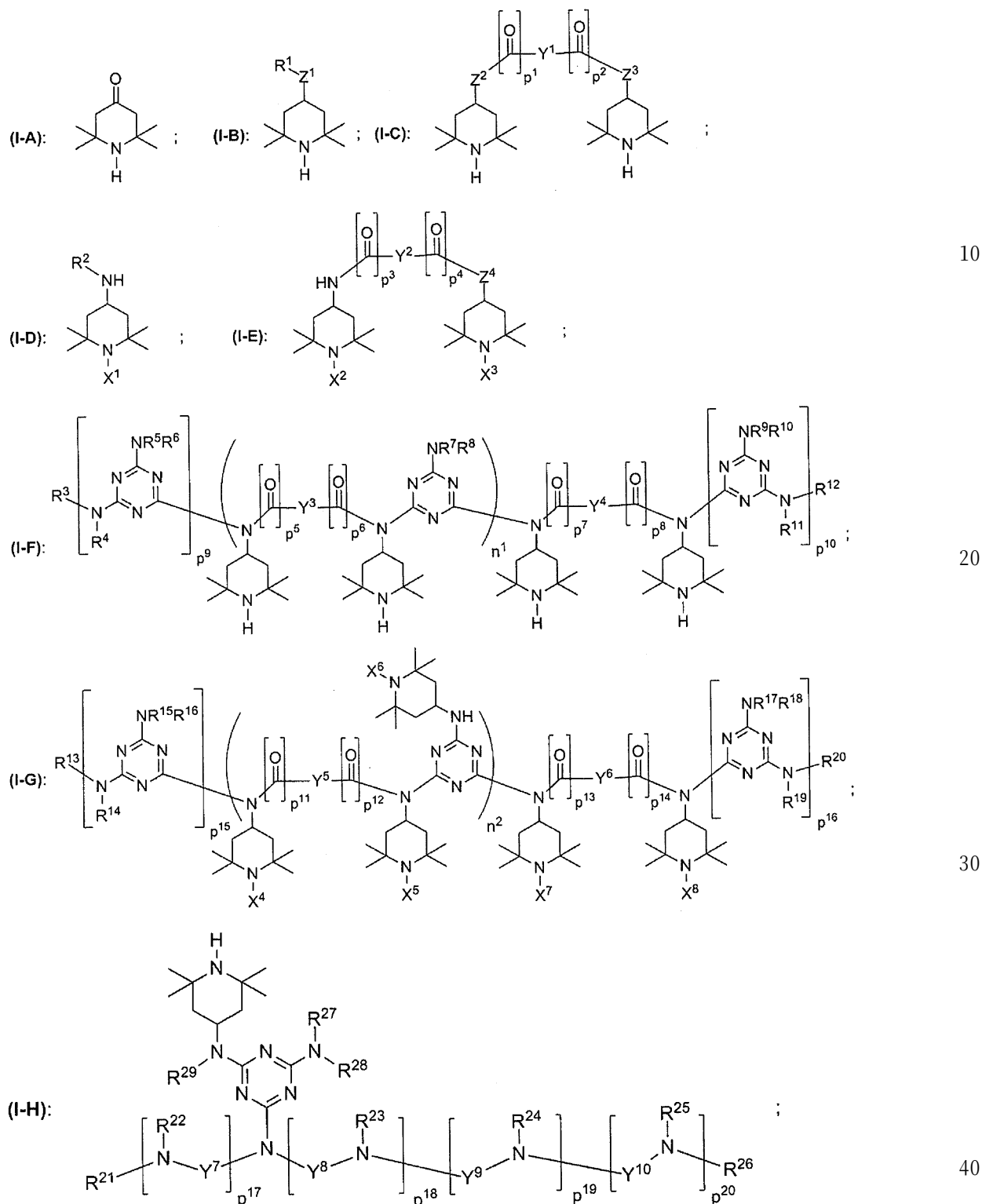
(54) 【発明の名称】 N-メチル置換されたトリアセトンアミン化合物の製造法

(57) 【特許請求の範囲】

【請求項 1】

N-メチル置換されたトリアセトンアミン化合物の製造方法であって、  
 少なくとも1種のトリアセトンアミン化合物 (I) とホルムアルデヒドとを還元性条件下で反応させ、その際、  
 前記トリアセトンアミン化合物 (I) は、化学構造 (I-A)、(I-B)、(I-C)、  
 (I-D)、(I-E)、(I-F)、(I-G)、(I-H)

## 【化 1】



からなる群から選択され、前記化学構造において、

$n^1$ 、 $n^2$  は、それぞれ互いに独立して、1～20の範囲からのいずれかの整数であり、 $p^1$ 、 $p^2$ 、 $p^3$ 、 $p^4$ 、 $p^5$ 、 $p^6$ 、 $p^7$ 、 $p^8$ 、 $p^9$ 、 $p^{10}$ 、 $p^{11}$ 、 $p^{12}$ 、 $p^{13}$ 、 $p^{14}$ 、 $p^{15}$ 、 $p^{16}$ 、 $p^{17}$ 、 $p^{18}$ 、 $p^{19}$ 、 $p^{20}$  は、それぞれ互いに独立して、0または1であり、

$X^1$  は、OH、 $-O\cdot$ 、1～10個の炭素原子を有する非分枝鎖状もしくは分枝鎖状のアルキル基、1～10個の炭素原子を有する非分枝鎖状もしくは分枝鎖状のアルコキシ基からなる群から選択され、

$X^2$ 、 $X^3$ は、水素、OH、 $-O\cdot$ 、1～10個の炭素原子を有する非分枝鎖状もしくは分枝鎖状のアルキル基、1～10個の炭素原子を有する非分枝鎖状もしくは分枝鎖状のアルコキシ基からなる群から選択され、かつ $X^2$ 、 $X^3$ は、 $X^2 = X^3 =$ 水素の場合を除き、それぞれ互いに独立して選択され、

$X^4$ 、 $X^5$ 、 $X^6$ 、 $X^7$ 、 $X^8$ は、それぞれ互いに独立して、水素、OH、 $-O\cdot$ 、1～10個の炭素原子を有する非分枝鎖状もしくは分枝鎖状のアルキル基、1～10個の炭素原子を有する非分枝鎖状もしくは分枝鎖状のアルコキシ基からなる群から選択され、

$Y^1$ 、 $Y^2$ 、 $Y^3$ 、 $Y^4$ 、 $Y^5$ 、 $Y^6$ 、 $Y^7$ 、 $Y^8$ 、 $Y^9$ 、 $Y^{10}$ は、それぞれ互いに独立して、

1～30個の炭素原子を有する非分枝鎖状もしくは分枝鎖状のアルキレン基、

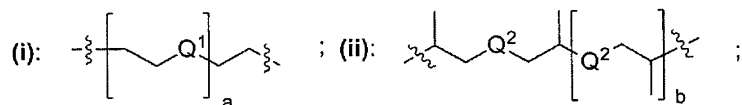
3～30個の炭素原子を有する二価の飽和炭化水素基であって、3～30個の炭素原子からなる少なくとも1個の飽和環を有する前記二価の飽和炭化水素基、

6～30個の炭素原子を有する二価の炭化水素基であって、そのうち少なくとも6個の炭素原子が芳香族系中に存在し、その他の炭素原子は、存在する場合は飽和である前記二価の炭化水素基、

橋かけ基

からなる群から選択され、前記橋かけ基は、(i)、(ii)

【化2】



からなる群から選択されるいずれかの化学構造を有し、前記化学構造において、

$Q^1$ 、 $Q^2$ は、それぞれ互いに独立して、 $-O-$ 、 $-S-$ 、 $-NH-$ または $-NR'$ からなる群から選択され、ここで $R'$ は、1～6個の炭素原子を有する非分枝鎖状もしくは分枝鎖状のアルキル基であり、

$a$ は、1～50の範囲から選択されるいずれかの整数であり、

$b$ は、0～50の範囲から選択されるいずれかの整数であり、

$Y^1$ は、 $p^1$ および $p^2$ の少なくとも1つが値1を有する場合に、直接的な結合であってもよく、

$Y^2$ は、 $p^3$ および $p^4$ の少なくとも1つが値1を有する場合に、直接的な結合であってもよく、

$Y^3$ は、 $p^5$ および $p^6$ の少なくとも1つが値1を有する場合に、直接的な結合であってもよく、

$Y^4$ は、 $p^7$ および $p^8$ の少なくとも1つが値1を有する場合に、直接的な結合であってもよく、

$Y^5$ は、 $p^{11}$ および $p^{12}$ の少なくとも1つが値1を有する場合に、直接的な結合であってもよく、

$Y^6$ は、 $p^{13}$ および $p^{14}$ の少なくとも1つが値1を有する場合に、直接的な結合であってもよく、

$Z^1$ 、 $Z^2$ 、 $Z^3$ 、 $Z^4$ は、それぞれ互いに独立して、 $-O-$ 、 $-S-$ 、 $-NR^{30}-$ からなる群から選択され、

基 $R^1$ 、 $R^2$ 、 $R^3$ 、 $R^4$ 、 $R^5$ 、 $R^6$ 、 $R^9$ 、 $R^{10}$ 、 $R^{11}$ 、 $R^{12}$ 、 $R^{13}$ 、 $R^{14}$ 、 $R^{15}$ 、 $R^{16}$ 、 $R^{17}$ 、 $R^{18}$ 、 $R^{19}$ 、 $R^{20}$ 、 $R^{30}$ は、それぞれ互いに独立して、

水素、

1～30個の炭素原子を有する非分枝鎖状もしくは分枝鎖状のアルキル基であって、少なくとも1個の水素基が $-OH$ 、 $-NH_2$ 、 $-OCH_3$ 、 $-OCH_2CH_3$ 、 $-NH(CH_3)$ 、 $-N(CH_3)_2$ 、 $-NH(CH_2CH_3)$ 、 $-N(CH_2CH_3)_2$ 、 $-N(CH_3)(CH_2CH_3)$ からなる群から選択されるいずれかの基によって置き換えられ

10

20

30

40

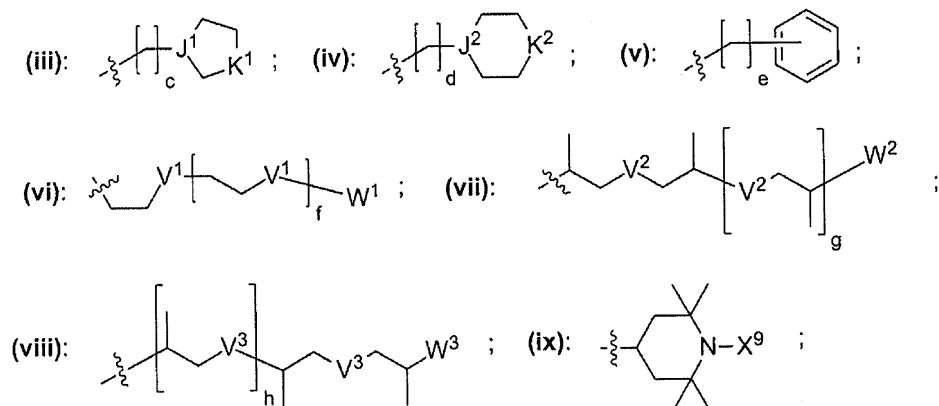
50

ていてよい前記アルキル基、

1～30個の炭素原子を有する非分枝鎖状もしくは分枝鎖状のアシル基であって、少なくとも1個の水素基が $-\text{OH}$ 、 $-\text{NH}_2$ 、 $-\text{OCH}_3$ 、 $-\text{OCH}_2\text{CH}_3$ 、 $-\text{NH}(\text{CH}_3)$ 、 $-\text{N}(\text{CH}_3)_2$ 、 $-\text{NH}(\text{CH}_2\text{CH}_3)$ 、 $-\text{N}(\text{CH}_2\text{CH}_3)_2$ 、 $-\text{N}(\text{CH}_3)(\text{CH}_2\text{CH}_3)$ からなる群から選択されるいずれかの基によって置き換えられていてよい前記アシル基、

(iii)、(iv)、(v)、(vi)、(vii)、(viii)、(ix)

【化3】



からなる群から選択されるいずれかの化学構造を有する基

からなる群から選択され、前記化学構造において、

$\text{J}^1$ 、 $\text{J}^2$ は、それぞれ互いに独立して、 $\text{CH}$ 、 $\text{N}$ からなる群から選択され、

$\text{K}^1$ 、 $\text{K}^2$ は、それぞれ互いに独立して、 $-\text{O}-$ 、 $-\text{NH}-$ 、 $-\text{N}(\text{CH}_3)-$ 、 $-\text{N}(\text{CH}_2\text{CH}_3)-$ 、 $-\text{S}-$ 、 $-\text{CH}_2-$ からなる群から選択され、

$\text{V}^1$ 、 $\text{V}^2$ 、 $\text{V}^3$ は、それぞれ互いに独立して、 $-\text{O}-$ 、 $-\text{S}-$ 、 $-\text{NH}-$ 、 $-\text{NR}'$ 、 $-\text{NR}''$ からなる群から選択され、ここで $\text{R}'$ 、 $\text{R}''$ は、1～6個の炭素原子を有する非分枝鎖状もしくは分枝鎖状のアルキル基であり、

$\text{W}^1$ 、 $\text{W}^2$ 、 $\text{W}^3$ は、それぞれ互いに独立して、 $\text{H}$ 、メチル、エチルからなる群から選択され、

$c$ 、 $d$ 、 $e$ 、 $f$ 、 $g$ 、 $h$ は、それぞれ互いに独立して、0～50の範囲からのいずれかの整数であり、

$\text{X}^9$ は、水素、 $-\text{OH}$ 、 $-\text{O}\cdot$ 、1～10個の炭素原子を有する非分枝鎖状もしくは分枝鎖状のアルキル基、1～10個の炭素原子を有する非分枝鎖状もしくは分枝鎖状のアルコキシ基からなる群から選択され、

前記化学構造(iii)、(iv)、(v)、(vi)、(vii)、(viii)、(ix)において、炭素原子に結合された少なくとも1個の水素原子は、 $-\text{OH}$ 、 $-\text{NH}_2$ 、 $-\text{OCH}_3$ 、 $-\text{OCH}_2\text{CH}_3$ 、 $-\text{NH}(\text{CH}_3)$ 、 $-\text{N}(\text{CH}_3)_2$ 、 $-\text{NH}(\text{CH}_2\text{CH}_3)$ 、 $-\text{N}(\text{CH}_2\text{CH}_3)_2$ 、 $-\text{N}(\text{CH}_3)(\text{CH}_2\text{CH}_3)$ からなる群から選択されるいずれかの基によって置き換えられていてよく、

基 $\text{R}^7$ 、 $\text{R}^8$ は、それぞれ互いに独立して、

水素、

1～30個の炭素原子を有する非分枝鎖状もしくは分枝鎖状のアルキル基であって、少なくとも1個の水素基が $-\text{OH}$ 、 $-\text{NH}_2$ 、 $-\text{OCH}_3$ 、 $-\text{OCH}_2\text{CH}_3$ 、 $-\text{NH}(\text{CH}_3)$ 、 $-\text{N}(\text{CH}_3)_2$ 、 $-\text{NH}(\text{CH}_2\text{CH}_3)$ 、 $-\text{N}(\text{CH}_2\text{CH}_3)_2$ 、 $-\text{N}(\text{CH}_3)(\text{CH}_2\text{CH}_3)$ からなる群から選択されるいずれかの基によって置き換えられていてよい前記アルキル基、

1～30個の炭素原子を有する非分枝鎖状もしくは分枝鎖状のアシル基であって、少なくとも1個の水素基が $-\text{OH}$ 、 $-\text{NH}_2$ 、 $-\text{OCH}_3$ 、 $-\text{OCH}_2\text{CH}_3$ 、 $-\text{NH}(\text{CH}_3)$ 、 $-\text{N}(\text{CH}_3)_2$ 、 $-\text{NH}(\text{CH}_2\text{CH}_3)$ 、 $-\text{N}(\text{CH}_2\text{CH}_3)_2$ 、 $-\text{N}(\text{CH}_3)(\text{CH}_2\text{CH}_3)$ からなる群から選択されるいずれかの基によって置き換えられていてよい前記アシル基、

10

20

30

40

50

H<sub>3</sub>) (CH<sub>2</sub>CH<sub>3</sub>) からなる群から選択されるいずれかの基によって置き換えられていてよい前記アシル基

からなる群から選択され、

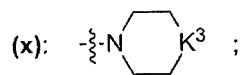
p<sup>9</sup> = 1 の場合に、-NR<sup>3</sup>R<sup>4</sup> は、化学構造 (x) の基であってもよく、

p<sup>10</sup> = 1 の場合に、-NR<sup>11</sup>R<sup>12</sup> は、化学構造 (x) の基であってもよく、

基-NR<sup>5</sup>R<sup>6</sup>、-NR<sup>7</sup>R<sup>8</sup>、-NR<sup>9</sup>R<sup>10</sup> は、それぞれ互いに独立して、化学構造 (x) の基であってもよく、

化学構造 (x) は、以下に定義される通り：

【化 4】



10

[前記化学構造において、

K<sup>3</sup> は、-O-、-S-、-NH-、-N(CH<sub>3</sub>)-、-N(CH<sub>2</sub>CH<sub>3</sub>)- からなる群から選択される] であり、

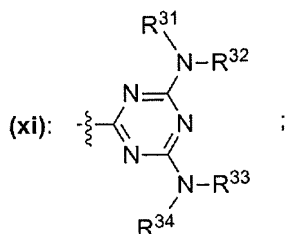
基R<sup>21</sup>、R<sup>22</sup>、R<sup>23</sup>、R<sup>24</sup>、R<sup>25</sup>、R<sup>26</sup> は、それぞれ互いに独立して、

水素、

1 ~ 30 個の炭素原子を有する非分枝鎖状もしくは分枝鎖状のアルキル基、

化学構造 (xi)

【化 5】



20

を有する基

からなる群から選択され、前記化学構造において、

基R<sup>27</sup>、R<sup>28</sup>、R<sup>29</sup>、R<sup>31</sup>、R<sup>32</sup>、R<sup>33</sup>、R<sup>34</sup> は、それぞれ互いに独立して、

30

水素、

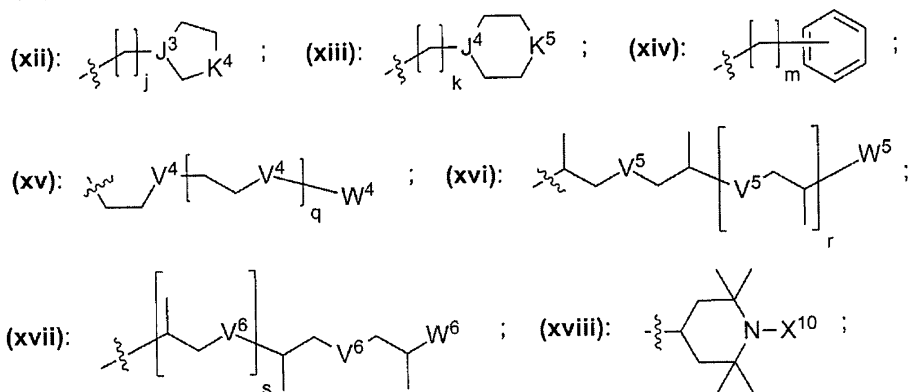
1 ~ 30 個の炭素原子を有する非分枝鎖状もしくは分枝鎖状のアルキル基であって、少なくとも 1 個の水素基が-OH、-NH<sub>2</sub>、-OCH<sub>3</sub>、-OCH<sub>2</sub>CH<sub>3</sub>、-NH(CH<sub>3</sub>)、-N(CH<sub>3</sub>)<sub>2</sub>、-NH(CH<sub>2</sub>CH<sub>3</sub>)、-N(CH<sub>2</sub>CH<sub>3</sub>)<sub>2</sub>、-N(CH<sub>3</sub>)(CH<sub>2</sub>CH<sub>3</sub>) からなる群から選択されるいずれかの基によって置き換えられていてよい前記アルキル基、

1 ~ 30 個の炭素原子を有する非分枝鎖状もしくは分枝鎖状のアシル基であって、少なくとも 1 個の水素基が-OH、-NH<sub>2</sub>、-OCH<sub>3</sub>、-OCH<sub>2</sub>CH<sub>3</sub>、-NH(CH<sub>3</sub>)、-N(CH<sub>3</sub>)<sub>2</sub>、-NH(CH<sub>2</sub>CH<sub>3</sub>)、-N(CH<sub>2</sub>CH<sub>3</sub>)<sub>2</sub>、-N(CH<sub>3</sub>)(CH<sub>2</sub>CH<sub>3</sub>) からなる群から選択されるいずれかの基によって置き換えられていてよい前記アシル基、

40

(xii)、(xiii)、(xiv)、(xv)、(xvi)、(xvii)、(xviii)

## 【化 6】



10

からなる群から選択されるいずれかの化学構造を有する基

からなる群から選択され、前記化学構造において、

$J^3$ 、 $J^4$  は、それぞれ互いに独立して、CH、N からなる群から選択され、

$K^4$ 、 $K^5$  は、それぞれ互いに独立して、 $-O-$ 、 $-NH-$ 、 $-N(CH_3)-$ 、 $-N(CH_2CH_3)-$ 、 $-S-$ 、 $-CH_2-$  からなる群から選択され、

$V^4$ 、 $V^5$ 、 $V^6$  は、それぞれ互いに独立して、 $-O-$ 、 $-S-$ 、 $-NH-$ 、 $-NR''$ 、 $-R''$  からなる群から選択され、ここで  $R''$  は、1～6 個の炭素原子を有する非分枝鎖状もしくは分枝鎖状のアルキル基であり、

20

$W^4$ 、 $W^5$ 、 $W^6$  は、それぞれ互いに独立して、H、メチル、エチル からなる群から選択され、

$j$ 、 $k$ 、 $m$ 、 $q$ 、 $r$ 、 $s$  は、それぞれ互いに独立して、0～50 の範囲からのいずれかの整数であり、

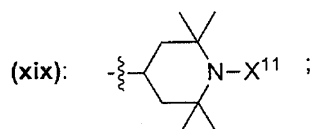
$X^{10}$  は、水素、 $-OH$ 、 $-O\cdot$ 、1～10 個の炭素原子を有する非分枝鎖状もしくは分枝鎖状のアルキル基、1～10 個の炭素原子を有する非分枝鎖状もしくは分枝鎖状のアルコキシ基からなる群から選択され、

前記化学構造 (xii)、(xiii)、(xiv)、(xv)、(xvi)、(xvii)、(xviii) において、炭素原子に結合された少なくとも 1 個の水素原子は、 $-OH$ 、 $-NH_2$ 、 $-OCH_3$ 、 $-OCH_2CH_3$ 、 $-NH(CH_3)$ 、 $-N(CH_3)_2$ 、 $-NH(CH_2CH_3)$ 、 $-N(CH_2CH_3)_2$ 、 $-N(CH_3)(CH_2CH_3)$  からなる群から選択されるいずれかの基によって置き換えられていてよく、

30

但し、 $R^{21}$  および  $R^{26}$  は、 $p^{17} = p^{18} = p^{19} = p^{20} = 0$  の場合に、それぞれ互いに独立して、化学構造 (xix)

## 【化 7】



[前記化学構造において、

40

$X^{11}$  は、水素、OH、 $-O\cdot$ 、1～10 個の炭素原子を有する非分枝鎖状もしくは分枝鎖状のアルキル基、1～10 個の炭素原子を有する非分枝鎖状もしくは分枝鎖状のアルコキシ基からなる群から選択される] の基であってもよいものとし、かつ

還元性条件は、前記少なくとも 1 種のトリアセトンアミン化合物 (I) とホルムアルデヒドとを、水素の存在下で、かつ担体触媒の存在下で反応させることによって調整され、前記担体触媒が、少なくとも 1 種の金属 M を有し、前記金属 M は、Cr、Mo、Mn、Ni、Pd、Pt、Fe、Ru、Co、Rh からなる群から選択される、ことを特徴とする前記製造方法。

## 【請求項 2】

請求項 1 に記載の方法であって、

50

$p^1 = p^2 = p^3 = p^4 = p^5 = p^6 = p^7 = p^8 = p^{11} = p^{12} = p^{13} = p^{14} = 0$ であり、かつ  $p^9$ 、 $p^{10}$ 、 $p^{15}$ 、 $p^{16}$ 、 $p^{17}$ 、 $p^{18}$ 、 $p^{19}$ 、 $p^{20}$  は、それぞれ互いに独立して、0 または 1 である、前記方法。

【請求項 3】

請求項 1 または 2 に記載の方法であって、  
 $Y^1$ 、 $Y^2$ 、 $Y^3$ 、 $Y^4$ 、 $Y^5$ 、 $Y^6$ 、 $Y^7$ 、 $Y^8$ 、 $Y^9$ 、 $Y^{10}$  は、それぞれ互いに独立して、

1～30 個の炭素原子を有する非分枝鎖状もしくは分枝鎖状のアルキレン基、

3～30 個の炭素原子を有する二価の飽和炭化水素基であって、3～30 個の炭素原子からなる少なくとも 1 個の飽和環を有する前記二価の飽和炭化水素基、  
 からなる群から選択される、前記方法。

10

【請求項 4】

請求項 1 から 3 までのいずれか 1 項に記載の方法であって、  
 基  $R^1$ 、 $R^2$ 、 $R^3$ 、 $R^4$ 、 $R^5$ 、 $R^6$ 、 $R^9$ 、 $R^{10}$ 、 $R^{11}$ 、 $R^{12}$ 、 $R^{13}$ 、 $R^{14}$ 、 $R^{15}$ 、 $R^{16}$ 、 $R^{17}$ 、 $R^{18}$ 、 $R^{19}$ 、 $R^{20}$ 、 $R^{30}$  は、それぞれ互いに独立して、

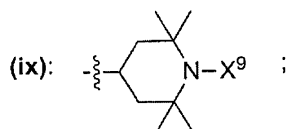
水素、

1～30 個の炭素原子を有する非分枝鎖状もしくは分枝鎖状のアルキル基であって、少なくとも 1 個の水素基が  $-OH$ 、 $-NH_2$ 、 $-OCH_3$ 、 $-OCH_2CH_3$ 、 $-NH(CH_3)$ 、 $-N(CH_3)_2$ 、 $-NH(CH_2CH_3)$ 、 $-N(CH_2CH_3)_2$ 、 $-N(CH_3)(CH_2CH_3)$  からなる群から選択されるいずれかの基によって置き換えられていてよい前記アルキル基、

20

化学構造 (ix)

【化 8】



を有する基

からなる群から選択され、前記化学構造において、

30

$X^9$  は、水素、 $-OH$ 、 $-O\cdot$ 、1～10 個の炭素原子を有する非分枝鎖状もしくは分枝鎖状のアルキル基、1～10 個の炭素原子を有する非分枝鎖状もしくは分枝鎖状のアルコキシ基からなる群から選択され、

基  $R^7$ 、 $R^8$  は、それぞれ互いに独立して、

水素、

1～30 個の炭素原子を有する非分枝鎖状もしくは分枝鎖状のアルキル基であって、少なくとも 1 個の水素基が  $-OH$ 、 $-NH_2$ 、 $-OCH_3$ 、 $-OCH_2CH_3$ 、 $-NH(CH_3)$ 、 $-N(CH_3)_2$ 、 $-NH(CH_2CH_3)$ 、 $-N(CH_2CH_3)_2$ 、 $-N(CH_3)(CH_2CH_3)$  からなる群から選択されるいずれかの基によって置き換えられていてよい前記アルキル基

40

からなる群から選択され、

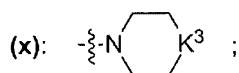
$p^9 = 1$  の場合に、 $-NR^3R^4$  は、化学構造 (x) の基であってもよく、

$p^{10} = 1$  の場合に、 $-NR^{11}R^{12}$  は、化学構造 (x) の基であってもよく、

基  $-NR^5R^6$ 、 $-NR^7R^8$ 、 $-NR^9R^{10}$  は、それぞれ互いに独立して、化学構造 (x) の基であってもよく、

化学構造 (x) は、以下に定義される通り：

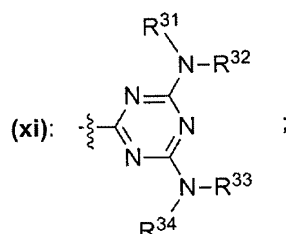
【化 9】



50

[前記化学構造において、  
 $K^3$  は、 $-O-$ 、 $-S-$ 、 $-NH-$ 、 $-N(CH_3)-$ 、 $-N(CH_2CH_3)-$  からなる群から選択される] であり、  
 基  $R^{21}$ 、 $R^{22}$ 、 $R^{23}$ 、 $R^{24}$ 、 $R^{25}$ 、 $R^{26}$  は、それぞれ互いに独立して、  
 水素、  
 1～30個の炭素原子を有する非分枝鎖状もしくは分枝鎖状のアルキル基、  
 化学構造 (xi)

【化10】



10

を有する基  
 からなる群から選択され、前記化学構造において、  
 基  $R^{27}$ 、 $R^{28}$ 、 $R^{29}$ 、 $R^{31}$ 、 $R^{32}$ 、 $R^{33}$ 、 $R^{34}$  は、それぞれ互いに独立して、

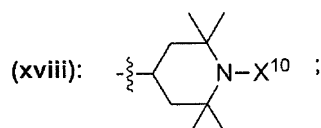
水素、

20

1～30個の炭素原子を有する非分枝鎖状もしくは分枝鎖状のアルキル基であって、少なくとも1個の水素基が $-OH$ 、 $-NH_2$ 、 $-OCH_3$ 、 $-OCH_2CH_3$ 、 $-NH(CH_3)$ 、 $-N(CH_3)_2$ 、 $-NH(CH_2CH_3)$ 、 $-N(CH_2CH_3)_2$ 、 $-N(CH_3)(CH_2CH_3)$  からなる群から選択されるいずれかの基によって置き換えられてよい前記アルキル基、

化学構造 (xviii)

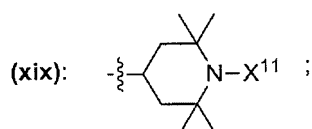
【化11】



30

を有する基  
 からなる群から選択され、前記化学構造において、  
 $X^{10}$  は、水素、 $-OH$ 、 $-O\cdot$ 、1～10個の炭素原子を有する非分枝鎖状もしくは分枝鎖状のアルキル基、1～10個の炭素原子を有する非分枝鎖状もしくは分枝鎖状のアルコキシ基からなる群から選択され、  
 但し、 $R^{21}$  および  $R^{26}$  は、 $p^{17} = p^{18} = p^{19} = p^{20} = 0$  の場合に、それぞれ互いに独立して、化学構造 (xix)

【化12】



40

[前記化学構造において、  
 $X^{11}$  は、水素、 $OH$ 、 $-O\cdot$ 、1～10個の炭素原子を有する非分枝鎖状もしくは分枝鎖状のアルキル基、1～10個の炭素原子を有する非分枝鎖状もしくは分枝鎖状のアルコキシ基からなる群から選択される] の基であってもよいものとする、前記方法。

【請求項5】

請求項1から4までのいずれか1項に記載の方法であって、  
 $X^4 = X^5 = X^6 = X^7 = X^8 = X^9 = X^{10} = X^{11}$  = 水素である、前記方法。

50

## 【請求項 6】

請求項 1 から 5 までのいずれか 1 項に記載の方法であって、  
前記トリアセトンアミン化合物 (I) は、化学構造 (I-A)、(I-B)、(I-C)、  
(I-D)、(I-E) からなる群から選択される、前記方法。

## 【請求項 7】

請求項 1 から 6 までのいずれか 1 項に記載の方法であって、  
前記トリアセトンアミン化合物 (I) は、化学構造 (I-A)、(I-B)、(I-D)  
からなる群から選択され、

Z<sup>1</sup> は、-O-、-S-、-NR<sup>3 0</sup>- からなる群から選択され、

基 R<sup>1</sup>、R<sup>2</sup>、R<sup>3 0</sup> は、それぞれ互いに独立して、

10

水素、

1 ~ 30 個の炭素原子を有する非分枝鎖状もしくは分枝鎖状のアルキル基であって、少なくとも 1 個の水素基が -OH、-NH<sub>2</sub>、-OCH<sub>3</sub>、-OCH<sub>2</sub>CH<sub>3</sub>、-NH(CH<sub>3</sub>)、-N(CH<sub>3</sub>)<sub>2</sub>、-NH(CH<sub>2</sub>CH<sub>3</sub>)、-N(CH<sub>2</sub>CH<sub>3</sub>)<sub>2</sub>、-N(CH<sub>3</sub>)(CH<sub>2</sub>CH<sub>3</sub>) からなる群から選択されるいずれかの基によって置き換えられていてよい前記アルキル基

からなる群から選択される、前記方法。

## 【請求項 8】

請求項 1 から 7 までのいずれか 1 項に記載の方法であって、  
前記トリアセトンアミン化合物 (I) は、化学構造 (I-A)、(I-B)、(I-D)  
からなる群から選択され、

20

Z<sup>1</sup> は、-O-、-NR<sup>3 0</sup>- からなる群から選択され、

基 R<sup>1</sup>、R<sup>2</sup>、R<sup>3 0</sup> は、それぞれ互いに独立して、

水素、

1 ~ 12 個の炭素原子を有する非分枝鎖状もしくは分枝鎖状のアルキル基  
からなる群から選択される、前記方法。

## 【請求項 9】

請求項 1 から 8 までのいずれか 1 項に記載の方法であって、  
ホルムアルデヒドは、ガスとして、水溶液として、または固体として使用される、前記方法。

30

## 【請求項 10】

請求項 1 から 9 までのいずれか 1 項に記載の方法であって、  
前記少なくとも 1 種のトリアセトンアミン化合物 (I) とホルムアルデヒドとを還元性条件下で少なくとも 1 種の溶剤中で反応させ、前記溶剤は、脂肪族溶剤、芳香族溶剤、エーテル、ハロゲン化溶剤、アミド、チオ化合物、カルボン酸、アルコール、水からなる群から選択される、前記方法。

## 【請求項 11】

請求項 1 から 10 までのいずれか 1 項に記載の方法であって、  
前記少なくとも 1 種のトリアセトンアミン化合物 (I) とホルムアルデヒドとを還元性条件下で 20℃ から 350℃ までの範囲の温度および 2 bar から 500 bar までの範囲の圧力で反応させる、前記方法。

40

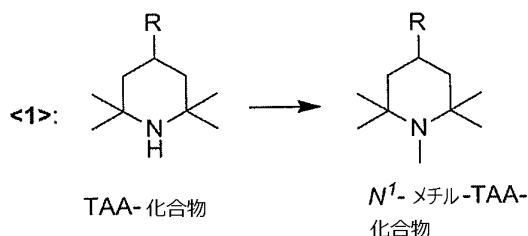
## 【発明の詳細な説明】

## 【技術分野】

## 【0001】

本発明は、N-メチル置換されたトリアセトンアミン化合物（トリアセトンアミン＝“TAA”）の製造法を記載する。更に、特に本発明は、例えば反応式<1>

## 【化 1】



(式中、Rは、例えば、アルキル基、アルコキシ基、アミン基、あるいはOH基である)において示されるように、環中に存在する窒素のメチル化法を記載する。

10

## 【背景技術】

## 【0002】

## 本発明の背景

2, 2, 6, 6-テトラメチルピペリジンのメチル化誘導体は、とりわけ、“ヒンダードアミン光安定剤”として用いられるという点で特に重要である。メチル化によって、酸性条件下でも用いられることが可能となる。N-メチル化された2, 2, 6, 6-テトラメチルピペリジン基を有する市販製品は、例えばTinuvin (登録商標) 292 [1-(メチル)-8-(1, 2, 2, 6, 6-ペンタメチル-4-ピペリジニル)-セバケートとビス-(1, 2, 2, 6, 6-ペンタメチル-4-ピペリジニル)-セバケートの混合物] またはCyasorb (登録商標) UV-3529 (CAS番号193098-40-7) である。

20

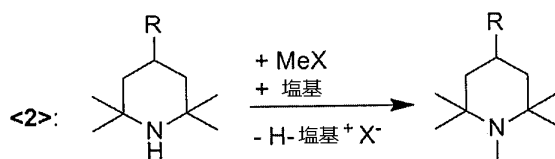
## 【0003】

先行技術においては、アミンをメチル化する様々な方法が記載されている。

## 【0004】

例えば、Kopka, I. E., et al., J. Org. Chem. 1980, 45, 4616-4622およびMinatti, A., et al., J. Org. Chem. 2007, 72, 9253-9258には、アミンをハロゲン化メチルと反応させることが記載されている。これは、反応式<2>

## 【化 2】



30

(式中、Rは、反応式<1>に関して定義されているような基である)において模式的に示される。

## 【0005】

ここで、反応式<2>において示される方法の欠点は、生成物を遊離させるために、ハロゲン化メチルのほかに、少なくとも1当量の適した塩基が用いられなければならないことである。そのうえ、これは、相応する塩の形成をもたらし、当該塩は、その後に廃棄物として発生する。そのうえ、問題なのは、第三級アミンへの選択的アルキル化が一般的に可能ではないことであり、それというのも、相応の第四級アンモニウム塩への過アルキル化が起こり得るからである。

40

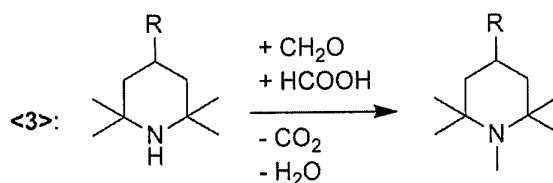
## 【0006】

先行技術において記載された更なる方法が、エシュバイラー・クラーク反応 (例えばLutz, W. B., et al., J. Org. Chem. 1962, 27, 1695-1703; 欧州特許出願公開第0729947 (A1) 号明細書; 国際公開第2004/072035 (A1) 号; 国際公開第2005/123679 (A2) 号) である。この方法においては、アミンがギ酸の存在下にホルムアルデヒドと反応させられる。その際、ギ酸は、還元剤として作用し、かつCO<sub>2</sub>に変換される。反応が進行するように、更に、

50

一般的に 1 当量の塩基が必要とされる。反応は、次の反応式< 3 >

【化 3】



(式中、Rは、反応式< 1 >に関して定義されているような基である)

において模式的に示される。

10

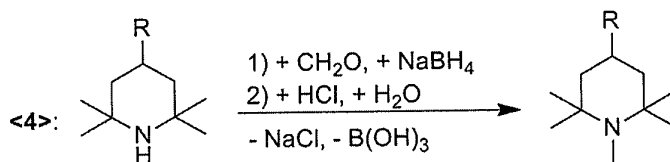
【0007】

この場合の欠点は、ギ酸を使用する必要があることである。そのうえ、塩基の使用が、またしても相応の廃棄流を生む。

【0008】

先行技術 (例えば国際公開第 2004/089913 (A1) 号、国際公開第 2008/101979 (A1) 号) に記載された N-メチル化の更なる手法は、ホウ化水素 (例えば水素化ホウ素ナトリウム) の存在下にホルムアルデヒドと反応させることである。反応は、次の反応式< 4 >:

【化 4】



20

(式中、Rは、反応式< 1 >に関して定義されているような基である)

において模式的に示される。

【0009】

この場合の欠点は、ホウ化水素を使用する必要があることである。後処理において、大量のホウ酸またはホウ酸誘導体が廃棄流として発生する。

【先行技術文献】

30

【特許文献】

【0010】

【特許文献 1】 欧州特許出願公開第 0729947 (A1) 号明細書

【特許文献 2】 国際公開第 2004/072035 (A1) 号

【特許文献 3】 国際公開第 2005/123679 (A2) 号

【特許文献 4】 国際公開第 2004/089913 (A1) 号

【特許文献 5】 国際公開第 2008/101979 (A1) 号

【非特許文献】

【0011】

【非特許文献 1】 Kopka, I. E., et al., J. Org. Chem. 1980, 45, 4616-4622

40

【非特許文献 2】 Minatti, A., et al., J. Org. Chem. 2007, 72, 9253-9258

【非特許文献 3】 Lutz, W. B., et al., J. Org. Chem. 1962, 27, 1695-1703

【発明の概要】

【発明が解決しようとする課題】

【0012】

それゆえ、本発明の課題は、前述の欠点を有さない N-メチル置換されたトリアセトンアミン化合物の製造法を提供することであった。

50

【課題を解決するための手段】

【0013】

ところで、意想外にも、前で記載した課題を解決する方法を見出した。

【0014】

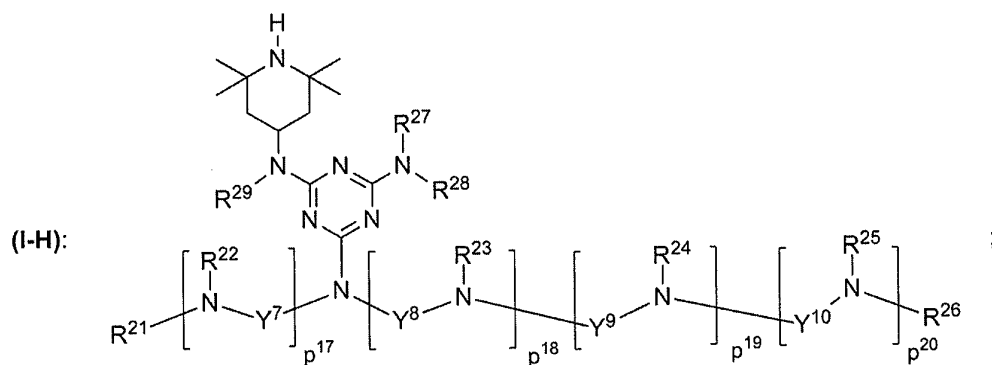
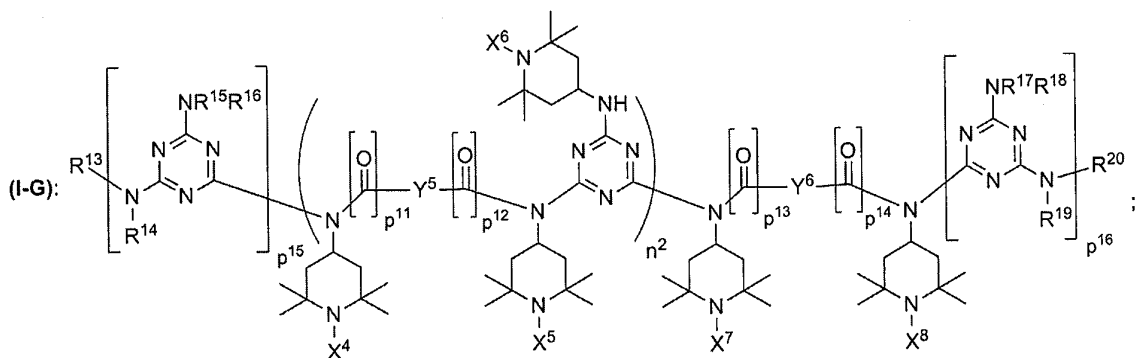
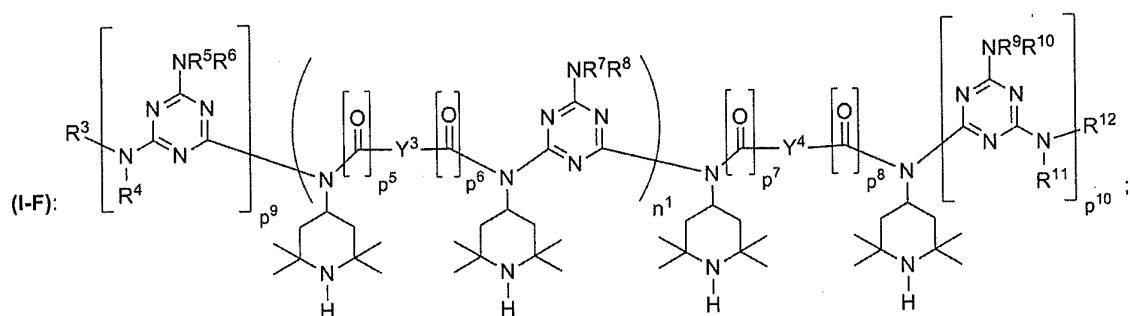
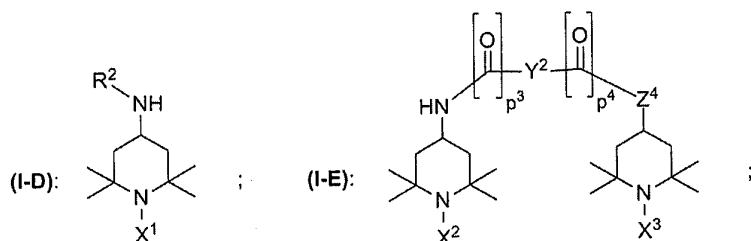
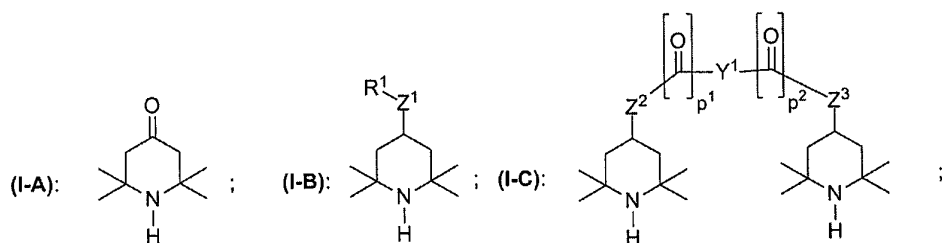
発明の詳細な説明

本発明は、第一の態様においては、以下の項目1. 1～1. 11による方法に関する。

【0015】

1. 1 N-メチル置換されたトリアセトンアミン化合物の製造方法であって、  
少なくとも1種のトリアセトンアミン化合物（I）とホルムアルデヒドとを還元性条件下  
で反応させ、その際、  
前記トリアセトンアミン化合物（I）は、化学構造（I-A）、（I-B）、（I-C）、  
（I-D）、（I-E）、（I-F）、（I-G）、（I-H）

【化 5】



からなる群から選択され、前記化学構造において、

$n^1$ 、 $n^2$ は、それぞれ互いに独立して、1～20の範囲からのいずれかの整数であり、

$p^1$ 、 $p^2$ 、 $p^3$ 、 $p^4$ 、 $p^5$ 、 $p^6$ 、 $p^7$ 、 $p^8$ 、 $p^9$ 、 $p^{10}$ 、 $p^{11}$ 、 $p^{12}$ 、 $p^{13}$ 、 $p^{14}$ 、 $p^{15}$

、 $p^{16}$ 、 $p^{17}$ 、 $p^{18}$ 、 $p^{19}$ 、 $p^{20}$ は、それぞれ互いに独立して、0または1であり、

$X^1$ は、OH、 $-O\cdot$ 、1～10個の炭素原子を有する非分枝鎖状もしくは分枝鎖状のアルキル基、1～10個の炭素原子を有する非分枝鎖状もしくは分枝鎖状のアルコキシ基からなる群から選択され、

10

20

30

40

50

$X^2$ 、 $X^3$ は、水素、OH、 $-O\cdot$ 、1～10個の炭素原子を有する非分枝鎖状もしくは分枝鎖状のアルキル基、1～10個の炭素原子を有する非分枝鎖状もしくは分枝鎖状のアルコキシ基からなる群から選択され、かつ $X^2$ 、 $X^3$ は、 $X^2 = X^3 =$ 水素の場合を除き、それぞれ互いに独立して選択され、

$X^4$ 、 $X^5$ 、 $X^6$ 、 $X^7$ 、 $X^8$ は、それぞれ互いに独立して、水素、OH、 $-O\cdot$ 、1～10個の炭素原子を有する非分枝鎖状もしくは分枝鎖状のアルキル基、1～10個の炭素原子を有する非分枝鎖状もしくは分枝鎖状のアルコキシ基からなる群から選択され、

$Y^1$ 、 $Y^2$ 、 $Y^3$ 、 $Y^4$ 、 $Y^5$ 、 $Y^6$ 、 $Y^7$ 、 $Y^8$ 、 $Y^9$ 、 $Y^{10}$ は、それぞれ互いに独立して、

1～30個の炭素原子を有する非分枝鎖状もしくは分枝鎖状のアルキレン基、

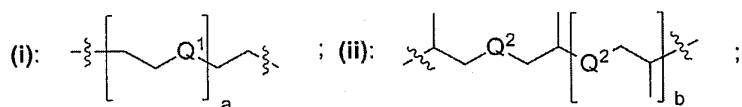
3～30個の炭素原子を有する二価の飽和炭化水素基であって、3～30個の炭素原子からなる少なくとも1個の飽和環を有する前記二価の飽和炭化水素基、

6～30個の炭素原子を有する二価の炭化水素基であって、そのうち少なくとも6個の炭素原子が芳香族系中に存在し、その他の炭素原子は、存在する場合は飽和である前記二価の炭化水素基、

橋かけ基

からなる群から選択され、前記橋かけ基は、(i)、(ii)

【化6】



からなる群から選択されるいずれかの化学構造を有し、前記化学構造において、

$Q^1$ 、 $Q^2$ は、それぞれ互いに独立して、 $-O-$ 、 $-S-$ 、 $-NH-$ または $-NR'-$ からなる群から選択され、ここで $R'$ は、1～6個の炭素原子を有する非分枝鎖状もしくは分枝鎖状のアルキル基であり、

$a$ は、1～50の範囲から選択されるいずれかの整数であり、

$b$ は、0～50の範囲から選択されるいずれかの整数であり、

$Y^1$ は、 $p^1$ および $p^2$ の少なくとも1つが値1を有する場合に、直接的な結合であってもよく、

$Y^2$ は、 $p^3$ および $p^4$ の少なくとも1つが値1を有する場合に、直接的な結合であってもよく、

$Y^3$ は、 $p^5$ および $p^6$ の少なくとも1つが値1を有する場合に、直接的な結合であってもよく、

$Y^4$ は、 $p^7$ および $p^8$ の少なくとも1つが値1を有する場合に、直接的な結合であってもよく、

$Y^5$ は、 $p^{11}$ および $p^{12}$ の少なくとも1つが値1を有する場合に、直接的な結合であってもよく、

$Y^6$ は、 $p^{13}$ および $p^{14}$ の少なくとも1つが値1を有する場合に、直接的な結合であってもよく、

$Z^1$ 、 $Z^2$ 、 $Z^3$ 、 $Z^4$ は、それぞれ互いに独立して、 $-O-$ 、 $-S-$ 、 $-NR^{30}-$ からなる群から選択され、

基 $R^1$ 、 $R^2$ 、 $R^3$ 、 $R^4$ 、 $R^5$ 、 $R^6$ 、 $R^9$ 、 $R^{10}$ 、 $R^{11}$ 、 $R^{12}$ 、 $R^{13}$ 、 $R^{14}$ 、 $R^{15}$ 、 $R^{16}$ 、 $R^{17}$ 、 $R^{18}$ 、 $R^{19}$ 、 $R^{20}$ 、 $R^{30}$ は、それぞれ互いに独立して、

水素、

1～30個の炭素原子を有する非分枝鎖状もしくは分枝鎖状のアルキル基であって、少なくとも1個の水素基が $-OH$ 、 $-NH_2$ 、 $-OCH_3$ 、 $-OCH_2CH_3$ 、 $-NH(CH_3)$ 、 $-N(CH_3)_2$ 、 $-NH(CH_2CH_3)$ 、 $-N(CH_2CH_3)_2$ 、 $-N(CH_3)(CH_2CH_3)$ からなる群から選択されるいずれかの基によって置き換えられていてよい前記アルキル基、

1～30個の炭素原子を有する非分枝鎖状もしくは分枝鎖状のアシル基であって、少な

10

20

30

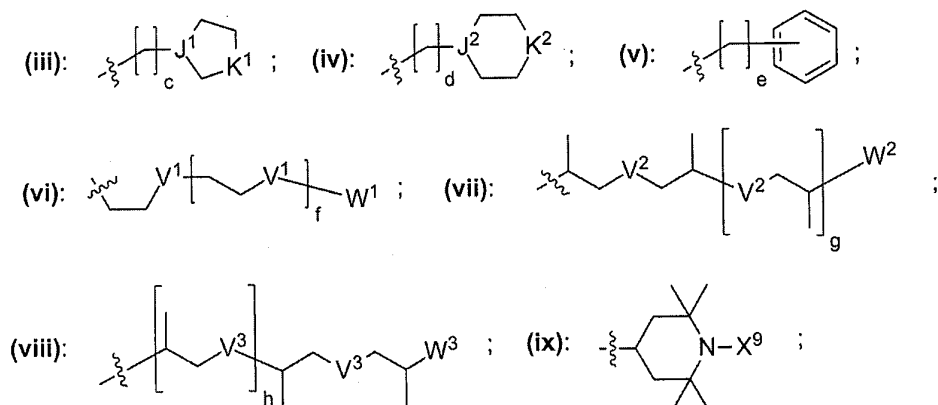
40

50

くとも1個の水素基が $-\text{OH}$ 、 $-\text{NH}_2$ 、 $-\text{OCH}_3$ 、 $-\text{OCH}_2\text{CH}_3$ 、 $-\text{NH}(\text{CH}_3)$ 、 $-\text{N}(\text{CH}_3)_2$ 、 $-\text{NH}(\text{CH}_2\text{CH}_3)$ 、 $-\text{N}(\text{CH}_2\text{CH}_3)_2$ 、 $-\text{N}(\text{CH}_3)(\text{CH}_2\text{CH}_3)$ からなる群から選択されるいずれかの基によって置き換えられていてよい前記アシル基、

(iii)、(iv)、(v)、(vi)、(vii)、(viii)、(ix)

【化7】



からなる群から選択されるいずれかの化学構造を有する基

からなる群から選択され、前記化学構造において、

$J^1$ 、 $J^2$ は、それぞれ互いに独立して、 $\text{CH}$ 、 $\text{N}$ からなる群から選択され、

$K^1$ 、 $K^2$ は、それぞれ互いに独立して、 $-\text{O}-$ 、 $-\text{NH}-$ 、 $-\text{N}(\text{CH}_3)-$ 、 $-\text{N}(\text{CH}_2\text{CH}_3)-$ 、 $-\text{S}-$ 、 $-\text{CH}_2-$ からなる群から選択され、

$V^1$ 、 $V^2$ 、 $V^3$ は、それぞれ互いに独立して、 $-\text{O}-$ 、 $-\text{S}-$ 、 $-\text{NH}-$ 、 $-\text{NR}''-$ からなる群から選択され、ここで $\text{R}''$ は、1～6個の炭素原子を有する非分枝鎖状もしくは分枝鎖状のアルキル基であり、

$W^1$ 、 $W^2$ 、 $W^3$ は、それぞれ互いに独立して、 $\text{H}$ 、メチル、エチルからなる群から選択され、

$c$ 、 $d$ 、 $e$ 、 $f$ 、 $g$ 、 $h$ は、それぞれ互いに独立して、0～50の範囲からのいずれかの整数であり、

$X^9$ は、水素、 $-\text{OH}$ 、 $-\text{O}\cdot$ 、1～10個の炭素原子を有する非分枝鎖状もしくは分枝鎖状のアルキル基、1～10個の炭素原子を有する非分枝鎖状もしくは分枝鎖状のアルコキシ基からなる群から選択され、

前記化学構造(iii)、(iv)、(v)、(vi)、(vii)、(viii)、(ix)において、炭素原子に結合された少なくとも1個の水素原子は、 $-\text{OH}$ 、 $-\text{NH}_2$ 、 $-\text{OCH}_3$ 、 $-\text{OCH}_2\text{CH}_3$ 、 $-\text{NH}(\text{CH}_3)$ 、 $-\text{N}(\text{CH}_3)_2$ 、 $-\text{NH}(\text{CH}_2\text{CH}_3)$ 、 $-\text{N}(\text{CH}_2\text{CH}_3)_2$ 、 $-\text{N}(\text{CH}_3)(\text{CH}_2\text{CH}_3)$ からなる群から選択されるいずれかの基によって置き換えられていてよく、

基 $\text{R}^7$ 、 $\text{R}^8$ は、それぞれ互いに独立して、

水素、

1～30個の炭素原子を有する非分枝鎖状もしくは分枝鎖状のアルキル基であって、少なくとも1個の水素基が $-\text{OH}$ 、 $-\text{NH}_2$ 、 $-\text{OCH}_3$ 、 $-\text{OCH}_2\text{CH}_3$ 、 $-\text{NH}(\text{CH}_3)$ 、 $-\text{N}(\text{CH}_3)_2$ 、 $-\text{NH}(\text{CH}_2\text{CH}_3)$ 、 $-\text{N}(\text{CH}_2\text{CH}_3)_2$ 、 $-\text{N}(\text{CH}_3)(\text{CH}_2\text{CH}_3)$ からなる群から選択されるいずれかの基によって置き換えられていてよい前記アルキル基、

1～30個の炭素原子を有する非分枝鎖状もしくは分枝鎖状のアシル基であって、少なくとも1個の水素基が $-\text{OH}$ 、 $-\text{NH}_2$ 、 $-\text{OCH}_3$ 、 $-\text{OCH}_2\text{CH}_3$ 、 $-\text{NH}(\text{CH}_3)$ 、 $-\text{N}(\text{CH}_3)_2$ 、 $-\text{NH}(\text{CH}_2\text{CH}_3)$ 、 $-\text{N}(\text{CH}_2\text{CH}_3)_2$ 、 $-\text{N}(\text{CH}_3)(\text{CH}_2\text{CH}_3)$ からなる群から選択されるいずれかの基によって置き換えられていてよい前記アシル基

からなる群から選択され、

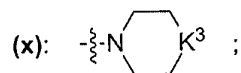
$p^9 = 1$  の場合に、 $-NR^3R^4$  は、化学構造 (x) の基であってもよく、

$p^{10} = 1$  の場合に、 $-NR^{11}R^{12}$  は、化学構造 (x) の基であってもよく、

基  $-NR^5R^6$ 、 $-NR^7R^8$ 、 $-NR^9R^{10}$  は、それぞれ互いに独立して、化学構造 (x) の基であってもよく、

化学構造 (x) は、以下に定義される通り：

【化 8】



10

[前記化学構造において、

$K^3$  は、 $-O-$ 、 $-S-$ 、 $-NH-$ 、 $-N(CH_3)-$ 、 $-N(CH_2CH_3)-$  からなる群から選択され、好ましくは  $K^3$  は  $-O-$  であり、

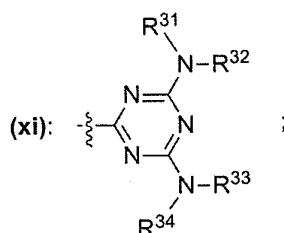
基  $R^{21}$ 、 $R^{22}$ 、 $R^{23}$ 、 $R^{24}$ 、 $R^{25}$ 、 $R^{26}$  は、それぞれ互いに独立して、

水素、

1 ～ 30 個の炭素原子を有する非分枝鎖状もしくは分枝鎖状のアルキル基、

化学構造 (xi)

【化 9】



20

を有する基

からなる群から選択され、前記化学構造において、

基  $R^{27}$ 、 $R^{28}$ 、 $R^{29}$ 、 $R^{31}$ 、 $R^{32}$ 、 $R^{33}$ 、 $R^{34}$  は、それぞれ互いに独立して、

水素、

1 ～ 30 個の炭素原子を有する非分枝鎖状もしくは分枝鎖状のアルキル基であって、少なくとも 1 個の水素基が  $-OH$ 、 $-NH_2$ 、 $-OCH_3$ 、 $-OCH_2CH_3$ 、 $-NH(CH_3)$ 、 $-N(CH_3)_2$ 、 $-NH(CH_2CH_3)$ 、 $-N(CH_2CH_3)_2$ 、 $-N(CH_3)(CH_2CH_3)$  からなる群から選択されるいずれかの基によって置き換えられていてよい前記アルキル基、

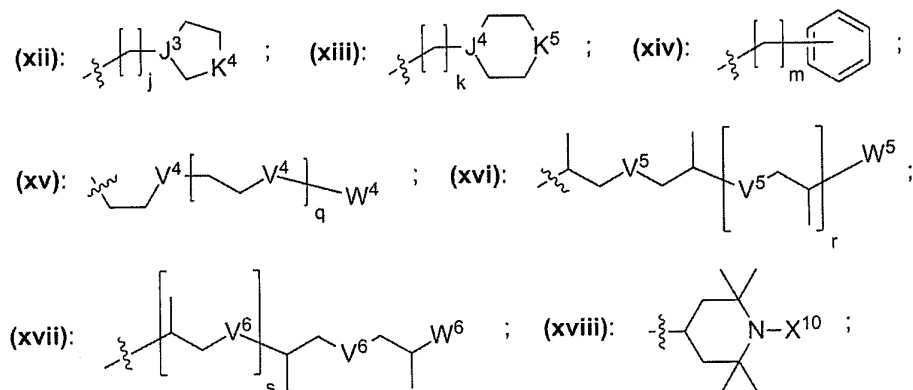
30

1 ～ 30 個の炭素原子を有する非分枝鎖状もしくは分枝鎖状のアシル基であって、少なくとも 1 個の水素基が  $-OH$ 、 $-NH_2$ 、 $-OCH_3$ 、 $-OCH_2CH_3$ 、 $-NH(CH_3)$ 、 $-N(CH_3)_2$ 、 $-NH(CH_2CH_3)$ 、 $-N(CH_2CH_3)_2$ 、 $-N(CH_3)(CH_2CH_3)$  からなる群から選択されるいずれかの基によって置き換えられていてよい前記アシル基、

(xii)、(xiii)、(xiv)、(xv)、(xvi)、(xvii)、(xviii)

40

## 【化 10】



10

からなる群から選択されるいずれかの化学構造を有する基

からなる群から選択され、前記化学構造において、

$J^3$ 、 $J^4$ は、それぞれ互いに独立して、CH、Nからなる群から選択され、

$K^4$ 、 $K^5$ は、それぞれ互いに独立して、 $-O-$ 、 $-NH-$ 、 $-N(CH_3)-$ 、 $-N(CH_2CH_3)-$ 、 $-S-$ 、 $-CH_2-$ からなる群から選択され、

$V^4$ 、 $V^5$ 、 $V^6$ は、それぞれ互いに独立して、 $-O-$ 、 $-S-$ 、 $-NH-$ 、 $-NR''''$ からなる群から選択され、ここで $R''''$ は、1～6個の炭素原子を有する非分枝鎖状もしくは分枝鎖状のアルキル基であり、

20

$W^4$ 、 $W^5$ 、 $W^6$ は、それぞれ互いに独立して、H、メチル、エチルからなる群から選択され、

$j$ 、 $k$ 、 $m$ 、 $q$ 、 $r$ 、 $s$ は、それぞれ互いに独立して、0～50の範囲からのいずれかの整数であり、

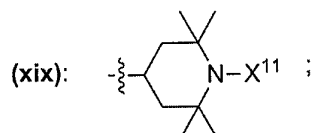
$X^{10}$ は、水素、 $-OH$ 、 $-O\cdot$ 、1～10個の炭素原子を有する非分枝鎖状もしくは分枝鎖状のアルキル基、1～10個の炭素原子を有する非分枝鎖状もしくは分枝鎖状のアルコキシ基からなる群から選択され、

前記化学構造 (xii)、(xiii)、(xiv)、(xv)、(xvi)、(xvii)、(xviii)において、炭素原子に結合された少なくとも1個の水素原子は、 $-OH$ 、 $-NH_2$ 、 $-OCH_3$ 、 $-OCH_2CH_3$ 、 $-NH(CH_3)$ 、 $-N(CH_3)_2$ 、 $-NH(CH_2CH_3)$ 、 $-N(CH_2CH_3)_2$ 、 $-N(CH_3)(CH_2CH_3)$ からなる群から選択されるいずれかの基によって置き換えられてよく、

30

但し、 $R^{21}$ および $R^{26}$ は、 $p^{17}=p^{18}=p^{19}=p^{20}=0$ の場合に、それぞれ互いに独立して、化学構造 (xix)

## 【化 11】



40

[前記化学構造において、

$X^{11}$ は、水素、 $OH$ 、 $-O\cdot$ 、1～10個の炭素原子を有する非分枝鎖状もしくは分枝鎖状のアルキル基、1～10個の炭素原子を有する非分枝鎖状もしくは分枝鎖状のアルコキシ基からなる群から選択される]の基であってもよいものとし、かつ

還元性条件は、前記少なくとも1種のトリアセトンアミン化合物 (I) とホルムアルデヒドとを、水素の存在下で、かつ担体触媒の存在下で反応させることによって調整され、前記担体触媒が、少なくとも1種の金属Mを有し、前記金属Mは、V、Cr、Mo、Mn、Ni、Pd、Pt、Fe、Ru、Os、Co、Rh、Ir、Cuからなる群から選択される、ことを特徴とする前記製造方法。

## 【0016】

50

1. 2 項目 1. 1 による方法であって、  
 $p^1 = p^2 = p^3 = p^4 = p^5 = p^6 = p^7 = p^8 = p^{11} = p^{12} = p^{13} = p^{14} = 0$  であり、かつ  $p^9$ 、 $p^{10}$ 、 $p^{15}$ 、 $p^{16}$ 、 $p^{17}$ 、 $p^{18}$ 、 $p^{19}$ 、 $p^{20}$  は、それぞれ互いに独立して、0 または 1 である、前記方法。

【0017】

1. 3 項目 1. 1 または 1. 2 に記載の方法であって、  
 $Y^1$ 、 $Y^2$ 、 $Y^3$ 、 $Y^4$ 、 $Y^5$ 、 $Y^6$ 、 $Y^7$ 、 $Y^8$ 、 $Y^9$ 、 $Y^{10}$  は、それぞれ互いに独立して、  
 1～30 個の炭素原子を有する非分枝鎖状もしくは分枝鎖状のアルキレン基、  
 3～30 個の炭素原子を有する二価の飽和炭化水素基であって、3～30 個の炭素原子からなる少なくとも 1 個の飽和環を有する前記二価の飽和炭化水素基、  
 からなる群から選択される、前記方法。

10

【0018】

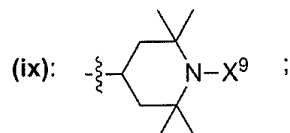
1. 4 項目 1. 1 から 1. 3 までの 1 つ以上による方法であって、  
 基  $R^1$ 、 $R^2$ 、 $R^3$ 、 $R^4$ 、 $R^5$ 、 $R^6$ 、 $R^9$ 、 $R^{10}$ 、 $R^{11}$ 、 $R^{12}$ 、 $R^{13}$ 、 $R^{14}$ 、 $R^{15}$ 、 $R^{16}$ 、 $R^{17}$ 、 $R^{18}$ 、 $R^{19}$ 、 $R^{20}$ 、 $R^{30}$  は、それぞれ互いに独立して、  
 水素、

1～30 個の炭素原子を有する非分枝鎖状もしくは分枝鎖状のアルキル基であって、少なくとも 1 個の水素基が  $-OH$ 、 $-NH_2$ 、 $-OCH_3$ 、 $-OCH_2CH_3$ 、 $-NH(CH_3)$ 、 $-N(CH_3)_2$ 、 $-NH(CH_2CH_3)$ 、 $-N(CH_2CH_3)_2$ 、 $-N(CH_3)(CH_2CH_3)$  からなる群から選択されるいずれかの基によって置き換えられていてよい前記アルキル基、

20

化学構造 (ix)

【化 12】



を有する基

からなる群から選択され、前記化学構造において、  
 $X^9$  は、水素、 $-OH$ 、 $-O\cdot$ 、1～10 個の炭素原子を有する非分枝鎖状もしくは分枝鎖状のアルキル基、1～10 個の炭素原子を有する非分枝鎖状もしくは分枝鎖状のアルコキシ基からなる群から選択され、  
 基  $R^7$ 、 $R^8$  は、それぞれ互いに独立して、  
 水素、

30

1～30 個の炭素原子を有する非分枝鎖状もしくは分枝鎖状のアルキル基であって、少なくとも 1 個の水素基が  $-OH$ 、 $-NH_2$ 、 $-OCH_3$ 、 $-OCH_2CH_3$ 、 $-NH(CH_3)$ 、 $-N(CH_3)_2$ 、 $-NH(CH_2CH_3)$ 、 $-N(CH_2CH_3)_2$ 、 $-N(CH_3)(CH_2CH_3)$  からなる群から選択されるいずれかの基によって置き換えられていてよい前記アルキル基

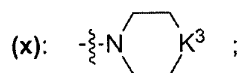
40

からなる群から選択され、

$p^9 = 1$  の場合に、 $-NR^3R^4$  は、化学構造 (x) の基であってもよく、  
 $p^{10} = 1$  の場合に、 $-NR^{11}R^{12}$  は、化学構造 (x) の基であってもよく、  
 基  $-NR^5R^6$ 、 $-NR^7R^8$ 、 $-NR^9R^{10}$  は、それぞれ互いに独立して、化学構造 (x) の基であってもよく、

化学構造 (x) は、以下に定義される通り：

【化 13】



50

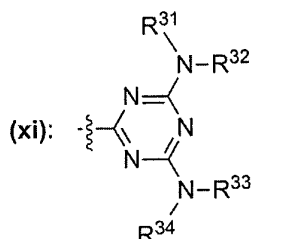
[前記化学構造において、  
 $K^3$ は、 $-O-$ 、 $-S-$ 、 $-NH-$ 、 $-N(CH_3)-$ 、 $-N(CH_2CH_3)-$ からなる群  
 から選択され、好ましくは $K^3$ は $-O-$ である]であり、  
 基 $R^{21}$ 、 $R^{22}$ 、 $R^{23}$ 、 $R^{24}$ 、 $R^{25}$ 、 $R^{26}$ は、それぞれ互いに独立して、

水素、

1～30個の炭素原子を有する非分枝鎖状もしくは分枝鎖状のアルキル基、

化学構造 (xi)

【化14】



10

を有する基

からなる群から選択され、前記化学構造において、

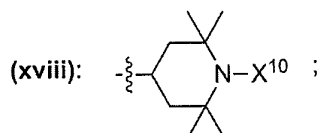
基 $R^{27}$ 、 $R^{28}$ 、 $R^{29}$ 、 $R^{31}$ 、 $R^{32}$ 、 $R^{33}$ 、 $R^{34}$ は、それぞれ互いに独立して、

水素、

1～30個の炭素原子を有する非分枝鎖状もしくは分枝鎖状のアルキル基であって、少  
 なくとも1個の水素基が $-OH$ 、 $-NH_2$ 、 $-OCH_3$ 、 $-OCH_2CH_3$ 、 $-NH(CH_3)$   
 $-N(CH_3)_2$ 、 $-NH(CH_2CH_3)$ 、 $-N(CH_2CH_3)_2$ 、 $-N(CH_3)(CH_2CH_3)$ からなる群から選択されるいずれかの基によって置き換えられていてよい前記  
 アルキル基、

化学構造 (xviii)

【化15】



30

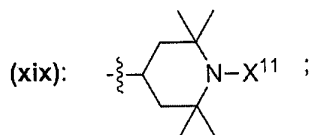
を有する基

からなる群から選択され、前記化学構造において、

$X^{10}$ は、水素、 $-OH$ 、 $-O\cdot$ 、1～10個の炭素原子を有する非分枝鎖状もしくは分枝  
 鎖状のアルキル基、1～10個の炭素原子を有する非分枝鎖状もしくは分枝鎖状のアルコ  
 キシ基からなる群から選択され、

但し、 $R^{21}$ および $R^{26}$ は、 $p^{17} = p^{18} = p^{19} = p^{20} = 0$ の場合に、それぞれ互いに独立し  
 て、化学構造 (xix)

【化16】



40

[前記化学構造において、

$X^{11}$ は、水素、 $OH$ 、 $-O\cdot$ 、1～10個の炭素原子を有する非分枝鎖状もしくは分枝鎖  
 状のアルキル基、1～10個の炭素原子を有する非分枝鎖状もしくは分枝鎖状のアルコ  
 シ基からなる群から選択される]の基であってもよいものとする、前記方法。

【0019】

50

1. 5 項目1. 1から1. 4までの1つ以上による方法であって、  
 $X^4 = X^5 = X^6 = X^7 = X^8 = X^9 = X^{10} = X^{11}$  = 水素である、前記方法。

【0020】

1. 6 項目1. 1から1. 5までの1つ以上の方法であって、  
前記トリアセトンアミン化合物 (I) は、化学構造 (I-A)、(I-B)、(I-C)、  
(I-D)、(I-E) からなる群から選択される、前記方法。

【0021】

1. 7 項目1. 1から1. 6までの1つ以上の方法であって、  
前記トリアセトンアミン化合物 (I) は、化学構造 (I-A)、(I-B)、(I-D)  
からなる群から選択され、

$Z^1$  は、 $-O-$ 、 $-S-$ 、 $-NR^{30}-$  からなる群から選択され、  
基  $R^1$ 、 $R^2$ 、 $R^{30}$  は、それぞれ互いに独立して、

水素、

1~30個の炭素原子を有する非分枝鎖状もしくは分枝鎖状のアルキル基であって、少なくとも1個の水素基が $-OH$ 、 $-NH_2$ 、 $-OCH_3$ 、 $-OCH_2CH_3$ 、 $-NH(CH_3)$ 、 $-N(CH_3)_2$ 、 $-NH(CH_2CH_3)$ 、 $-N(CH_2CH_3)_2$ 、 $-N(CH_3)(CH_2CH_3)$  からなる群から選択されるいずれかの基によって置き換えられていてよい前記アルキル基

からなる群から選択される、前記方法。

【0022】

1. 8 項目1. 1から1. 7までの1つ以上の方法であって、  
前記トリアセトンアミン化合物 (I) は、化学構造 (I-A)、(I-B)、(I-D)  
からなる群から選択され、

$Z^1$  は、 $-O-$ 、 $-NR^{30}-$  からなる群から選択され、  
基  $R^1$ 、 $R^2$ 、 $R^{30}$  は、それぞれ互いに独立して、

水素、

1~12個の炭素原子、有利には1~6個の炭素原子を有する非分枝鎖状もしくは分枝鎖状のアルキル基

からなる群から選択される、前記方法。

【0023】

1. 9 項目1. 1から1. 8までの1つ以上による方法であって、  
ホルムアルデヒドは、ガスとして、水溶液として、または固体として、有利には水溶液として、または固体として、更に有利には水溶液として使用される、前記方法。

【0024】

1. 10 項目1. 1から1. 9までの1つ以上による方法であって、  
前記少なくとも1種のアミン化合物 (I) とホルムアルデヒドとを還元性条件下で少なくとも1種の溶剤中で反応させ、前記溶剤は、脂肪族溶剤、芳香族溶剤、エーテル、ハロゲン化溶剤、アミド、チオ化合物、カルボン酸、アルコール、水からなる群から選択される、前記方法。

【0025】

1. 11 項目1. 1から1. 10までの1つ以上による方法であって、  
前記少なくとも1種のトリアセトンアミン化合物 (I) とホルムアルデヒドとを還元性条件下で20℃から350℃までの範囲の温度および2 barから500 barまでの範囲の圧力で反応させる、前記方法。

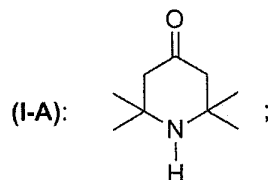
【0026】

本発明は、第二の態様においては、以下の項目2. 1~2. 4による方法に関する。

【0027】

2. 1 N-メチル置換されたトリアセトンアミン化合物の製造方法であって、  
トリアセトンアミン化合物 (I) とホルムアルデヒドとを還元性条件下で反応させ、  
前記トリアセトンアミン化合物 (I) は、化学構造 (I-A)

【化 17】



を有し、かつ還元性条件は、前記少なくとも 1 種のトリアセトンアミン化合物 (I) とホルムアルデヒドとを、水素の存在下で、かつ担体触媒の存在下で反応させることによって調整され、前記担体触媒が、少なくとも 1 種の金属 M を有し、前記金属 M は、V、Cr、Mo、Mn、Ni、Pd、Pt、Fe、Ru、Os、Co、Rh、Ir、Cu からなる群から選択される、ことを特徴とする前記製造方法。

10

【0028】

2. 2 項目 2. 1 による方法であって、ホルムアルデヒドは、ガスとして、水溶液として、または固体として、有利には水溶液として、または固体として、更に有利には水溶液として使用される、前記方法。

【0029】

2. 3 項目 2. 1 から 2. 2 までの 1 つ以上による方法であって、前記トリアセトンアミン化合物 (I) とホルムアルデヒドとを還元性条件下で少なくとも 1 種の溶剤中で反応させ、前記溶剤は、脂肪族溶剤、芳香族溶剤、エーテル、ハロゲン化溶剤、アミド、チオ化合物、カルボン酸、アルコール、水からなる群から選択される、前記方法。

20

【0030】

2. 4 項目 2. 1 から 2. 3 までの 1 つ以上による方法であって、前記トリアセトンアミン化合物 (I) とホルムアルデヒドとを還元性条件下で 20 °C から 350 °C までの範囲の温度および 2 bar から 500 bar までの範囲の圧力で反応させる、前記方法。

【0031】

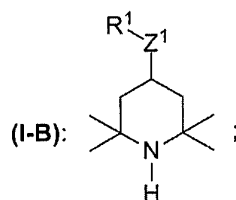
本発明は、第三の態様においては、以下の項目 3. 1 ~ 3. 8 による方法に関する。

【0032】

3. 1 N-メチル置換されたトリアセトンアミン化合物の製造方法であって、少なくとも 1 種のトリアセトンアミン化合物 (I) とホルムアルデヒドとを還元性条件下で反応させ、前記トリアセトンアミン化合物 (I) は、化学構造 (I-B)

30

【化 18】



40

を有し、前記化学構造において、Z<sup>1</sup>は、それぞれ互いに独立して、-O-、-S-、-NR<sup>30</sup>-からなる群から選択され、基 R<sup>1</sup>、R<sup>30</sup>は、それぞれ互いに独立して、水素、

1 ~ 30 個の炭素原子を有する非分枝鎖状もしくは分枝鎖状のアルキル基であって、少なくとも 1 個の水素基が -OH、-NH<sub>2</sub>、-OCH<sub>3</sub>、-OCH<sub>2</sub>CH<sub>3</sub>、-NH(CH<sub>3</sub>)、-N(CH<sub>3</sub>)<sub>2</sub>、-NH(CH<sub>2</sub>CH<sub>3</sub>)、-N(CH<sub>2</sub>CH<sub>3</sub>)<sub>2</sub>、-N(CH<sub>3</sub>)(CH<sub>2</sub>CH<sub>3</sub>) からなる群から選択されるいずれかの基によって置き換えられていてよい前記

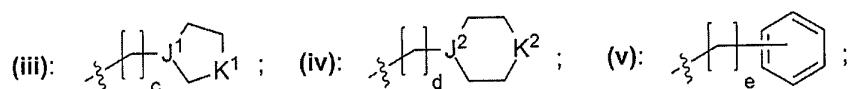
50

アルキル基、

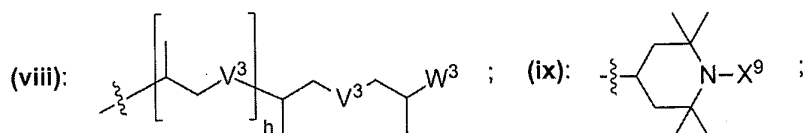
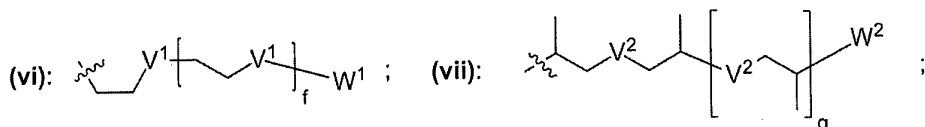
1～30個の炭素原子を有する非分枝鎖状もしくは分枝鎖状のアシル基であって、少なくとも1個の水素基が $-\text{OH}$ 、 $-\text{NH}_2$ 、 $-\text{OCH}_3$ 、 $-\text{OCH}_2\text{CH}_3$ 、 $-\text{NH}(\text{CH}_3)$ 、 $-\text{N}(\text{CH}_3)_2$ 、 $-\text{NH}(\text{CH}_2\text{CH}_3)$ 、 $-\text{N}(\text{CH}_2\text{CH}_3)_2$ 、 $-\text{N}(\text{CH}_3)(\text{CH}_2\text{CH}_3)$ からなる群から選択されるいずれかの基によって置き換えられていてよい前記アシル基、

(iii)、(iv)、(v)、(vi)、(vii)、(viii)、(ix)

【化19】



10



20

からなる群から選択されるいずれかの化学構造を有する基

からなる群から選択され、前記化学構造において、

$J^1$ 、 $J^2$ は、それぞれ互いに独立して、 $\text{CH}$ 、 $\text{N}$ からなる群から選択され、

$K^1$ 、 $K^2$ は、それぞれ互いに独立して、 $-\text{O}-$ 、 $-\text{NH}-$ 、 $-\text{N}(\text{CH}_3)-$ 、 $-\text{N}(\text{CH}_2\text{CH}_3)-$ 、 $-\text{S}-$ 、 $-\text{CH}_2-$ からなる群から選択され、

$V^1$ 、 $V^2$ 、 $V^3$ は、それぞれ互いに独立して、 $-\text{O}-$ 、 $-\text{S}-$ 、 $-\text{NH}-$ 、 $-\text{NR}''-$ からなる群から選択され、ここで $\text{R}''$ は、1～6個の炭素原子を有する非分枝鎖状もしくは分枝鎖状のアルキル基であり、

$W^1$ 、 $W^2$ 、 $W^3$ は、それぞれ互いに独立して、 $\text{H}$ 、メチル、エチルからなる群から選択され、

30

$c$ 、 $d$ 、 $e$ 、 $f$ 、 $g$ 、 $h$ は、それぞれ互いに独立して、0～50の範囲からのいずれかの整数であり、

$X^9$ は、水素、 $-\text{OH}$ 、 $-\text{O}\cdot$ 、1～10個の炭素原子を有する非分枝鎖状もしくは分枝鎖状のアルキル基、1～10個の炭素原子を有する非分枝鎖状もしくは分枝鎖状のアルコキシ基からなる群から選択され、

前記化学構造(iii)、(iv)、(v)、(vi)、(vii)、(viii)、(ix)において、炭素原子に結合された少なくとも1個の水素原子は、 $-\text{OH}$ 、 $-\text{NH}_2$ 、 $-\text{OCH}_3$ 、 $-\text{OCH}_2\text{CH}_3$ 、 $-\text{NH}(\text{CH}_3)$ 、 $-\text{N}(\text{CH}_3)_2$ 、 $-\text{NH}(\text{CH}_2\text{CH}_3)$ 、 $-\text{N}(\text{CH}_2\text{CH}_3)_2$ 、 $-\text{N}(\text{CH}_3)(\text{CH}_2\text{CH}_3)$ からなる群から選択されるいずれかの基によって置き換えられていてよく、かつ

40

還元性条件は、前記少なくとも1種のトリアセトンアミン化合物(I)とホルムアルデヒドとを、水素の存在下で、かつ担体触媒の存在下で反応させることによって調整され、前記担体触媒が、少なくとも1種の金属 $\text{M}$ を有し、前記金属 $\text{M}$ は、 $\text{V}$ 、 $\text{Cr}$ 、 $\text{Mo}$ 、 $\text{Mn}$ 、 $\text{Ni}$ 、 $\text{Pd}$ 、 $\text{Pt}$ 、 $\text{Fe}$ 、 $\text{Ru}$ 、 $\text{Os}$ 、 $\text{Co}$ 、 $\text{Rh}$ 、 $\text{Ir}$ 、 $\text{Cu}$ からなる群から選択される、ことを特徴とする前記製造方法。

【0033】

3.2 項目3.1による方法であって、

基 $\text{R}^1$ 、 $\text{R}^{30}$ は、それぞれ互いに独立して、

水素、

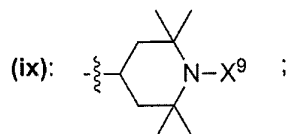
1～30個の炭素原子を有する非分枝鎖状もしくは分枝鎖状のアルキル基であって、少

50

なくとも 1 個の水素基が  $-\text{OH}$ 、 $-\text{NH}_2$ 、 $-\text{OCH}_3$ 、 $-\text{OCH}_2\text{CH}_3$ 、 $-\text{NH}(\text{CH}_3)$ 、 $-\text{N}(\text{CH}_3)_2$ 、 $-\text{NH}(\text{CH}_2\text{CH}_3)$ 、 $-\text{N}(\text{CH}_2\text{CH}_3)_2$ 、 $-\text{N}(\text{CH}_3)(\text{CH}_2\text{CH}_3)$  からなる群から選択されるいずれかの基によって置き換えられていてよい前記アルキル基、

化学構造 (ix)

【化 20】



10

を有する基

からなる群から選択され、前記化学構造において、

$\text{X}^9$  は、水素、 $-\text{OH}$ 、 $-\text{O}\cdot$ 、1～10 個の炭素原子を有する非分枝鎖状もしくは分枝鎖状のアルキル基、1～10 個の炭素原子を有する非分枝鎖状もしくは分枝鎖状のアルコキシ基からなる群から選択される、前記方法。

【0034】

3. 3 項目 3. 1 または 3. 2 による方法であって、 $\text{X}^9$  = 水素である、前記方法。

【0035】

3. 4 項目 3. 1 から 3. 3 までの 1 つ以上の方法であって、基  $\text{R}^1$ 、 $\text{R}^{30}$  は、それぞれ互いに独立して、

水素、

1～30 個の炭素原子を有する非分枝鎖状もしくは分枝鎖状のアルキル基であって、少なくとも 1 個の水素基が  $-\text{OH}$ 、 $-\text{NH}_2$ 、 $-\text{OCH}_3$ 、 $-\text{OCH}_2\text{CH}_3$ 、 $-\text{NH}(\text{CH}_3)$ 、 $-\text{N}(\text{CH}_3)_2$ 、 $-\text{NH}(\text{CH}_2\text{CH}_3)$ 、 $-\text{N}(\text{CH}_2\text{CH}_3)_2$ 、 $-\text{N}(\text{CH}_3)(\text{CH}_2\text{CH}_3)$  からなる群から選択されるいずれかの基によって置き換えられていてよい前記アルキル基

からなる群から選択される、前記方法。

【0036】

3. 5 項目 3. 1 から 3. 4 までの 1 つ以上の方法であって、 $\text{Z}^1$  は、 $-\text{O}-$ 、 $-\text{NR}^{30}-$  からなる群から選択され、基  $\text{R}^1$ 、 $\text{R}^{30}$  は、それぞれ互いに独立して、

水素、

1～12 個の、有利には 1～6 個の炭素原子を有する非分枝鎖状もしくは分枝鎖状のアルキル基

からなる群から選択される、前記方法。

【0037】

3. 6 項目 3. 1 から 3. 5 までの 1 つ以上による方法であって、

ホルムアルデヒドは、ガスとして、水溶液として、または固体として、有利には水溶液として、または固体として、更に有利には水溶液として使用される、前記方法。

【0038】

3. 7 項目 3. 1 から 3. 6 までの 1 つ以上による方法であって、

前記少なくとも 1 種のトリアセトンアミン化合物 (I) とホルムアルデヒドとを還元性条件下で少なくとも 1 種の溶剤中で反応させ、前記溶剤は、脂肪族溶剤、芳香族溶剤、エーテル、ハロゲン化溶剤、アミド、チオ化合物、カルボン酸、アルコール、水からなる群から選択される、前記方法。

【0039】

3. 8 項目 3. 1 から 3. 7 までの 1 つ以上による方法であって、

前記少なくとも 1 種のトリアセトンアミン化合物 (I) とホルムアルデヒドとを還元性条

50

件下で 20℃ から 350℃ までの範囲の温度および 2 bar から 500 bar までの範囲の圧力で反応させる、前記方法。

【0040】

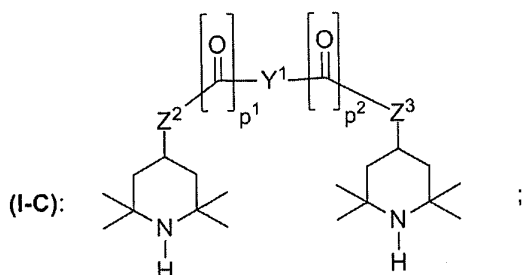
本発明は、第四の態様においては、以下の項目 4. 1 ~ 4. 10 による方法に関する。

【0041】

4. 1 N-メチル置換されたトリアセトンアミン化合物の製造方法であって、少なくとも 1 種のトリアセトンアミン化合物 (I) とホルムアルデヒドとを還元性条件下で反応させ、

前記トリアセトンアミン化合物 (I) は、化学構造 (I-C)

【化 2 1】



を有し、前記化学構造において、

$p^1$ 、 $p^2$  は、それぞれ互いに独立して、0 または 1 であり、

$Y^1$  は、

1 ~ 30 個の炭素原子を有する非分枝鎖状もしくは分枝鎖状のアルキレン基、

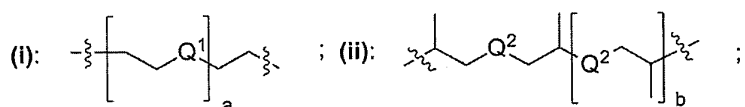
3 ~ 30 個の炭素原子を有する二価の飽和炭化水素基であって、3 ~ 30 個の炭素原子からなる少なくとも 1 個の飽和環を有する前記二価の飽和炭化水素基、

6 ~ 30 個の炭素原子を有する二価の炭化水素基であって、そのうち少なくとも 6 個の炭素原子が芳香族系中に存在し、その他の炭素原子は、存在する場合は飽和である前記二価の炭化水素基、

橋かけ基

からなる群から選択され、前記橋かけ基は、(i)、(ii)

【化 2 2】



からなる群から選択されるいずれかの化学構造を有し、前記化学構造において、

$Q^1$ 、 $Q^2$  は、それぞれ互いに独立して、-O-、-S-、-NH- または -NR'- からなる群から選択され、ここで R' は、1 ~ 6 個の炭素原子を有する非分枝鎖状もしくは分枝鎖状のアルキル基であり、

a は、1 ~ 50 の範囲から選択されるいずれかの整数であり、

b は、0 ~ 50 の範囲から選択されるいずれかの整数であり、

$Y^1$  は、 $p^1$  および  $p^2$  の少なくとも 1 つが値 1 を有する場合に、直接的な結合であってもよく、

$Z^2$ 、 $Z^3$  は、それぞれ互いに独立して、-O-、-S-、-NR<sup>30</sup>- からなる群から選択され、

基 R<sup>30</sup> は、

水素、

1 ~ 30 個の炭素原子を有する非分枝鎖状もしくは分枝鎖状のアルキル基であって、少なくとも 1 個の水素基が -OH、-NH<sub>2</sub>、-OCH<sub>3</sub>、-OCH<sub>2</sub>CH<sub>3</sub>、-NH(CH<sub>3</sub>)、-N(CH<sub>3</sub>)<sub>2</sub>、-NH(CH<sub>2</sub>CH<sub>3</sub>)、-N(CH<sub>2</sub>CH<sub>3</sub>)<sub>2</sub>、-N(CH<sub>3</sub>)(CH<sub>2</sub>CH<sub>3</sub>) からなる群から選択されるいずれかの基によって置き換えられていてよい前記

10

20

30

40

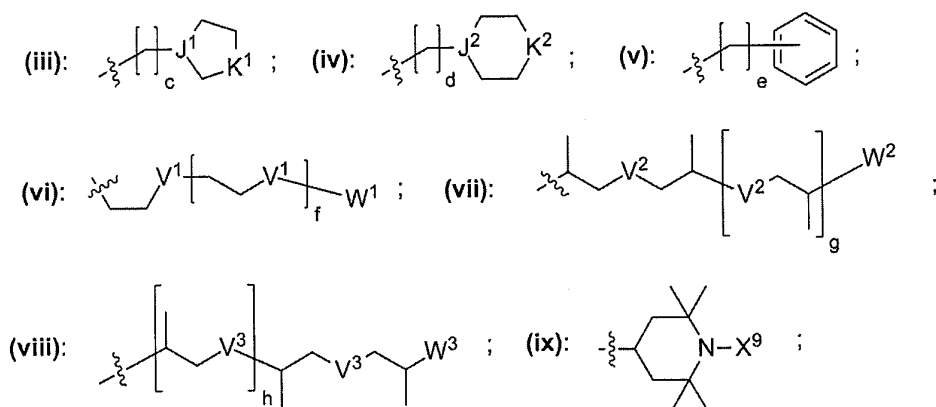
50

アルキル基、

1～30個の炭素原子を有する非分枝鎖状もしくは分枝鎖状のアシル基であって、少なくとも1個の水素基が $-\text{OH}$ 、 $-\text{NH}_2$ 、 $-\text{OCH}_3$ 、 $-\text{OCH}_2\text{CH}_3$ 、 $-\text{NH}(\text{CH}_3)$ 、 $-\text{N}(\text{CH}_3)_2$ 、 $-\text{NH}(\text{CH}_2\text{CH}_3)$ 、 $-\text{N}(\text{CH}_2\text{CH}_3)_2$ 、 $-\text{N}(\text{CH}_3)(\text{CH}_2\text{CH}_3)$ からなる群から選択されるいずれかの基によって置き換えられていてよい前記アシル基、

(iii)、(iv)、(v)、(vi)、(vii)、(viii)、(ix)

【化23】



からなる群から選択されるいずれかの化学構造を有する基

からなる群から選択され、前記化学構造において、

$J^1$ 、 $J^2$ は、それぞれ互いに独立して、 $\text{CH}$ 、 $\text{N}$ からなる群から選択され、

$K^1$ 、 $K^2$ は、それぞれ互いに独立して、 $-\text{O}-$ 、 $-\text{NH}-$ 、 $-\text{N}(\text{CH}_3)-$ 、 $-\text{N}(\text{CH}_2\text{CH}_3)-$ 、 $-\text{S}-$ 、 $-\text{CH}_2-$ からなる群から選択され、

$V^1$ 、 $V^2$ 、 $V^3$ は、それぞれ互いに独立して、 $-\text{O}-$ 、 $-\text{S}-$ 、 $-\text{NH}-$ 、 $-\text{NR}''-$ からなる群から選択され、ここで $\text{R}''$ は、1～6個の炭素原子を有する非分枝鎖状もしくは分枝鎖状のアルキル基であり、

$W^1$ 、 $W^2$ 、 $W^3$ は、それぞれ互いに独立して、 $\text{H}$ 、メチル、エチルからなる群から選択され、

$c$ 、 $d$ 、 $e$ 、 $f$ 、 $g$ 、 $h$ は、それぞれ互いに独立して、0～50の範囲からのいずれかの整数であり、

$X^9$ は、水素、 $-\text{OH}$ 、 $-\text{O}\cdot$ 、1～10個の炭素原子を有する非分枝鎖状もしくは分枝鎖状のアルキル基、1～10個の炭素原子を有する非分枝鎖状もしくは分枝鎖状のアルコキシ基からなる群から選択され、

前記化学構造(iii)、(iv)、(v)、(vi)、(vii)、(viii)、(ix)において、炭素原子に結合された少なくとも1個の水素原子は、 $-\text{OH}$ 、 $-\text{NH}_2$ 、 $-\text{OCH}_3$ 、 $-\text{OCH}_2\text{CH}_3$ 、 $-\text{NH}(\text{CH}_3)$ 、 $-\text{N}(\text{CH}_3)_2$ 、 $-\text{NH}(\text{CH}_2\text{CH}_3)$ 、 $-\text{N}(\text{CH}_2\text{CH}_3)_2$ 、 $-\text{N}(\text{CH}_3)(\text{CH}_2\text{CH}_3)$ からなる群から選択されるいずれかの基によって置き換えられていてよく、かつ

還元性条件は、前記少なくとも1種のトリアセトンアミン化合物(I)とホルムアルデヒドとを、水素の存在下で、かつ担体触媒の存在下で反応させることによって調整され、前記担体触媒が、少なくとも1種の金属 $\text{M}$ を有し、前記金属 $\text{M}$ は、 $\text{V}$ 、 $\text{Cr}$ 、 $\text{Mo}$ 、 $\text{Mn}$ 、 $\text{Ni}$ 、 $\text{Pd}$ 、 $\text{Pt}$ 、 $\text{Fe}$ 、 $\text{Ru}$ 、 $\text{Os}$ 、 $\text{Co}$ 、 $\text{Rh}$ 、 $\text{Ir}$ 、 $\text{Cu}$ からなる群から選択される、ことを特徴とする前記製造方法。

【0042】

4. 2 項目4. 1による方法であって、

$p^1 = p^2 = 0$ である、前記方法。

【0043】

4. 3 項目4. 1または4. 2に記載の方法であって、

Y<sup>1</sup>は、

1～30個の炭素原子を有する非分枝鎖状もしくは分枝鎖状のアルキレン基、

3～30個の炭素原子を有する二価の飽和炭化水素基であって、3～30個の炭素原子からなる少なくとも1個の飽和環を有する前記二価の飽和炭化水素基、  
からなる群から選択される、前記方法。

【0044】

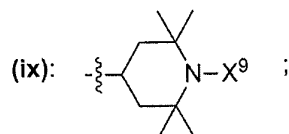
4. 4 項目4. 1から4. 3までの1つ以上による方法であって、  
基R<sup>30</sup>は、

水素、

1～30個の炭素原子を有する非分枝鎖状もしくは分枝鎖状のアルキル基であって、少なくとも1個の水素基が—OH、—NH<sub>2</sub>、—OCH<sub>3</sub>、—OCH<sub>2</sub>CH<sub>3</sub>、—NH(CH<sub>3</sub>)、—N(CH<sub>3</sub>)<sub>2</sub>、—NH(CH<sub>2</sub>CH<sub>3</sub>)、—N(CH<sub>2</sub>CH<sub>3</sub>)<sub>2</sub>、—N(CH<sub>3</sub>)(CH<sub>2</sub>CH<sub>3</sub>)からなる群から選択されるいずれかの基によって置き換えられていてよい前記アルキル基、

化学構造 (ix)

【化24】



を有する基

からなる群から選択され、前記化学構造において、

X<sup>9</sup>は、水素、—OH、—O・、1～10個の炭素原子を有する非分枝鎖状もしくは分枝鎖状のアルキル基、1～10個の炭素原子を有する非分枝鎖状もしくは分枝鎖状のアルコキシ基からなる群から選択される、前記方法。

【0045】

4. 5 項目4. 1から4. 4までの1つ以上による方法であって、  
X<sup>9</sup>=水素である、前記方法。

【0046】

4. 6 項目4. 1から4. 5までの1つ以上の方法であって、  
基R<sup>30</sup>は、

水素、

1～30個の炭素原子を有する非分枝鎖状もしくは分枝鎖状のアルキル基であって、少なくとも1個の水素基が—OH、—NH<sub>2</sub>、—OCH<sub>3</sub>、—OCH<sub>2</sub>CH<sub>3</sub>、—NH(CH<sub>3</sub>)、—N(CH<sub>3</sub>)<sub>2</sub>、—NH(CH<sub>2</sub>CH<sub>3</sub>)、—N(CH<sub>2</sub>CH<sub>3</sub>)<sub>2</sub>、—N(CH<sub>3</sub>)(CH<sub>2</sub>CH<sub>3</sub>)からなる群から選択されるいずれかの基によって置き換えられていてよい前記アルキル基

からなる群から選択される、前記方法。

【0047】

4. 7 項目4. 1から4. 6までの1つ以上の方法であって、  
基R<sup>30</sup>は、

水素、

1～12個の、有利には1～6個の炭素原子を有する非分枝鎖状もしくは分枝鎖状のアルキル基  
からなる群から選択される、前記方法。

【0048】

4. 8 項目4. 1から4. 7までの1つ以上による方法であって、

ホルムアルデヒドは、ガスとして、水溶液として、または固体として、有利には水溶液として、または固体として、更に有利には水溶液として使用される、前記方法。

## 【0049】

4. 9 項目4. 1から4. 8までの1つ以上による方法であって、前記少なくとも1種のトリアセトンアミン化合物(I)とホルムアルデヒドとを還元性条件下で少なくとも1種の溶剤中で反応させ、前記溶剤は、脂肪族溶剤、芳香族溶剤、エーテル、ハロゲン化溶剤、アミド、チオ化合物、カルボン酸、アルコール、水からなる群から選択される、前記方法。

## 【0050】

4. 10 項目4. 1から4. 9までの1つ以上による方法であって、前記少なくとも1種のトリアセトンアミン化合物(I)とホルムアルデヒドとを還元性条件下で20℃から350℃までの範囲の温度および2barから500barまでの範囲の圧力で反応させる、前記方法。

10

## 【0051】

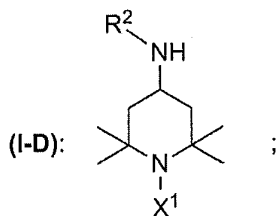
本発明は、第五の態様においては、以下の項目5. 1～5. 8による方法に関する。

## 【0052】

5. 1 N-メチル置換されたトリアセトンアミン化合物の製造方法であって、少なくとも1種のトリアセトンアミン化合物(I)とホルムアルデヒドとを還元性条件下で反応させ、

前記トリアセトンアミン化合物(I)は、化学構造(I-D)

## 【化25】



20

を有し、前記化学構造において、

X<sup>1</sup>は、OH、-O・、1～10個の炭素原子を有する非分枝鎖状もしくは分枝鎖状のアルキル基、1～10個の炭素原子を有する非分枝鎖状もしくは分枝鎖状のアルコキシ基からなる群から選択され、

30

基R<sup>2</sup>は、

水素、

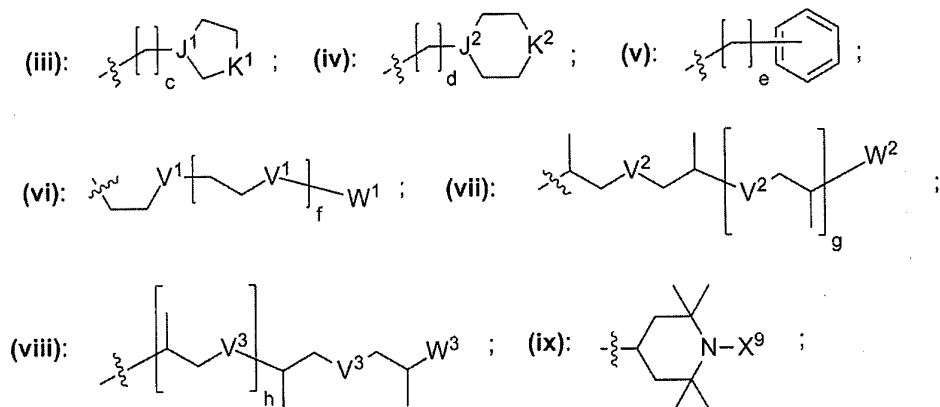
1～30個の炭素原子を有する非分枝鎖状もしくは分枝鎖状のアルキル基であって、少なくとも1個の水素基が-OH、-NH<sub>2</sub>、-OCH<sub>3</sub>、-OCH<sub>2</sub>CH<sub>3</sub>、-NH(CH<sub>3</sub>)、-N(CH<sub>3</sub>)<sub>2</sub>、-NH(CH<sub>2</sub>CH<sub>3</sub>)、-N(CH<sub>2</sub>CH<sub>3</sub>)<sub>2</sub>、-N(CH<sub>3</sub>)(CH<sub>2</sub>CH<sub>3</sub>)からなる群から選択されるいずれかの基によって置き換えられていてよい前記アルキル基、

1～30個の炭素原子を有する非分枝鎖状もしくは分枝鎖状のアシル基であって、少なくとも1個の水素基が-OH、-NH<sub>2</sub>、-OCH<sub>3</sub>、-OCH<sub>2</sub>CH<sub>3</sub>、-NH(CH<sub>3</sub>)、-N(CH<sub>3</sub>)<sub>2</sub>、-NH(CH<sub>2</sub>CH<sub>3</sub>)、-N(CH<sub>2</sub>CH<sub>3</sub>)<sub>2</sub>、-N(CH<sub>3</sub>)(CH<sub>2</sub>CH<sub>3</sub>)からなる群から選択されるいずれかの基によって置き換えられていてよい前記アシル基、

40

(iii)、(iv)、(v)、(vi)、(vii)、(viii)、(ix)

## 【化 2 6】



10

からなる群から選択されるいずれかの化学構造を有する基

からなる群から選択され、前記化学構造において、

$J^1$ 、 $J^2$ は、それぞれ互いに独立して、CH、Nからなる群から選択され、

$K^1$ 、 $K^2$ は、それぞれ互いに独立して、 $-O-$ 、 $-NH-$ 、 $-N(CH_3)-$ 、 $-N(CH_2CH_3)-$ 、 $-S-$ 、 $-CH_2-$ からなる群から選択され、

$V^1$ 、 $V^2$ 、 $V^3$ は、それぞれ互いに独立して、 $-O-$ 、 $-S-$ 、 $-NH-$ 、 $-NR''-$ からなる群から選択され、ここで $R''$ は、1～6個の炭素原子を有する非分枝鎖状もしくは分枝鎖状のアルキル基であり、

20

$W^1$ 、 $W^2$ 、 $W^3$ は、それぞれ互いに独立して、H、メチル、エチルからなる群から選択され、

c、d、e、f、g、hは、それぞれ互いに独立して、0～50の範囲からのいずれかの整数であり、

$X^9$ は、水素、 $-OH$ 、 $-O\cdot$ 、1～10個の炭素原子を有する非分枝鎖状もしくは分枝鎖状のアルキル基、1～10個の炭素原子を有する非分枝鎖状もしくは分枝鎖状のアルコキシ基からなる群から選択され、

前記化学構造 (iii)、(iv)、(v)、(vi)、(vii)、(viii)、(ix)において、炭素原子に結合された少なくとも1個の水素原子は、 $-OH$ 、 $-NH_2$ 、 $-OCH_3$ 、 $-OCH_2CH_3$ 、 $-NH(CH_3)$ 、 $-N(CH_3)_2$ 、 $-NH(CH_2CH_3)$ 、 $-N(CH_2CH_3)_2$ 、 $-N(CH_3)(CH_2CH_3)$ からなる群から選択されるいずれかの基によって置き換えられていてよく、かつ

30

還元性条件は、前記少なくとも1種のトリアセトンアミン化合物 (I) とホルムアルデヒドとを、水素の存在下で、かつ担体触媒の存在下で反応させることによって調整され、前記担体触媒が、少なくとも1種の金属Mを有し、前記金属Mは、V、Cr、Mo、Mn、Ni、Pd、Pt、Fe、Ru、Os、Co、Rh、Ir、Cuからなる群から選択される、ことを特徴とする前記製造方法。

## 【0053】

5. 2 項目5. 1による方法であって、  
基 $R^2$ は、

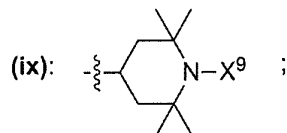
40

水素、

1～30個の炭素原子を有する非分枝鎖状もしくは分枝鎖状のアルキル基であって、少なくとも1個の水素基が $-OH$ 、 $-NH_2$ 、 $-OCH_3$ 、 $-OCH_2CH_3$ 、 $-NH(CH_3)$ 、 $-N(CH_3)_2$ 、 $-NH(CH_2CH_3)$ 、 $-N(CH_2CH_3)_2$ 、 $-N(CH_3)(CH_2CH_3)$ からなる群から選択されるいずれかの基によって置き換えられていてよい前記アルキル基、

化学構造 (ix)

## 【化 27】



を有する基

からなる群から選択され、前記化学構造において、

$X^9$ は、水素、 $-OH$ 、 $-O\cdot$ 、1～10個の炭素原子を有する非分枝鎖状もしくは分枝鎖状のアルキル基、1～10個の炭素原子を有する非分枝鎖状もしくは分枝鎖状のアルコキシ基からなる群から選択される、前記方法。

10

## 【0054】

5.3 項目5.1または5.2による方法であって、  
 $X^9$ =水素である、前記方法。

## 【0055】

5.4 項目5.1から5.3までの1つ以上の方法であって、  
基 $R^2$ は、

水素、

1～30個の炭素原子を有する非分枝鎖状もしくは分枝鎖状のアルキル基であって、少なくとも1個の水素基が $-OH$ 、 $-NH_2$ 、 $-OCH_3$ 、 $-OCH_2CH_3$ 、 $-NH(CH_3)$ 、 $-N(CH_3)_2$ 、 $-NH(CH_2CH_3)$ 、 $-N(CH_2CH_3)_2$ 、 $-N(CH_3)(CH_2CH_3)$ からなる群から選択されるいずれかの基によって置き換えられていてよい前記アルキル基

20

からなる群から選択される、前記方法。

## 【0056】

5.5 項目5.1から5.4までの1つ以上の方法であって、  
基 $R^2$ は、

水素、

1～12個の、有利には1～6個の炭素原子を有する非分枝鎖状もしくは分枝鎖状のアルキル基

30

からなる群から選択される、前記方法。

## 【0057】

5.6 項目5.1から5.5までの1つ以上による方法であって、  
ホルムアルデヒドは、ガスとして、水溶液として、または固体として、有利には水溶液として、または固体として、更に有利には水溶液として使用される、前記方法。

## 【0058】

5.7 項目5.1から5.6までの1つ以上による方法であって、  
前記少なくとも1種のトリアセトンアミン化合物(I)とホルムアルデヒドとを還元性条件下で少なくとも1種の溶剤中で反応させ、前記溶剤は、脂肪族溶剤、芳香族溶剤、エーテル、ハロゲン化溶剤、アミド、チオ化合物、カルボン酸、アルコール、水からなる群から選択される、前記方法。

40

## 【0059】

5.8 項目5.1から5.7までの1つ以上による方法であって、  
前記少なくとも1種のトリアセトンアミン化合物(I)とホルムアルデヒドとを還元性条件下で20℃から350℃までの範囲の温度および2 barから500 barまでの範囲の圧力で反応させる、前記方法。

## 【0060】

本発明は、第六の態様においては、以下の項目6.1～6.10による方法に関する。

## 【0061】

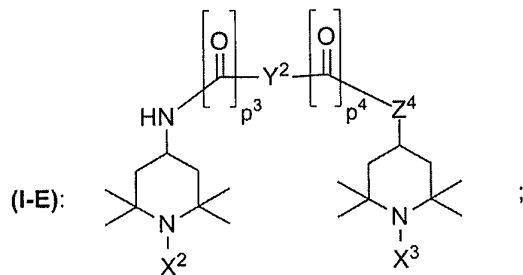
6.1 N-メチル置換されたトリアセトンアミン化合物の製造方法であって、

50

少なくとも1種のトリアセトンアミン化合物 (I) とホルムアルデヒドとを還元性条件下で反応させ、

前記トリアセトンアミン化合物 (I) は、化学構造 (I-E)

【化28】



10

を有し、前記化学構造において、

$p^3$ 、 $p^4$ は、それぞれ互いに独立して、0または1であり、

$X^2$ 、 $X^3$ は、水素、OH、 $-O\cdot$ 、1～10個の炭素原子を有する非分枝鎖状もしくは分枝鎖状のアルキル基、1～10個の炭素原子を有する非分枝鎖状もしくは分枝鎖状のアルコキシ基からなる群から選択され、かつ $X^2$ 、 $X^3$ は、 $X^2 = X^3 =$ 水素の場合を除き、それぞれ互いに独立して選択され、

$Y^2$ は、

1～30個の炭素原子を有する非分枝鎖状もしくは分枝鎖状のアルキレン基、

20

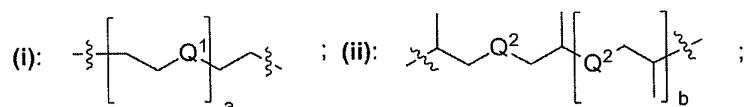
3～30個の炭素原子を有する二価の飽和炭化水素基であって、3～30個の炭素原子からなる少なくとも1個の飽和環を有する前記二価の飽和炭化水素基、

6～30個の炭素原子を有する二価の炭化水素基であって、そのうち少なくとも6個の炭素原子が芳香族系中に存在し、その他の炭素原子は、存在する場合は飽和である前記二価の炭化水素基、

橋かけ基

からなる群から選択され、前記橋かけ基は、(i)、(ii)

【化29】



30

からなる群から選択されるいずれかの化学構造を有し、前記化学構造において、

$Q^1$ 、 $Q^2$ は、それぞれ互いに独立して、 $-O-$ 、 $-S-$ 、 $-NH-$ または $-NR'-$ からなる群から選択され、ここで $R'$ は、1～6個の炭素原子を有する非分枝鎖状もしくは分枝鎖状のアルキル基であり、

$a$ は、1～50の範囲から選択されるいずれかの整数であり、

$b$ は、0～50の範囲から選択されるいずれかの整数であり、

$Y^2$ は、 $p^3$ および $p^4$ の少なくとも1つが値1を有する場合に、直接的な結合であってもよく、

40

$Z^4$ は、 $-O-$ 、 $-S-$ 、 $-NR^{30}-$ からなる群から選択され、

基 $R^{30}$ は、

水素、

1～30個の炭素原子を有する非分枝鎖状もしくは分枝鎖状のアルキル基であって、少なくとも1個の水素基が $-OH$ 、 $-NH_2$ 、 $-OCH_3$ 、 $-OCH_2CH_3$ 、 $-NH(CH_3)$ 、 $-N(CH_3)_2$ 、 $-NH(CH_2CH_3)$ 、 $-N(CH_2CH_3)_2$ 、 $-N(CH_3)(CH_2CH_3)$ からなる群から選択されるいずれかの基によって置き換えられていてよい前記アルキル基、

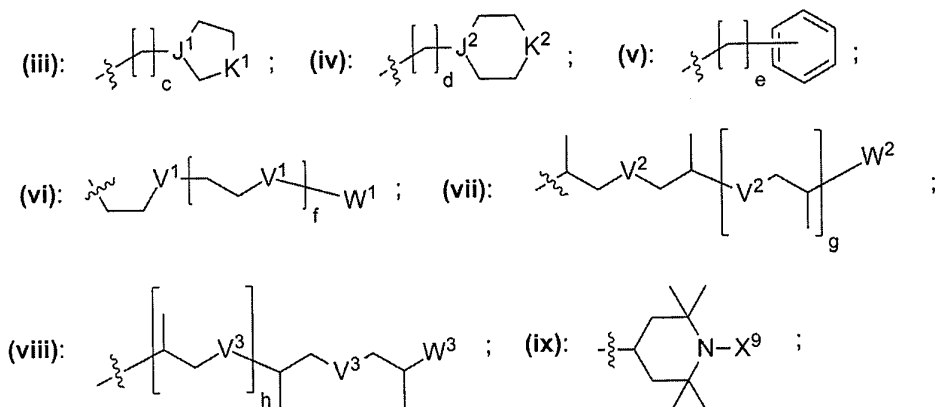
1～30個の炭素原子を有する非分枝鎖状もしくは分枝鎖状のアシル基であって、少なくとも1個の水素基が $-OH$ 、 $-NH_2$ 、 $-OCH_3$ 、 $-OCH_2CH_3$ 、 $-NH(CH_3)$

50

、 $-\text{N}(\text{CH}_3)_2$ 、 $-\text{NH}(\text{CH}_2\text{CH}_3)$ 、 $-\text{N}(\text{CH}_2\text{CH}_3)_2$ 、 $-\text{N}(\text{CH}_3)(\text{CH}_2\text{CH}_3)$  からなる群から選択されるいずれかの基によって置き換えられていてよい前記アシル基、

(iii)、(iv)、(v)、(vi)、(vii)、(viii)、(ix)

【化30】



10

からなる群から選択されるいずれかの化学構造を有する基

からなる群から選択され、前記化学構造において、

$\text{J}^1$ 、 $\text{J}^2$ は、それぞれ互いに独立して、 $\text{CH}$ 、 $\text{N}$ からなる群から選択され、

20

$\text{K}^1$ 、 $\text{K}^2$ は、それぞれ互いに独立して、 $-\text{O}-$ 、 $-\text{NH}-$ 、 $-\text{N}(\text{CH}_3)-$ 、 $-\text{N}(\text{CH}_2\text{CH}_3)-$ 、 $-\text{S}-$ 、 $-\text{CH}_2-$ からなる群から選択され、

$\text{V}^1$ 、 $\text{V}^2$ 、 $\text{V}^3$ は、それぞれ互いに独立して、 $-\text{O}-$ 、 $-\text{S}-$ 、 $-\text{NH}-$ 、 $-\text{NR}''-$ からなる群から選択され、ここで $\text{R}''$ は、1～6個の炭素原子を有する非分枝鎖状もしくは分枝鎖状のアルキル基であり、

$\text{W}^1$ 、 $\text{W}^2$ 、 $\text{W}^3$ は、それぞれ互いに独立して、 $\text{H}$ 、メチル、エチルからなる群から選択され、

$c$ 、 $d$ 、 $e$ 、 $f$ 、 $g$ 、 $h$ は、それぞれ互いに独立して、0～50の範囲からのいずれかの整数であり、

$\text{X}^9$ は、水素、 $-\text{OH}$ 、 $-\text{O}\cdot$ 、1～10個の炭素原子を有する非分枝鎖状もしくは分枝鎖状のアルキル基、1～10個の炭素原子を有する非分枝鎖状もしくは分枝鎖状のアルコキシ基からなる群から選択され、

30

前記化学構造(iii)、(iv)、(v)、(vi)、(vii)、(viii)、(ix)において、炭素原子に結合された少なくとも1個の水素原子は、 $-\text{OH}$ 、 $-\text{NH}_2$ 、 $-\text{OCH}_3$ 、 $-\text{OCH}_2\text{CH}_3$ 、 $-\text{NH}(\text{CH}_3)$ 、 $-\text{N}(\text{CH}_3)_2$ 、 $-\text{NH}(\text{CH}_2\text{CH}_3)$ 、 $-\text{N}(\text{CH}_2\text{CH}_3)_2$ 、 $-\text{N}(\text{CH}_3)(\text{CH}_2\text{CH}_3)$ からなる群から選択されるいずれかの基によって置き換えられていてよく、かつ

還元性条件は、前記少なくとも1種のトリアセトンアミン化合物(I)とホルムアルデヒドとを、水素の存在下で、かつ担体触媒の存在下で反応させることによって調整され、前記担体触媒が、少なくとも1種の金属 $\text{M}$ を有し、前記金属 $\text{M}$ は、 $\text{V}$ 、 $\text{Cr}$ 、 $\text{Mo}$ 、 $\text{Mn}$ 、 $\text{Ni}$ 、 $\text{Pd}$ 、 $\text{Pt}$ 、 $\text{Fe}$ 、 $\text{Ru}$ 、 $\text{Os}$ 、 $\text{Co}$ 、 $\text{Rh}$ 、 $\text{Ir}$ 、 $\text{Cu}$ からなる群から選択される、ことを特徴とする前記製造方法。

40

【0062】

6.2 項目6.1による方法であって、

$p^3 = p^4 = 0$ である、前記方法。

【0063】

6.3 項目6.1または6.2に記載の方法であって、

$\text{Y}^2$ は、

1～30個の炭素原子を有する非分枝鎖状もしくは分枝鎖状のアルキレン基、

3～30個の炭素原子を有する二価の飽和炭化水素基であって、3～30個の炭素原子

50

からなる少なくとも 1 個の飽和環を有する前記二価の飽和炭化水素基、  
からなる群から選択される、前記方法。

【0064】

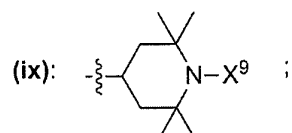
6. 4 項目 6. 1 から 6. 3 までの 1 つ以上による方法であって、  
基  $R^{30}$  は、

水素、

1 ~ 30 個の炭素原子を有する非分枝鎖状もしくは分枝鎖状のアルキル基であって、少  
なくとも 1 個の水素基が  $-OH$ 、 $-NH_2$ 、 $-OCH_3$ 、 $-OCH_2CH_3$ 、 $-NH(CH_3)$   
( $-N(CH_3)_2$ 、 $-NH(CH_2CH_3)$ 、 $-N(CH_2CH_3)_2$ 、 $-N(CH_3)(CH_2CH_3)$  からなる群から選択されるいずれかの基によって置き換えられていてよい前記  
アルキル基、

化学構造 (ix)

【化 31】



を有する基

からなる群から選択され、前記化学構造において、

$X^9$  は、水素、 $-OH$ 、 $-O\cdot$ 、1 ~ 10 個の炭素原子を有する非分枝鎖状もしくは分枝  
鎖状のアルキル基、1 ~ 10 個の炭素原子を有する非分枝鎖状もしくは分枝鎖状のアルコ  
キシ基からなる群から選択される、前記方法。

【0065】

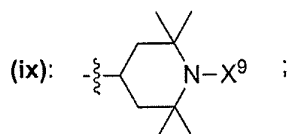
6. 5 項目 6. 1 から 6. 4 までの 1 つ以上による方法であって、  
基  $R^{30}$  は、

水素、

1 ~ 12 個の炭素原子を有する非分枝鎖状もしくは分枝鎖状のアルキル基、

化学構造 (ix)

【化 32】



を有する基

からなる群から選択され、前記化学構造において、

$X^9$  は、水素、 $-OH$ 、 $-O\cdot$ 、1 ~ 10 個の炭素原子を有する非分枝鎖状もしくは分枝  
鎖状のアルキル基、1 ~ 10 個の炭素原子を有する非分枝鎖状もしくは分枝鎖状のアルコ  
キシ基からなる群から選択される、前記方法。

【0066】

6. 6 項目 6. 1 から 6. 5 までの 1 つ以上の方法であって、

基  $R^{30}$  は、水素、1 ~ 6 個の炭素原子を有する非分枝鎖状もしくは分枝鎖状のアルキル基  
からなる群から選択される、前記方法。

【0067】

6. 7 項目 6. 1 から 6. 6 までの 1 つ以上による方法であって、  
 $X^9$  = 水素である、前記方法。

【0068】

6. 8 項目 6. 1 から 6. 7 までの 1 つ以上による方法であって、

ホルムアルデヒドは、ガスとして、水溶液として、または固体として、有利には水溶液と

10

20

30

40

50

して、または固体として、更に有利には水溶液として使用される、前記方法。

【0069】

6. 9 項目6. 1から6. 8までの1つ以上による方法であって、  
前記少なくとも1種のトリアセトンアミン化合物（I）とホルムアルデヒドとを還元性条件下で少なくとも1種の溶剤中で反応させ、前記溶剤は、脂肪族溶剤、芳香族溶剤、エーテル、ハロゲン化溶剤、アミド、チオ化合物、カルボン酸、アルコール、水からなる群から選択される、前記方法。

【0070】

6. 10 項目6. 1から6. 9までの1つ以上による方法であって、  
前記少なくとも1種のトリアセトンアミン化合物（I）とホルムアルデヒドとを還元性条件下で20℃から350℃までの範囲の温度および2barから500barまでの範囲の圧力で反応させる、前記方法。

【0071】

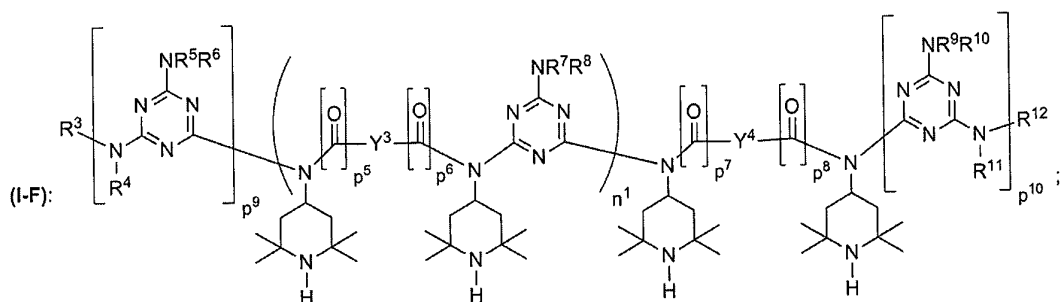
本発明は、第七の態様においては、以下の項目7. 1～7. 9による方法に関する。

【0072】

7. 1 N-メチル置換されたトリアセトンアミン化合物の製造方法であって、  
少なくとも1種のトリアセトンアミン化合物（I）とホルムアルデヒドとを還元性条件下で反応させ、

前記トリアセトンアミン化合物（I）は、化学構造（I-F）

【化33】



を有し、前記化学構造において、

$n^1$ は、1～20の範囲からのいずれかの整数であり、

$p^5$ 、 $p^6$ 、 $p^7$ 、 $p^8$ 、 $p^9$ 、 $p^{10}$ は、それぞれ互いに独立して、0または1であり、

$Y^3$ 、 $Y^4$ は、それぞれ互いに独立して、

1～30個の炭素原子を有する非分枝鎖状もしくは分枝鎖状のアルキレン基、

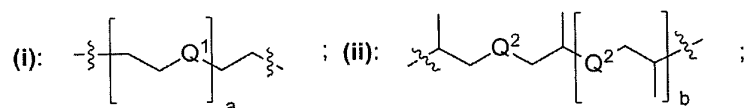
3～30個の炭素原子を有する二価の飽和炭化水素基であって、3～30個の炭素原子からなる少なくとも1個の飽和環を有する前記二価の飽和炭化水素基、

6～30個の炭素原子を有する二価の炭化水素基であって、そのうち少なくとも6個の炭素原子が芳香族系中に存在し、その他の炭素原子は、存在する場合は飽和である前記二価の炭化水素基、

橋かけ基

からなる群から選択され、前記橋かけ基は、(i)、(ii)

【化34】



からなる群から選択されるいずれかの化学構造を有し、前記化学構造において、

$Q^1$ 、 $Q^2$ は、それぞれ互いに独立して、 $-O-$ 、 $-S-$ 、 $-NH-$ または $-NR'-$ からなる群から選択され、ここで $R'$ は、1～6個の炭素原子を有する非分枝鎖状もしくは分枝鎖状のアルキル基であり、

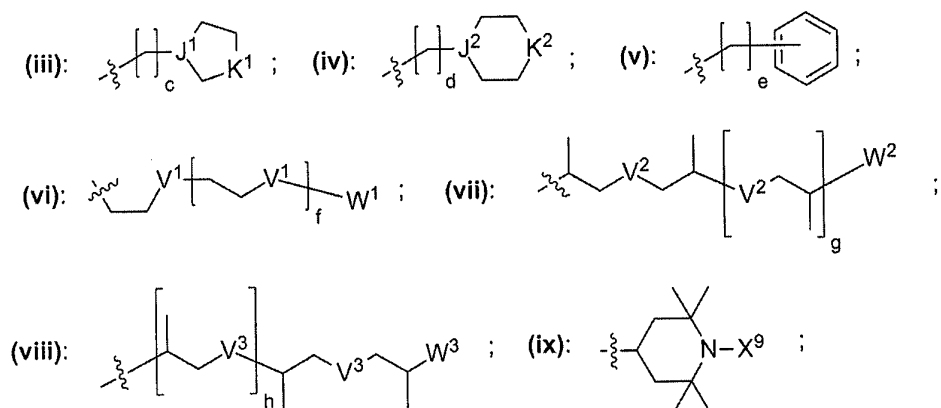
a は、1～50 の範囲から選択されるいずれかの整数であり、  
 b は、0～50 の範囲から選択されるいずれかの整数であり、  
 $Y^3$  は、 $p^5$  および  $p^6$  の少なくとも1つが値1を有する場合に、直接的な結合であってもよく、  
 $Y^4$  は、 $p^7$  および  $p^8$  の少なくとも1つが値1を有する場合に、直接的な結合であってもよく、  
 基  $R^3$ 、 $R^4$ 、 $R^5$ 、 $R^6$ 、 $R^9$ 、 $R^{10}$ 、 $R^{11}$ 、 $R^{12}$  は、それぞれ互いに独立して、  
 水素、

1～30個の炭素原子を有する非分枝鎖状もしくは分枝鎖状のアルキル基であって、少なくとも1個の水素基が $-OH$ 、 $-NH_2$ 、 $-OCH_3$ 、 $-OCH_2CH_3$ 、 $-NH(CH_3)$ 、 $-N(CH_3)_2$ 、 $-NH(CH_2CH_3)$ 、 $-N(CH_2CH_3)_2$ 、 $-N(CH_3)(CH_2CH_3)$  からなる群から選択されるいずれかの基によって置き換えられていてよい前記アルキル基、

1～30個の炭素原子を有する非分枝鎖状もしくは分枝鎖状のアシル基であって、少なくとも1個の水素基が $-OH$ 、 $-NH_2$ 、 $-OCH_3$ 、 $-OCH_2CH_3$ 、 $-NH(CH_3)$ 、 $-N(CH_3)_2$ 、 $-NH(CH_2CH_3)$ 、 $-N(CH_2CH_3)_2$ 、 $-N(CH_3)(CH_2CH_3)$  からなる群から選択されるいずれかの基によって置き換えられていてよい前記アシル基、

(iii)、(iv)、(v)、(vi)、(vii)、(viii)、(ix)

【化35】



からなる群から選択されるいずれかの化学構造を有する基

からなる群から選択され、前記化学構造において、

$J^1$ 、 $J^2$  は、それぞれ互いに独立して、CH、N からなる群から選択され、

$K^1$ 、 $K^2$  は、それぞれ互いに独立して、 $-O-$ 、 $-NH-$ 、 $-N(CH_3)-$ 、 $-N(CH_2CH_3)-$ 、 $-S-$ 、 $-CH_2-$  からなる群から選択され、

$V^1$ 、 $V^2$ 、 $V^3$  は、それぞれ互いに独立して、 $-O-$ 、 $-S-$ 、 $-NH-$ 、 $-NR''-$  からなる群から選択され、ここで  $R''$  は、1～6個の炭素原子を有する非分枝鎖状もしくは分枝鎖状のアルキル基であり、

$W^1$ 、 $W^2$ 、 $W^3$  は、それぞれ互いに独立して、H、メチル、エチルからなる群から選択され、

c、d、e、f、g、h は、それぞれ互いに独立して、0～50 の範囲からのいずれかの整数であり、

$X^9$  は、水素、 $-OH$ 、 $-O\cdot$ 、1～10個の炭素原子を有する非分枝鎖状もしくは分枝鎖状のアルキル基、1～10個の炭素原子を有する非分枝鎖状もしくは分枝鎖状のアルコキシ基からなる群から選択され、

前記化学構造 (iii)、(iv)、(v)、(vi)、(vii)、(viii)、(ix) において、炭素原子に結合された少なくとも1個の水素原子は、 $-OH$ 、 $-NH_2$ 、 $-OCH_3$ 、 $-OCH_2CH_3$ 、 $-NH(CH_3)$ 、 $-N(CH_3)_2$ 、 $-NH(CH_2CH_3)$

10

20

30

40

50

)、 $-\text{N}(\text{CH}_2\text{CH}_3)_2$ 、 $-\text{N}(\text{CH}_3)(\text{CH}_2\text{CH}_3)$  からなる群から選択されるいずれかの基によって置き換えられていてよく、

基 $\text{R}^7$ 、 $\text{R}^8$ は、それぞれ互いに独立して、

水素、

1～30個の炭素原子を有する非分枝鎖状もしくは分枝鎖状のアルキル基であって、少なくとも1個の水素基が $-\text{OH}$ 、 $-\text{NH}_2$ 、 $-\text{OCH}_3$ 、 $-\text{OCH}_2\text{CH}_3$ 、 $-\text{NH}(\text{CH}_3)$ 、 $-\text{N}(\text{CH}_3)_2$ 、 $-\text{NH}(\text{CH}_2\text{CH}_3)$ 、 $-\text{N}(\text{CH}_2\text{CH}_3)_2$ 、 $-\text{N}(\text{CH}_3)(\text{CH}_2\text{CH}_3)$  からなる群から選択されるいずれかの基によって置き換えられていてよい前記アルキル基、

1～30個の炭素原子を有する非分枝鎖状もしくは分枝鎖状のアシル基であって、少なくとも1個の水素基が $-\text{OH}$ 、 $-\text{NH}_2$ 、 $-\text{OCH}_3$ 、 $-\text{OCH}_2\text{CH}_3$ 、 $-\text{NH}(\text{CH}_3)$ 、 $-\text{N}(\text{CH}_3)_2$ 、 $-\text{NH}(\text{CH}_2\text{CH}_3)$ 、 $-\text{N}(\text{CH}_2\text{CH}_3)_2$ 、 $-\text{N}(\text{CH}_3)(\text{CH}_2\text{CH}_3)$  からなる群から選択されるいずれかの基によって置き換えられていてよい前記アシル基

からなる群から選択され、

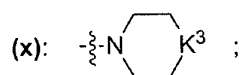
$p^9 = 1$  の場合に、 $-\text{NR}^3\text{R}^4$ は、化学構造(x)の基であってもよく、

$p^{10} = 1$  の場合に、 $-\text{NR}^{11}\text{R}^{12}$ は、化学構造(x)の基であってもよく、

基 $-\text{NR}^5\text{R}^6$ 、 $-\text{NR}^7\text{R}^8$ 、 $-\text{NR}^9\text{R}^{10}$ は、それぞれ互いに独立して、化学構造(x)の基であってもよく、

化学構造(x)は、以下に定義される通り：

【化36】



[前記化学構造において、

$\text{K}^3$ は、 $-\text{O}-$ 、 $-\text{S}-$ 、 $-\text{NH}-$ 、 $-\text{N}(\text{CH}_3)-$ 、 $-\text{N}(\text{CH}_2\text{CH}_3)-$ からなる群から選択され、好ましくは $\text{K}^3$ は $-\text{O}-$ である]であり、かつ

還元性条件は、前記少なくとも1種のトリアセトンアミン化合物(I)とホルムアルデヒドとを、水素の存在下で、かつ担体触媒の存在下で反応させることによって調整され、前記担体触媒が、少なくとも1種の金属Mを有し、前記金属Mは、V、Cr、Mo、Mn、Ni、Pd、Pt、Fe、Ru、Os、Co、Rh、Ir、Cuからなる群から選択される、ことを特徴とする前記製造方法。

【0073】

7.2 項目7.1による方法であって、

$p^5 = p^6 = p^7 = p^8 = 0$ であり、かつ $p^9$ 、 $p^{10}$ は、それぞれ互いに独立して、0または1であり、その際有利には $p^5 = p^6 = p^7 = p^8 = 0$ であり、かつ $p^9$ 、 $p^{10}$ の少なくとも1つは1であり(その際、論理的には、 $p^9$ 、 $p^{10}$ の一方だけが1である場合には、 $p^9$ 、 $p^{10}$ のもう一方は0である)、更に有利には $p^5 = p^6 = p^7 = p^8 = 0$ および $p^9 = p^{10} = 1$ である、前記方法。

【0074】

7.3 項目7.1または7.2に記載の方法であって、 $\text{Y}^3$ 、 $\text{Y}^4$ は、それぞれ互いに独立して、

1～30個の炭素原子を有する非分枝鎖状もしくは分枝鎖状のアルキレン基、

3～30個の炭素原子を有する二価の飽和炭化水素基であって、3～30個の炭素原子からなる少なくとも1個の飽和環を有する前記二価の飽和炭化水素基、からなる群から選択される、前記方法。

【0075】

7.4 項目7.1から7.3までの1つ以上による方法であって、

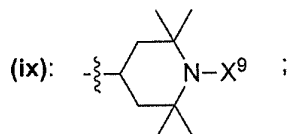
基 $\text{R}^3$ 、 $\text{R}^4$ 、 $\text{R}^5$ 、 $\text{R}^6$ 、 $\text{R}^9$ 、 $\text{R}^{10}$ 、 $\text{R}^{11}$ 、 $\text{R}^{12}$ は、それぞれ互いに独立して、

水素、

1～30個の炭素原子を有する非分枝鎖状もしくは分枝鎖状のアルキル基であって、少なくとも1個の水素基が $-\text{OH}$ 、 $-\text{NH}_2$ 、 $-\text{OCH}_3$ 、 $-\text{OCH}_2\text{CH}_3$ 、 $-\text{NH}(\text{CH}_3)$ 、 $-\text{N}(\text{CH}_3)_2$ 、 $-\text{NH}(\text{CH}_2\text{CH}_3)$ 、 $-\text{N}(\text{CH}_2\text{CH}_3)_2$ 、 $-\text{N}(\text{CH}_3)(\text{CH}_2\text{CH}_3)$ からなる群から選択されるいずれかの基によって置き換えられていてよい前記アルキル基、

化学構造 (ix)

【化37】



10

を有する基

からなる群から選択され、前記化学構造において、

$\text{X}^9$ は、水素、 $-\text{OH}$ 、 $-\text{O}\cdot$ 、1～10個の炭素原子を有する非分枝鎖状もしくは分枝鎖状のアルキル基、1～10個の炭素原子を有する非分枝鎖状もしくは分枝鎖状のアルコキシ基からなる群から選択され、

基 $\text{R}^7$ 、 $\text{R}^8$ は、それぞれ互いに独立して、

水素、

1～30個の炭素原子を有する非分枝鎖状もしくは分枝鎖状のアルキル基であって、少なくとも1個の水素基が $-\text{OH}$ 、 $-\text{NH}_2$ 、 $-\text{OCH}_3$ 、 $-\text{OCH}_2\text{CH}_3$ 、 $-\text{NH}(\text{CH}_3)$ 、 $-\text{N}(\text{CH}_3)_2$ 、 $-\text{NH}(\text{CH}_2\text{CH}_3)$ 、 $-\text{N}(\text{CH}_2\text{CH}_3)_2$ 、 $-\text{N}(\text{CH}_3)(\text{CH}_2\text{CH}_3)$ からなる群から選択されるいずれかの基によって置き換えられていてよい前記アルキル基

20

からなる群から選択され、

$p^9 = 1$ の場合に、 $-\text{NR}^3\text{R}^4$ は、化学構造 (x) の基であってもよく、

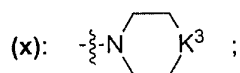
$p^{10} = 1$ の場合に、 $-\text{NR}^{11}\text{R}^{12}$ は、化学構造 (x) の基であってもよく、

基 $-\text{NR}^5\text{R}^6$ 、 $-\text{NR}^7\text{R}^8$ 、 $-\text{NR}^9\text{R}^{10}$ は、それぞれ互いに独立して、化学構造 (x) の基であってもよく、

化学構造 (x) は、以下に定義される通り：

30

【化38】



[前記化学構造において、

$\text{K}^3$ は、 $-\text{O}-$ 、 $-\text{S}-$ 、 $-\text{NH}-$ 、 $-\text{N}(\text{CH}_3)-$ 、 $-\text{N}(\text{CH}_2\text{CH}_3)-$ からなる群から選択され、好ましくは $\text{K}^3$ は $-\text{O}-$ である]である、前記方法。

【0076】

7.5 項目7.1から7.4までの1つ以上による方法であって、

基 $\text{R}^3$ 、 $\text{R}^4$ 、 $\text{R}^5$ 、 $\text{R}^6$ 、 $\text{R}^9$ 、 $\text{R}^{10}$ 、 $\text{R}^{11}$ 、 $\text{R}^{12}$ は、それぞれ互いに独立して、

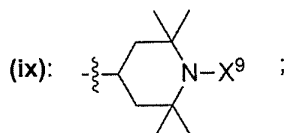
40

水素、

1～12個の炭素原子を有する非分枝鎖状もしくは分枝鎖状のアルキル基、

化学構造 (ix)

【化39】



を有する基

50

からなる群から選択され、前記化学構造において、  
 $X^9$ は、水素、 $-OH$ 、 $-O\cdot$ 、1～10個の炭素原子を有する非分枝鎖状もしくは分枝鎖状のアルキル基、1～10個の炭素原子を有する非分枝鎖状もしくは分枝鎖状のアルコキシ基からなる群から選択され、  
 基 $R^7$ 、 $R^8$ は、それぞれ互いに独立して、

水素、

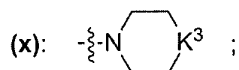
1～12個の、有利には1～6個の炭素原子を有する非分枝鎖状もしくは分枝鎖状のアルキル基

からなる群から選択され、

基 $-NR^7R^8$ は、化学構造 (x) :

10

【化40】



の基であってもよく、前記化学構造において、

$K^3 = -O-$ である、前記方法。

【0077】

7.6 項目7.1から7.5までの1つ以上による方法であって、  
 $X^9$  = 水素である、前記方法。

【0078】

20

7.7 項目7.1から7.6までの1つ以上による方法であって、  
 ホルムアルデヒドは、ガスとして、水溶液として、または固体として、有利には水溶液として、または固体として、更に有利には水溶液として使用される、前記方法。

【0079】

7.8 項目7.1から7.7までの1つ以上による方法であって、  
 前記少なくとも1種のトリアセトンアミン化合物(I)とホルムアルデヒドとを還元性条件下で少なくとも1種の溶剤中で反応させ、前記溶剤は、脂肪族溶剤、芳香族溶剤、エーテル、ハロゲン化溶剤、アミド、チオ化合物、カルボン酸、アルコール、水からなる群から選択される、前記方法。

【0080】

30

7.9 項目7.1から7.8までの1つ以上による方法であって、  
 前記少なくとも1種のトリアセトンアミン化合物(I)とホルムアルデヒドとを還元性条件下で20℃から350℃までの範囲の温度および2barから500barまでの範囲の圧力で反応させる、前記方法。

【0081】

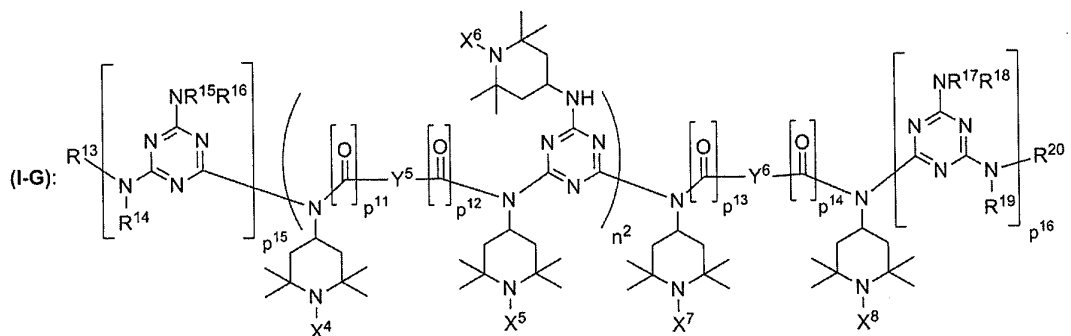
本発明は、第八の態様においては、以下の項目8.1～8.9による方法に関する。

【0082】

8.1 N-メチル置換されたトリアセトンアミン化合物の製造方法であって、  
 少なくとも1種のトリアセトンアミン化合物(I)とホルムアルデヒドとを還元性条件下で反応させ、  
 前記トリアセトンアミン化合物(I)は、化学構造(I-G)

40

## 【化 4 1】



10

を有し、前記化学構造において、

$n^2$ は、1～20の範囲からのいずれかの整数であり、

$p^{11}$ 、 $p^{12}$ 、 $p^{13}$ 、 $p^{14}$ 、 $p^{15}$ 、 $p^{16}$ は、それぞれ互いに独立して、0または1であり、

$X^4$ 、 $X^5$ 、 $X^6$ 、 $X^7$ 、 $X^8$ は、それぞれ互いに独立して、水素、OH、 $-O\cdot$ 、1～10個の炭素原子を有する非分枝鎖状もしくは分枝鎖状のアルキル基、1～10個の炭素原子を有する非分枝鎖状もしくは分枝鎖状のアルコキシ基からなる群から選択され、

$Y^5$ 、 $Y^6$ は、それぞれ互いに独立して、

1～30個の炭素原子を有する非分枝鎖状もしくは分枝鎖状のアルキレン基、

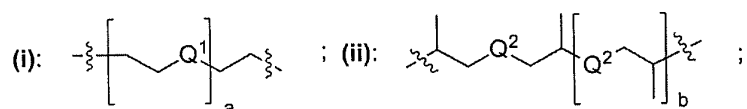
3～30個の炭素原子を有する二価の飽和炭化水素基であって、3～30個の炭素原子からなる少なくとも1個の飽和環を有する前記二価の飽和炭化水素基、

6～30個の炭素原子を有する二価の炭化水素基であって、そのうち少なくとも6個の炭素原子が芳香族系中に存在し、その他の炭素原子は、存在する場合は飽和である前記二価の炭化水素基、

橋かけ基

からなる群から選択され、前記橋かけ基は、(i)、(ii)

## 【化 4 2】



30

からなる群から選択されるいずれかの化学構造を有し、前記化学構造において、

$Q^1$ 、 $Q^2$ は、それぞれ互いに独立して、 $-O-$ 、 $-S-$ 、 $-NH-$ または $-NR'$ からなる群から選択され、ここで $R'$ は、1～6個の炭素原子を有する非分枝鎖状もしくは分枝鎖状のアルキル基であり、

$a$ は、1～50の範囲から選択されるいずれかの整数であり、

$b$ は、0～50の範囲から選択されるいずれかの整数であり、

$Y^5$ は、 $p^{11}$ および $p^{12}$ の少なくとも1つが値1を有する場合に、直接的な結合であってもよく、

$Y^6$ は、 $p^{13}$ および $p^{14}$ の少なくとも1つが値1を有する場合に、直接的な結合であってもよく、

基 $R^{13}$ 、 $R^{14}$ 、 $R^{15}$ 、 $R^{16}$ 、 $R^{17}$ 、 $R^{18}$ 、 $R^{19}$ 、 $R^{20}$ は、それぞれ互いに独立して、水素、

1～30個の炭素原子を有する非分枝鎖状もしくは分枝鎖状のアルキル基であって、少なくとも1個の水素基が $-OH$ 、 $-NH_2$ 、 $-OCH_3$ 、 $-OCH_2CH_3$ 、 $-NH(CH_3)$ 、 $-N(CH_3)_2$ 、 $-NH(CH_2CH_3)$ 、 $-N(CH_2CH_3)_2$ 、 $-N(CH_3)(CH_2CH_3)$ からなる群から選択されるいずれかの基によって置き換えられていてよい前記アルキル基、

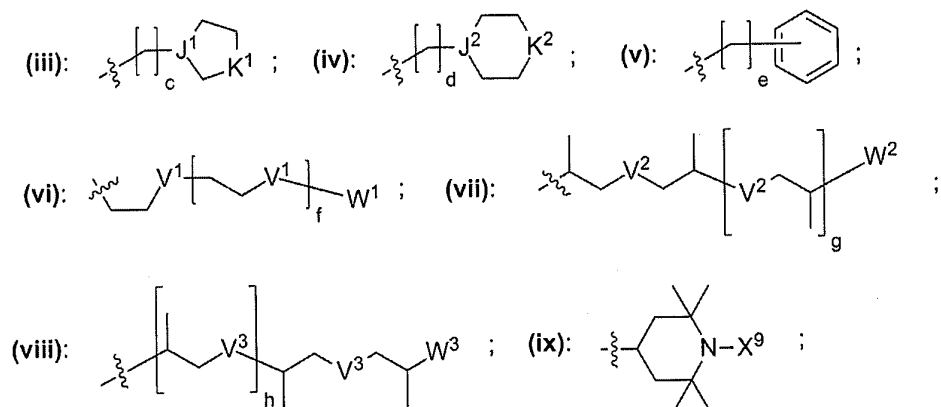
1～30個の炭素原子を有する非分枝鎖状もしくは分枝鎖状のアシル基であって、少なくとも1個の水素基が $-OH$ 、 $-NH_2$ 、 $-OCH_3$ 、 $-OCH_2CH_3$ 、 $-NH(CH_3)$

50

、 $-\text{N}(\text{CH}_3)_2$ 、 $-\text{NH}(\text{CH}_2\text{CH}_3)$ 、 $-\text{N}(\text{CH}_2\text{CH}_3)_2$ 、 $-\text{N}(\text{CH}_3)(\text{CH}_2\text{CH}_3)$  からなる群から選択されるいずれかの基によって置き換えられていてよい前記アシル基、

(iii)、(iv)、(v)、(vi)、(vii)、(viii)、(ix)

【化43】



10

からなる群から選択されるいずれかの化学構造を有する基

からなる群から選択され、前記化学構造において、

$J^1$ 、 $J^2$ は、それぞれ互いに独立して、 $\text{CH}$ 、 $\text{N}$ からなる群から選択され、

20

$K^1$ 、 $K^2$ は、それぞれ互いに独立して、 $-\text{O}-$ 、 $-\text{NH}-$ 、 $-\text{N}(\text{CH}_3)-$ 、 $-\text{N}(\text{CH}_2\text{CH}_3)-$ 、 $-\text{S}-$ 、 $-\text{CH}_2-$ からなる群から選択され、

$V^1$ 、 $V^2$ 、 $V^3$ は、それぞれ互いに独立して、 $-\text{O}-$ 、 $-\text{S}-$ 、 $-\text{NH}-$ 、 $-\text{NR}''-$ からなる群から選択され、ここで $\text{R}''$ は、1～6個の炭素原子を有する非分枝鎖状もしくは分枝鎖状のアルキル基であり、

$W^1$ 、 $W^2$ 、 $W^3$ は、それぞれ互いに独立して、 $\text{H}$ 、メチル、エチルからなる群から選択され、

$c$ 、 $d$ 、 $e$ 、 $f$ 、 $g$ 、 $h$ は、それぞれ互いに独立して、0～50の範囲からのいずれかの整数であり、

$X^9$ は、水素、 $-\text{OH}$ 、 $-\text{O}\cdot$ 、1～10個の炭素原子を有する非分枝鎖状もしくは分枝鎖状のアルキル基、1～10個の炭素原子を有する非分枝鎖状もしくは分枝鎖状のアルコキシ基からなる群から選択され、

30

前記化学構造(iii)、(iv)、(v)、(vi)、(vii)、(viii)、(ix)において、炭素原子に結合された少なくとも1個の水素原子は、 $-\text{OH}$ 、 $-\text{NH}_2$ 、 $-\text{OCH}_3$ 、 $-\text{OCH}_2\text{CH}_3$ 、 $-\text{NH}(\text{CH}_3)$ 、 $-\text{N}(\text{CH}_3)_2$ 、 $-\text{NH}(\text{CH}_2\text{CH}_3)$ 、 $-\text{N}(\text{CH}_2\text{CH}_3)_2$ 、 $-\text{N}(\text{CH}_3)(\text{CH}_2\text{CH}_3)$ からなる群から選択されるいずれかの基によって置き換えられていてよく、かつ

還元性条件は、前記少なくとも1種のトリアセトンアミン化合物(I)とホルムアルデヒドとを、水素の存在下で、かつ担体触媒の存在下で反応させることによって調整され、前記担体触媒が、少なくとも1種の金属 $M$ を有し、前記金属 $M$ は、 $\text{V}$ 、 $\text{Cr}$ 、 $\text{Mo}$ 、 $\text{Mn}$ 、 $\text{Ni}$ 、 $\text{Pd}$ 、 $\text{Pt}$ 、 $\text{Fe}$ 、 $\text{Ru}$ 、 $\text{Os}$ 、 $\text{Co}$ 、 $\text{Rh}$ 、 $\text{Ir}$ 、 $\text{Cu}$ からなる群から選択される、ことを特徴とする前記製造方法。

40

【0083】

8.2 項目8.1による方法であって、

$p^{11}=p^{12}=p^{13}=p^{14}=0$ であり、かつ $p^{15}$ 、 $p^{16}$ は、それぞれ互いに独立して、0または1である、前記方法。

【0084】

8.3 項目8.1または8.2に記載の方法であって、

$Y^5$ 、 $Y^6$ は、それぞれ互いに独立して、

1～30個の炭素原子を有する非分枝鎖状もしくは分枝鎖状のアルキレン基、

50

3～30個の炭素原子を有する二価の飽和炭化水素基であって、3～30個の炭素原子からなる少なくとも1個の飽和環を有する前記二価の飽和炭化水素基、  
からなる群から選択される、前記方法。

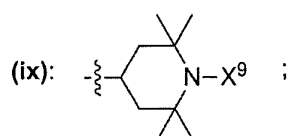
【0085】

8.4 項目8.1から8.3までの1つ以上による方法であって、  
基 $R^{13}$ 、 $R^{14}$ 、 $R^{15}$ 、 $R^{16}$ 、 $R^{17}$ 、 $R^{18}$ 、 $R^{19}$ 、 $R^{20}$ は、それぞれ互いに独立して、  
水素、

1～30個の炭素原子を有する非分枝鎖状もしくは分枝鎖状のアルキル基であって、少なくとも1個の水素基が $-OH$ 、 $-NH_2$ 、 $-OCH_3$ 、 $-OCH_2CH_3$ 、 $-NH(CH_3)$ 、 $-N(CH_3)_2$ 、 $-NH(CH_2CH_3)$ 、 $-N(CH_2CH_3)_2$ 、 $-N(CH_3)(CH_2CH_3)$ からなる群から選択されるいずれかの基によって置き換えられていてよい前記アルキル基、

化学構造 (ix)

【化44】



を有する基

からなる群から選択され、前記化学構造において、

$X^9$ は、水素、 $-OH$ 、 $-O\cdot$ 、1～10個の炭素原子を有する非分枝鎖状もしくは分枝鎖状のアルキル基、1～10個の炭素原子を有する非分枝鎖状もしくは分枝鎖状のアルコキシ基からなる群から選択される、前記方法。

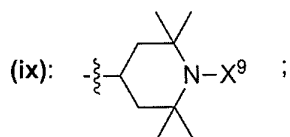
【0086】

8.5 項目8.1から8.4までの1つ以上による方法であって、  
基 $R^{13}$ 、 $R^{14}$ 、 $R^{15}$ 、 $R^{16}$ 、 $R^{17}$ 、 $R^{18}$ 、 $R^{19}$ 、 $R^{20}$ は、それぞれ互いに独立して、  
水素、

1～12個の、有利には1～6個の炭素原子を有する非分枝鎖状もしくは分枝鎖状のアルキル基、

化学構造 (ix)

【化45】



を有する基

からなる群から選択され、前記化学構造において、

$X^9$ は、水素、 $-OH$ 、 $-O\cdot$ 、1～10個の炭素原子を有する非分枝鎖状もしくは分枝鎖状のアルキル基、1～10個の炭素原子を有する非分枝鎖状もしくは分枝鎖状のアルコキシ基からなる群から選択される、前記方法。

【0087】

8.6 項目8.1から8.5までの1つ以上による方法であって、  
 $X^4 = X^5 = X^6 = X^7 = X^8 = X^9$  = 水素である、前記方法。

【0088】

8.7 項目8.1から8.6までの1つ以上による方法であって、  
ホルムアルデヒドは、ガスとして、水溶液として、または固体として、有利には水溶液として、または固体として、更に有利には水溶液として使用される、前記方法。

【0089】

10

20

30

40

50

8. 8 項目8. 1から8. 7までの1つ以上による方法であって、  
前記少なくとも1種のトリアセトンアミン化合物（I）とホルムアルデヒドとを還元性条件下で少なくとも1種の溶剤中で反応させ、前記溶剤は、脂肪族溶剤、芳香族溶剤、エーテル、ハロゲン化溶剤、アミド、チオ化合物、カルボン酸、アルコール、水からなる群から選択される、前記方法。

【0090】

8. 9 項目8. 1から8. 8までの1つ以上による方法であって、  
前記少なくとも1種のトリアセトンアミン化合物（I）とホルムアルデヒドとを還元性条件下で20℃から350℃までの範囲の温度および2barから500barまでの範囲の圧力で反応させる、前記方法。

10

【0091】

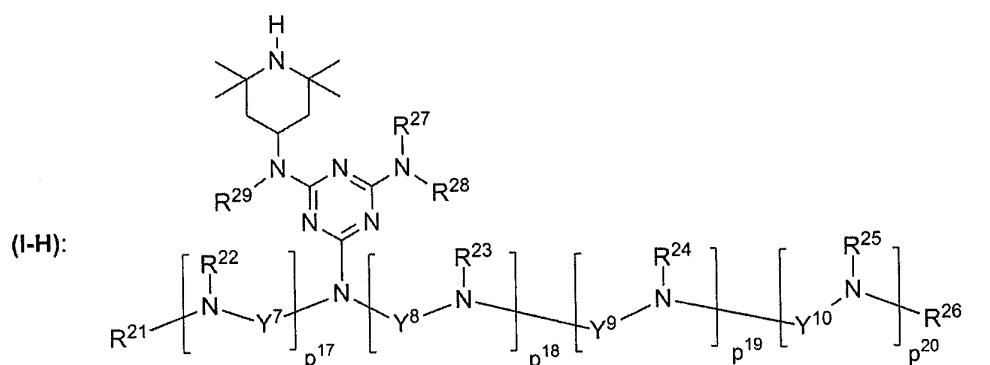
本発明は、第九の態様においては、以下の項目9. 1～9. 8による方法に関する。

【0092】

9. 1 N-メチル置換されたトリアセトンアミン化合物の製造方法であって、  
少なくとも1種のトリアセトンアミン化合物（I）とホルムアルデヒドとを還元性条件下で反応させ、

前記トリアセトンアミン化合物（I）は、化学構造（I-H）

【化46】



20

を有し、前記化学構造において、

$p^{17}$ 、 $p^{18}$ 、 $p^{19}$ 、 $p^{20}$ は、それぞれ互いに独立して、0または1であり、

30

$Y^7$ 、 $Y^8$ 、 $Y^9$ 、 $Y^{10}$ は、それぞれ互いに独立して、

1～30個の炭素原子を有する非分枝鎖状もしくは分枝鎖状のアルキレン基、

3～30個の炭素原子を有する二価の飽和炭化水素基であって、3～30個の炭素原子からなる少なくとも1個の飽和環を有する前記二価の飽和炭化水素基、

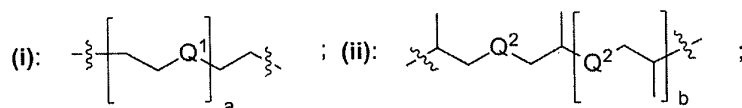
6～30個の炭素原子を有する二価の炭化水素基であって、そのうち少なくとも6個の炭素原子が芳香族系中に存在し、その他の炭素原子は、存在する場合は飽和である前記二価の炭化水素基、

橋かけ基

からなる群から選択され、前記橋かけ基は、(i)、(ii)

【化47】

40



からなる群から選択されるいずれかの化学構造を有し、前記化学構造において、

$Q^1$ 、 $Q^2$ は、それぞれ互いに独立して、 $-\text{O}-$ 、 $-\text{S}-$ 、 $-\text{NH}-$ または $-\text{NR}'-$ からなる群から選択され、ここで $R'$ は、1～6個の炭素原子を有する非分枝鎖状もしくは分枝鎖状のアルキル基であり、

$a$ は、1～50の範囲から選択されるいずれかの整数であり、

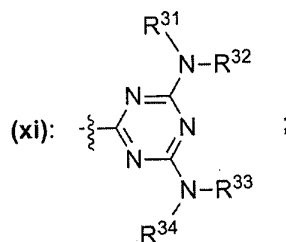
$b$ は、0～50の範囲から選択されるいずれかの整数であり、

50

基  $R^{21}$ 、 $R^{22}$ 、 $R^{23}$ 、 $R^{24}$ 、 $R^{25}$ 、 $R^{26}$  は、それぞれ互いに独立して、  
水素、

1～30個の炭素原子を有する非分枝鎖状もしくは分枝鎖状のアルキル基、  
化学構造 (xi)

【化48】



10

を有する基

からなる群から選択され、前記化学構造において、

基  $R^{27}$ 、 $R^{28}$ 、 $R^{29}$ 、 $R^{31}$ 、 $R^{32}$ 、 $R^{33}$ 、 $R^{34}$  は、それぞれ互いに独立して、  
水素、

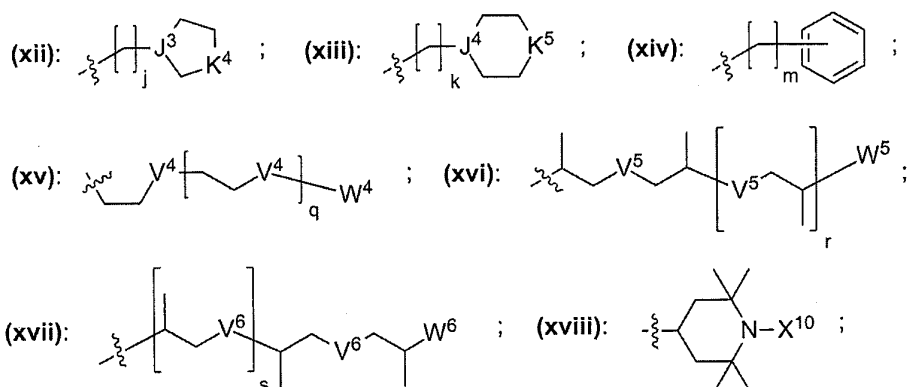
1～30個の炭素原子を有する非分枝鎖状もしくは分枝鎖状のアルキル基であって、少なくとも1個の水素基が  $-OH$ 、 $-NH_2$ 、 $-OCH_3$ 、 $-OCH_2CH_3$ 、 $-NH(CH_3)$ 、 $-N(CH_3)_2$ 、 $-NH(CH_2CH_3)$ 、 $-N(CH_2CH_3)_2$ 、 $-N(CH_3)(CH_2CH_3)$  からなる群から選択されるいずれかの基によって置き換えられていてよい前記アルキル基、

20

1～30個の炭素原子を有する非分枝鎖状もしくは分枝鎖状のアシル基であって、少なくとも1個の水素基が  $-OH$ 、 $-NH_2$ 、 $-OCH_3$ 、 $-OCH_2CH_3$ 、 $-NH(CH_3)$ 、 $-N(CH_3)_2$ 、 $-NH(CH_2CH_3)$ 、 $-N(CH_2CH_3)_2$ 、 $-N(CH_3)(CH_2CH_3)$  からなる群から選択されるいずれかの基によって置き換えられていてよい前記アシル基、

(xii)、(xiii)、(xiv)、(xv)、(xvi)、(xvii)、(xviii)

【化49】



40

からなる群から選択されるいずれかの化学構造を有する基

からなる群から選択され、前記化学構造において、

$J^3$ 、 $J^4$  は、それぞれ互いに独立して、 $CH$ 、 $N$  からなる群から選択され、

$K^4$ 、 $K^5$  は、それぞれ互いに独立して、 $-O-$ 、 $-NH-$ 、 $-N(CH_3)-$ 、 $-N(CH_2CH_3)-$ 、 $-S-$ 、 $-CH_2-$  からなる群から選択され、

$V^4$ 、 $V^5$ 、 $V^6$  は、それぞれ互いに独立して、 $-O-$ 、 $-S-$ 、 $-NH-$ 、 $-NR''''$  からなる群から選択され、ここで  $R''''$  は、1～6個の炭素原子を有する非分枝鎖状もしくは分枝鎖状のアルキル基であり、

$W^4$ 、 $W^5$ 、 $W^6$  は、それぞれ互いに独立して、 $H$ 、メチル、エチルからなる群から選択さ

50

れ、

j、k、m、q、r、sは、それぞれ互いに独立して、0～50の範囲からのいずれかの整数であり、

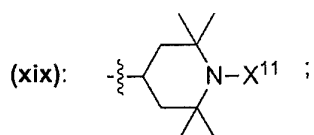
$X^{10}$ は、水素、 $-OH$ 、 $-O\cdot$ 、1～10個の炭素原子を有する非分枝鎖状もしくは分枝鎖状のアルキル基、1～10個の炭素原子を有する非分枝鎖状もしくは分枝鎖状のアルコキシ基からなる群から選択され、

前記化学構造 (xii)、(xiii)、(xiv)、(xv)、(xvi)、(xvii)、(xviii)において、炭素原子に結合された少なくとも1個の水素原子は、 $-OH$ 、 $-NH_2$ 、 $-OCH_3$ 、 $-OCH_2CH_3$ 、 $-NH(CH_3)$ 、 $-N(CH_3)_2$ 、 $-NH(CH_2CH_3)$ 、 $-N(CH_2CH_3)_2$ 、 $-N(CH_3)(CH_2CH_3)$  からなる群から

10

選択されるいずれかの基によって置き換えられていてよく、  
但し、 $R^{21}$ および $R^{26}$ は、 $p^{17}=p^{18}=p^{19}=p^{20}=0$ の場合に、それぞれ互いに独立して、化学構造 (xix)

【化50】



〔前記化学構造において、

20

$X^{11}$ は、水素、 $OH$ 、 $-O\cdot$ 、1～10個の炭素原子を有する非分枝鎖状もしくは分枝鎖状のアルキル基、1～10個の炭素原子を有する非分枝鎖状もしくは分枝鎖状のアルコキシ基からなる群から選択される〕の基であってもよいものとし、かつ

還元性条件は、前記少なくとも1種のトリアセトンアミン化合物 (I) とホルムアルデヒドとを、水素の存在下で、かつ担体触媒の存在下で反応させることによって調整され、前記担体触媒が、少なくとも1種の金属Mを有し、前記金属Mは、V、Cr、Mo、Mn、Ni、Pd、Pt、Fe、Ru、Os、Co、Rh、Ir、Cuからなる群から選択される、ことを特徴とする前記製造方法。

【0093】

9. 2 項目9. 1に記載の方法であって、

30

$Y^7$ 、 $Y^8$ 、 $Y^9$ 、 $Y^{10}$ は、それぞれ互いに独立して、

1～30個の炭素原子を有する非分枝鎖状もしくは分枝鎖状のアルキレン基、

3～30個の炭素原子を有する二価の飽和炭化水素基であって、3～30個の炭素原子からなる少なくとも1個の飽和環を有する前記二価の飽和炭化水素基、  
からなる群から選択される、前記方法。

【0094】

9. 3 項目9. 1から9. 2までの1つ以上による方法であって、

基 $R^{21}$ 、 $R^{22}$ 、 $R^{23}$ 、 $R^{24}$ 、 $R^{25}$ 、 $R^{26}$ は、それぞれ互いに独立して、

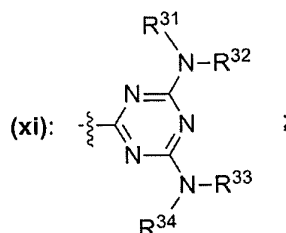
水素、

1～30個の炭素原子を有する非分枝鎖状もしくは分枝鎖状のアルキル基、

40

化学構造 (xi)

【化51】



を有する基

50

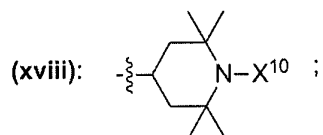
からなる群から選択され、前記化学構造において、  
基  $R^{27}$ 、 $R^{28}$ 、 $R^{29}$ 、 $R^{31}$ 、 $R^{32}$ 、 $R^{33}$ 、 $R^{34}$  は、それぞれ互いに独立して、  
水素、

1～30個の炭素原子を有する非分枝鎖状もしくは分枝鎖状のアルキル基であって、少なくとも1個の水素基が  $-OH$ 、 $-NH_2$ 、 $-OCH_3$ 、 $-OCH_2CH_3$ 、 $-NH(CH_3)$ 、 $-N(CH_3)_2$ 、 $-NH(CH_2CH_3)$ 、 $-N(CH_2CH_3)_2$ 、 $-N(CH_3)(CH_2CH_3)$  からなる群から選択されるいずれかの基によって置き換えられていてよい前記アルキル基、

化学構造 (xviii)

【化52】

10



を有する基

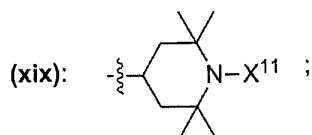
からなる群から選択され、前記化学構造において、

$X^{10}$  は、水素、 $-OH$ 、 $-O\cdot$ 、1～10個の炭素原子を有する非分枝鎖状もしくは分枝鎖状のアルキル基、1～10個の炭素原子を有する非分枝鎖状もしくは分枝鎖状のアルコキシ基からなる群から選択され、かつ

但し、 $R^{21}$  および  $R^{26}$  は、 $p^{17} = p^{18} = p^{19} = p^{20} = 0$  の場合に、それぞれ互いに独立して、化学構造 (xix)

20

【化53】



[前記化学構造において、

$X^{11}$  は、水素、 $OH$ 、 $-O\cdot$ 、1～10個の炭素原子を有する非分枝鎖状もしくは分枝鎖状のアルキル基、1～10個の炭素原子を有する非分枝鎖状もしくは分枝鎖状のアルコキシ基からなる群から選択される]の基であってもよいものとする、前記方法。

30

【0095】

9. 4 項目 9. 1 から 9. 3 までの1つ以上による方法であって、

基  $R^{21}$ 、 $R^{22}$ 、 $R^{23}$ 、 $R^{24}$ 、 $R^{25}$ 、 $R^{26}$  は、それぞれ互いに独立して、

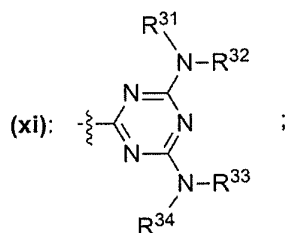
水素、

1～12個、有利には1～6個の炭素原子を有する非分枝鎖状もしくは分枝鎖状のアルキル基、

化学構造 (xi)

【化54】

40



を有する基

からなる群から選択され、前記化学構造において、

基  $R^{27}$ 、 $R^{28}$ 、 $R^{29}$ 、 $R^{31}$ 、 $R^{32}$ 、 $R^{33}$ 、 $R^{34}$  は、それぞれ互いに独立して、

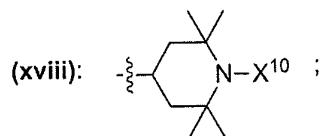
50

水素、

1～12個の、有利には1～6個の炭素原子を有する非分枝鎖状もしくは分枝鎖状のアルキル基、

化学構造 (xviii)

【化55】



10

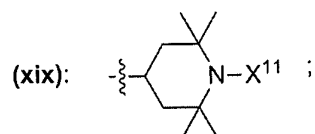
を有する基

からなる群から選択され、前記化学構造において、

$X^{10}$ は、水素、 $-OH$ 、 $-O\cdot$ 、1～10個の炭素原子を有する非分枝鎖状もしくは分枝鎖状のアルキル基、1～10個の炭素原子を有する非分枝鎖状もしくは分枝鎖状のアルコキシ基からなる群から選択され、かつ

但し、 $R^{21}$ および $R^{26}$ は、 $p^{17} = p^{18} = p^{19} = p^{20} = 0$ の場合に、それぞれ互いに独立して、化学構造 (xix)

【化56】



20

[前記化学構造において、

$X^{11}$ は、水素、 $OH$ 、 $-O\cdot$ 、1～10個の炭素原子を有する非分枝鎖状もしくは分枝鎖状のアルキル基、1～10個の炭素原子を有する非分枝鎖状もしくは分枝鎖状のアルコキシ基からなる群から選択される]の基であってもよいものとする、前記方法。

【0096】

9.5 項目9.1から9.4までの1つ以上による方法であって、

$X^9 = X^{10} = X^{11}$  = 水素である、前記方法。

30

【0097】

9.6 項目9.1から9.5までの1つ以上による方法であって、

ホルムアルデヒドは、ガスとして、水溶液として、または固体として、有利には水溶液として、または固体として、更に有利には水溶液として使用される、前記方法。

【0098】

9.7 項目9.1から9.6までの1つ以上による方法であって、

前記少なくとも1種のトリアセトンアミン化合物(I)とホルムアルデヒドとを還元性条件下で少なくとも1種の溶剤中で反応させ、前記溶剤は、脂肪族溶剤、芳香族溶剤、エーテル、ハロゲン化溶剤、アミド、チオ化合物、カルボン酸、アルコール、水からなる群から選択される、前記方法。

40

【0099】

9.8 項目9.1から9.7までの1つ以上による方法であって、

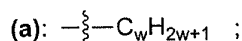
前記少なくとも1種のトリアセトンアミン化合物(I)とホルムアルデヒドとを還元性条件下で20℃から350℃までの範囲の温度および2barから500barまでの範囲の圧力で反応させる、前記方法。

【0100】

一般的な用語

本発明によれば、“非分枝鎖状もしくは分枝鎖状のアルキル基”は、一般的な化合構造(a)

## 【化 5 7】



を有する一価の飽和炭化水素基である。

## 【0101】

ここで、炭素原子の鎖“ $-\text{C}_w\text{H}_{2w+1}$ ”は、線状であってよく、その場合、非分枝鎖状のアルキル基である。しかし、当該鎖は、枝分かれを有していてもよく、その場合、分枝鎖状のアルキル基である。

## 【0102】

ここで、化合物構造(a)におけるwは整数である。wは、1～30個の炭素原子を有する非分枝鎖状もしくは分枝鎖状のアルキル基においては、1～30の範囲から選択される。wは、1～29個の炭素原子を有する非分枝鎖状もしくは分枝鎖状のアルキル基においては、1～29の範囲から選択される。wは、1～12個の炭素原子を有する非分枝鎖状もしくは分枝鎖状のアルキル基においては、1～12の範囲から選択される。wは、1～10個の炭素原子を有する非分枝鎖状もしくは分枝鎖状のアルキル基においては、1～10の範囲から選択される。wは、1～8個の炭素原子を有する非分枝鎖状もしくは分枝鎖状のアルキル基においては、1～8の範囲から選択される。wは、1～6個の炭素原子を有する非分枝鎖状もしくは分枝鎖状のアルキル基においては、1～6の範囲から選択される。

## 【0103】

本発明によれば、“1～30個の炭素原子を有する非分枝鎖状もしくは分枝鎖状のアルキル基”は、特に、メチル、エチル、n-プロピル、イソプロピル、n-ブチル、s-ブチル、イソブチル、t-ブチル、n-ペンチル、1-メチルブチル、2-メチルブチル、3-メチルブチル、1, 1-ジメチルプロピル、1, 2-ジメチルプロピル、2, 2-ジメチルプロピル、1-エチルプロピル、n-ヘキシル、1-メチルペンチル、2-メチルペンチル、3-メチルペンチル、4-メチルペンチル、1, 1-ジメチルブチル、1, 2-ジメチルブチル、1, 3-ジメチルブチル、2, 2-ジメチルブチル、2, 3-ジメチルブチル、3, 3-ジメチルブチル、1-エチルブチル、2-エチルブチル、1, 1, 2-トリメチルプロピル、1, 2, 2-トリメチルプロピル、1-エチル-1-メチルプロピル、1-エチル-2-メチルプロピル、n-ヘプチル、n-オクチル、n-ノニル、n-デシル、n-ウンデシル、n-ドデシル、n-トリデシル、n-テトラデシル、n-ペンタデシル、n-ヘキサデシル、n-ヘプタデシル、n-オクタデシル、n-ノナデシル、n-エイコシル、n-ヘンエイコシル、n-ドコシル、n-トリコシル、n-テトラコシル、n-ペンタコシル、n-ヘキサコシル、n-ヘプタコシル、n-オクトコシル、n-ノナコシル、n-トリコンチルからなる群から選択される。

## 【0104】

本発明によれば、“1～12個の炭素原子を有する非分枝鎖状もしくは分枝鎖状のアルキル基”は、特に、メチル、エチル、n-プロピル、イソプロピル、n-ブチル、s-ブチル、イソブチル、t-ブチル、n-ペンチル、1-メチルブチル、2-メチルブチル、3-メチルブチル、1, 1-ジメチルプロピル、1, 2-ジメチルプロピル、2, 2-ジメチルプロピル、1-エチルプロピル、n-ヘキシル、1-メチルペンチル、2-メチルペンチル、3-メチルペンチル、4-メチルペンチル、1, 1-ジメチルブチル、1, 2-ジメチルブチル、1, 3-ジメチルブチル、2, 2-ジメチルブチル、2, 3-ジメチルブチル、3, 3-ジメチルブチル、1-エチルブチル、2-エチルブチル、1, 1, 2-トリメチルプロピル、1, 2, 2-トリメチルプロピル、1-エチル-1-メチルプロピル、1-エチル-2-メチルプロピル、n-ヘプチル、n-オクチル、n-ノニル、n-デシル、n-ウンデシル、n-ドデシルからなる群から選択される。

## 【0105】

本発明によれば、“1～10個の炭素原子を有する非分枝鎖状もしくは分枝鎖状のアルキル基”は、特に、メチル、エチル、n-プロピル、イソプロピル、n-ブチル、s-ブ

チル、イソブチル、*t*-ブチル、*n*-ペンチル、1-メチルブチル、2-メチルブチル、3-メチルブチル、1, 1-ジメチルプロピル、1, 2-ジメチルプロピル、2, 2-ジメチルプロピル、1-エチルプロピル、*n*-ヘキシル、1-メチルペンチル、2-メチルペンチル、3-メチルペンチル、4-メチルペンチル、1, 1-ジメチルブチル、1, 2-ジメチルブチル、1, 3-ジメチルブチル、2, 2-ジメチルブチル、2, 3-ジメチルブチル、3, 3-ジメチルブチル、1-エチルブチル、2-エチルブチル、1, 1, 2-トリメチルプロピル、1, 2, 2-トリメチルプロピル、1-エチル-1-メチルプロピル、1-エチル-2-メチルプロピル、*n*-ヘプチル、*n*-オクチル、*n*-ノニル、*n*-デシルからなる群から選択される。

#### 【0106】

本発明によれば、“1～8個の炭素原子を有する非分枝鎖状もしくは分枝鎖状のアルキル基”は、特に、メチル、エチル、*n*-プロピル、イソプロピル、*n*-ブチル、*s*-ブチル、イソブチル、*t*-ブチル、*n*-ペンチル、1-メチルブチル、2-メチルブチル、3-メチルブチル、1, 1-ジメチルプロピル、1, 2-ジメチルプロピル、2, 2-ジメチルプロピル、1-エチルプロピル、*n*-ヘキシル、1-メチルペンチル、2-メチルペンチル、3-メチルペンチル、4-メチルペンチル、1, 1-ジメチルブチル、1, 2-ジメチルブチル、1, 3-ジメチルブチル、2, 2-ジメチルブチル、2, 3-ジメチルブチル、3, 3-ジメチルブチル、1-エチルブチル、2-エチルブチル、1, 1, 2-トリメチルプロピル、1, 2, 2-トリメチルプロピル、1-エチル-1-メチルプロピル、1-エチル-2-メチルプロピル、*n*-ヘプチル、*n*-オクチルからなる群から選択される。

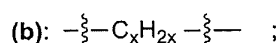
#### 【0107】

本発明によれば、“1～6個の炭素原子を有する非分枝鎖状もしくは分枝鎖状のアルキル基”は、特に、メチル、エチル、*n*-プロピル、イソプロピル、*n*-ブチル、*s*-ブチル、イソブチル、*t*-ブチル、*n*-ペンチル、1-メチルブチル、2-メチルブチル、3-メチルブチル、1, 1-ジメチルプロピル、1, 2-ジメチルプロピル、2, 2-ジメチルプロピル、1-エチルプロピル、*n*-ヘキシル、1-メチルペンチル、2-メチルペンチル、3-メチルペンチル、4-メチルペンチル、1, 1-ジメチルブチル、1, 2-ジメチルブチル、1, 3-ジメチルブチル、2, 2-ジメチルブチル、2, 3-ジメチルブチル、3, 3-ジメチルブチル、1-エチルブチル、2-エチルブチル、1, 1, 2-トリメチルプロピル、1, 2, 2-トリメチルプロピル、1-エチル-1-メチルプロピル、1-エチル-2-メチルプロピルからなる群から選択される。

#### 【0108】

“分枝鎖状もしくは非分枝鎖状のアルキレン基”との用語は、本発明によれば、一般的な化学構造(b)

#### 【化58】



によって表されることのできる二価の飽和炭化水素基を指す。ここで、炭素原子の鎖“ $-C_xH_{2x}-$ ”は、線状であってよく、その場合、非分枝鎖状のアルキレン基である。しかし、当該鎖は、枝分かれを有していてもよく、その場合、分枝鎖状のアルキレン基である。その際、化学構造(b)におけるxは整数である。

#### 【0109】

xは、1～30個の炭素原子を有する非分枝鎖状もしくは分枝鎖状のアルキレン基においては、1～30の範囲から選択される。

#### 【0110】

xは、1～12個の炭素原子を有する非分枝鎖状もしくは分枝鎖状のアルキレン基においては、1～12の範囲から選択される。

#### 【0111】

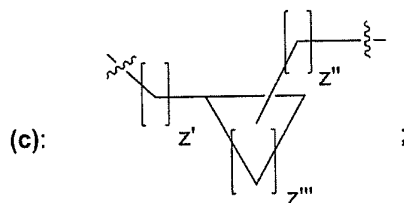
xは、1～6個の炭素原子を有する非分枝鎖状もしくは分枝鎖状のアルキレン基におい

ては、1～6の範囲から選択される。

【0112】

本発明によれば、“3～30個の炭素原子を有する二価の飽和炭化水素基であって、3～30個の炭素原子からなる少なくとも1個の飽和環を有する二価の飽和炭化水素基”は、特に、化学構造(c)

【化59】



10

[式中、Z'は、0～27の整数である；Z''は、0～27の整数である；Z'''は、1～28の整数である；かつ同時に、 $Z' + Z'' + Z''' \leq 28$ であることが適用される]である。

【0113】

特に、“3～30個の炭素原子を有する二価の飽和炭化水素基であって、3～30個の炭素原子からなる少なくとも1個の飽和環を有する二価の飽和炭化水素基”は、“3～12個の炭素原子を有する二価の飽和炭化水素基であって、3～12個の炭素原子からなる少なくとも1個の飽和環を有する二価の飽和炭化水素基”であり、更に有利には、“3～6個の炭素原子を有する二価の飽和炭化水素基であって、3～6個の炭素原子からなる少なくとも1個の飽和環を有する二価の飽和炭化水素基”である。

20

【0114】

“3～12個の炭素原子を有する二価の飽和炭化水素基であって、3～12個の炭素原子からなる少なくとも1個の飽和環を有する二価の飽和炭化水素基”は、本発明によれば、化学構造(c) [式中、Z'は、0～9の整数である；Z''は、0～9の整数である；Z'''は、1～10の整数である；かつ同時に、 $Z' + Z'' + Z''' \leq 10$ であることが適用される]を有する。

【0115】

有利には、“3～12個の炭素原子を有する二価の飽和炭化水素基であって、3～12個の炭素原子からなる少なくとも1個の飽和環を有する二価の飽和炭化水素基”は、シクロプロピレン、シクロブチレン、シクロペンチレン、シクロヘキシレン、シクロヘプチレン、シクロオクチレン、シクロノニレン、シクロデシレン、シクロウンデシレン、シクロドデシレンからなる群から選択される。

30

【0116】

“3～6個の炭素原子を有する二価の飽和炭化水素基であって、3～6個の炭素原子からなる少なくとも1個の飽和環を有する二価の飽和炭化水素基”は、本発明によれば、化学構造(c) [式中、Z'は、0～3の整数である；Z''は、0～3の整数である；Z'''は、1～4の整数である；かつ同時に、 $Z' + Z'' + Z''' \leq 4$ であることが適用される]を有する。

40

【0117】

有利には、“3～6個の炭素原子を有する二価の飽和炭化水素基であって、3～6個の炭素原子からなる少なくとも1個の飽和環を有する二価の飽和炭化水素基”は、シクロプロピレン、シクロブチレン、シクロペンチレン、シクロヘキシレンからなる群から選択される。

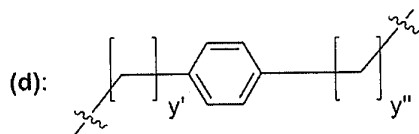
【0118】

本発明によれば、“6～30個の炭素原子を有する二価の炭化水素基であって、そのうち少なくとも6個の炭素原子が芳香族系中に存在し、その他の炭素原子は、存在する場合は飽和である二価の炭化水素基”は、特に、“6～30個の炭素原子を有する二価の炭化

50

水素基であって、そのうち少なくとも6個、10個または14個の炭素原子が芳香族系中に存在し、その他の炭素原子が、存在する場合は飽和である二価の炭化水素基”であり、有利には、ナフチレン、アントリレン、フェナントリレンおよび次の化学構造(d)：

【化60】

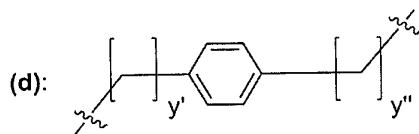


〔式中、 $y'$  は、0～24の整数である； $y''$  は、0～24の整数である；かつ同時に、 $y' + y'' \leq 24$ であることが適用される〕からなる群から選択される。

【0119】

更に有利には、それは、“6～30個の炭素原子を有する二価の炭化水素基であって、そのうち6個または10個の炭素原子が芳香族系中に存在し、その他の炭素原子が、存在する場合は飽和である二価の炭化水素基”であり、最も有利には、これは、ナフチレンおよび次の化学構造(d)：

【化61】

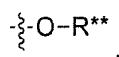


〔式中、 $y'$  は、0～24の整数である； $y''$  は、0～24の整数である；かつ同時に、 $y' + y'' \leq 24$ であることが適用される〕からなる群から選択される。

【0120】

本発明によれば、“非分枝鎖状もしくは分枝鎖状のアルコキシ基”は、化学構造：

【化62】



〔式中、 $R^{**}$  は、非分枝鎖状もしくは分枝鎖状のアルキル基である〕の有機基である。“1～30個の炭素原子を有する非分枝鎖状もしくは分枝鎖状のアルコキシ基”の場合、 $R^{**}$  は、1～30個の炭素原子を有する非分枝鎖状もしくは分枝鎖状のアルキル基である。

【0121】

“1～10個の炭素原子を有する非分枝鎖状もしくは分枝鎖状のアルコキシ基”の場合、 $R^{**}$  は、1～10個の炭素原子を有する非分枝鎖状もしくは分枝鎖状のアルキル基である。

【0122】

本発明によれば、“1～10個の炭素原子を有する非分枝鎖状もしくは分枝鎖状のアルコキシ基”は、特に、メトキシ、エトキシ、 $n$ -プロポキシ、イソプロポキシ、 $n$ -ブトキシ、 $s$ -ブトキシ、イソブトキシ、 $t$ -ブトキシ、 $n$ -ペントキシ、1-メチルブトキシ、2-メチルブトキシ、3-メチルブトキシ、1, 1-ジメチルプロポキシ、1, 2-ジメチルプロポキシ、2, 2-ジメチルプロポキシ、1-エチルプロポキシ、 $n$ -ヘキソキシ、1-メチルペントキシ、2-メチルペントキシ、3-メチルペントキシ、4-メチルペントキシ、1, 1-ジメチルブトキシ、1, 2-ジメチルブトキシ、1, 3-ジメチルブトキシ、2, 2-ジメチルブトキシ、2, 3-ジメチルブトキシ、3, 3-ジメチルブトキシ、1-エチルブトキシ、2-エチルブトキシ、1, 1, 2-トリメチルプロポキシ、1, 2, 2-トリメチルプロポキシ、1-エチル-1-メチルプロポキシ、1-エチ

ル-2-メチルプロポキシ、n-ヘプトキシ、n-オクトキシ、n-ノノキシ、n-デコキシからなる群から選択される。

【0123】

本発明によれば、“1～30個の炭素原子を有する非分枝鎖状もしくは分枝鎖状のアシル基”は、化学構造

【化63】



[式中、R\*は、1～29個の炭素原子を有する非分枝鎖状もしくは分枝鎖状のアルキル基である]の有機基である。

【0124】

特に、R\*は、メチル、エチル、n-プロピル、イソプロピル、n-ブチル、s-ブチル、イソブチル、t-ブチル、n-ペンチル、1-メチルブチル、2-メチルブチル、3-メチルブチル、1,1-ジメチルプロピル、1,2-ジメチルプロピル、2,2-ジメチルプロピル、1-エチルプロピル、n-ヘキシル、1-メチルペンチル、2-メチルペンチル、3-メチルペンチル、4-メチルペンチル、1,1-ジメチルブチル、1,2-ジメチルブチル、1,3-ジメチルブチル、2,2-ジメチルブチル、2,3-ジメチルブチル、3,3-ジメチルブチル、1-エチルブチル、2-エチルブチル、1,1,2-トリメチルプロピル、1,2,2-トリメチルプロピル、1-エチル-1-メチルプロピル、1-エチル-2-メチルプロピル、n-ヘプチル、n-オクチル、n-ノニル、n-デシル、n-ウンデシル、n-ドデシル、n-トリデシル、n-テトラデシル、n-ペンタデシル、n-ヘキサデシル、n-ヘプタデシル、n-オクタデシル、n-ノナデシル、n-エイコシル、n-ヘンエイコシル、n-ドコシル、n-トリコシル、n-テトラコシル、n-ペンタコシル、n-ヘキサコシル、n-ヘプタコシル、n-オクトコシル、n-ノナコシルからなる群から選択される。

【0125】

“-O·”は、本発明によれば、酸素ラジカル基を指す。

【0126】

本発明によれば、“少なくとも1個の水素基が-OH、-NH<sub>2</sub>、-OCH<sub>3</sub>、-OCH<sub>2</sub>CH<sub>3</sub>、-NH(CH<sub>3</sub>)、-N(CH<sub>3</sub>)<sub>2</sub>、-NH(CH<sub>2</sub>CH<sub>3</sub>)、-N(CH<sub>2</sub>CH<sub>3</sub>)<sub>2</sub>、-N(CH<sub>3</sub>)(CH<sub>2</sub>CH<sub>3</sub>)からなる群から選択されるいずれかの基によって置き換えられていてよい”との言い回しは、該当する基が置換されずに存在するか、または該当する基において、炭素原子に結合された少なくとも1個の水素基、有利には1～5個の、更に有利には1～3個の、最も有利には1～2個の、同じもしくは異なる炭素原子に結合された水素基が-OH、-NH<sub>2</sub>、-OCH<sub>3</sub>、-OCH<sub>2</sub>CH<sub>3</sub>、-NH(CH<sub>3</sub>)、-N(CH<sub>3</sub>)<sub>2</sub>、-NH(CH<sub>2</sub>CH<sub>3</sub>)、-N(CH<sub>2</sub>CH<sub>3</sub>)<sub>2</sub>、-N(CH<sub>3</sub>)(CH<sub>2</sub>CH<sub>3</sub>)からなる群から選択されるいずれかの基によって置き換えられていることを意味する。

【0127】

本発明による方法

ホルムアルデヒドは、特に、本発明による方法においては、ガスとして、水溶液としてまたは固体として用いられることができる。有利には、ホルムアルデヒドは、本発明による方法においては、水溶液としてまたは固体として（例えばパラホルムアルデヒドとして）用いられる。

【0128】

ホルムアルデヒドが水溶液として用いられる更に一層有利な実施形態においては、水溶液中のホルムアルデヒドの濃度は1.0～37質量%である（w/w，“%”は、水溶液の全質量に対するホルムアルデヒドの質量に関する）。ホルムアルデヒドが37質量%の場合、例えば、水溶液100gが、ホルムアルデヒド37gを含有する。

## 【0129】

本発明による方法は、還元性条件下で実施される。“還元性条件”とは、反応スキーム<1>において示されるイミンが、水素付加によって相応のアミンに変換される条件を意味する。

## 【0130】

本発明による方法において、還元性条件は、少なくとも1種のトリアセトンジアミン化合物(I)を、水素の存在下にかつ担体触媒の存在下に、少なくとも1種のカルボニル化合物(II)と反応させることによって調整され、ここで、担体触媒は、少なくとも1種の金属Mを有し、当該金属Mは、V、Cr、Mo、Mn、Ni、Pd、Pt、Fe、Ru、Os、Co、Rh、Ir、Cuからなる群から選択される；有利には、V、Cr、Mo、Mn、Ni、Pd、Pt、Fe、Ru、Os、Co、Rh、Ir、Cuからなる群から選択される；有利には、Cr、Mo、Mn、Ni、Pd、Pt、Ru、Rhからなる群から選択される；更に有利には、Cr、Ni、Pd、Ptからなる群から選択される；最も有利には、Ni、Pdからなる群から選択される。

10

## 【0131】

少なくとも1種の金属Mを有する担体触媒の使用は、本発明による方法のために重要である：かかる担体触媒は、当業者に公知であり、かつ特に欧州特許出願公開第0302020(A2)号明細書に記載されている。

## 【0132】

“少なくとも1種の金属Mを有する担体触媒”は、特に、有利には元素状態で存在する金属Mが、当業者に公知の担体であって、例えば活性炭、炭酸カルシウム、酸化アルミニウム、二酸化チタンからなる群から、特に酸化アルミニウム、活性炭からなる群から選択されていてよい担体に施与されていることを意味する。

20

## 【0133】

ここで、担体触媒中の金属Mの割合は、特に制限されておらず、かつ、とりわけ、0.1～30質量%、有利には1～10質量%、更に有利には5質量%の範囲にある。ここで、質量%は、個々の担体触媒に含まれる担体の全質量に対する、個々の担体触媒に含まれる全ての金属Mの全質量を意味する。

## 【0134】

かかる担体触媒なしでは、不所望の生成物のみが得られることとなる。C. Harriesは、例えば、Justus Liebigs Annalen der Chemie、第417巻、1918年、第107頁～第191頁において、その記事“Untersuchungen ueber die cyclischen Acetonbasen (アセトン環状塩基についての研究)”の第220頁～第222頁に、担体触媒なしで4-アミノ-2, 2, 6, 6-テトラメチルアミノペリジンを無水酢酸と反応させることを記載しており、この反応は、ここでは不所望の相応するアミド化合物の非常に高い収率を生む。

30

## 【0135】

本発明による方法は、溶剤不含で、あるいは少なくとも1種の溶剤中で、有利には少なくとも1種の溶剤中で実施されることができる。ここで、溶剤として、反応物が良好に溶解し、かつ本発明による方法に妨げとなる影響も及ぼさないあらゆる溶剤が適している。特に溶剤は、脂肪族溶剤、芳香族溶剤、エーテル、ハロゲン化溶剤、アミド、チオ化合物、カルボン酸、アルコール、水からなる群から選択される；有利には、溶剤は、脂肪族溶剤、芳香族溶剤、エーテル、アルコール、水からなる群から選択される；更に有利には、溶剤は、脂肪族溶剤、芳香族溶剤、エーテル、アルコール、水からなる群から選択される。とりわけ有利には、溶剤は、芳香族溶剤（特にトルエン）、アルコール（特にメタノール）からなる群から選択される。

40

## 【0136】

特に脂肪族溶剤は、ペンタン、ヘキサン、ヘプタン、オクタン、デカン、シクロペンタ

50

ン、シクロヘキサン、メチルシクロヘキサン、石油エーテルからなる群から選択される。

【0137】

特に芳香族溶剤は、ベンゼン、トルエン、キシレン、エチルベンゼン、クメン、ブロモベンゼン、クロロベンゼン、ジクロロベンゼン、フランからなる群から選択され、有利にはトルエンである。

【0138】

特にエーテルは、ジエチルエーテル、ジプロピルエーテル、ジブチルエーテル、メチル-*t*-ブチルエーテル、エチレングリコールモノメチルエーテル、エチレングリコールモノエチルエーテル、エチレングリコールジメチルエーテル、エチレングリコールジエチルエーテル、ジエチレングリコールモノメチルエーテル、ジエチレングリコールモノエチルエーテル、ジエチレングリコールジメチルエーテル、ジエチレングリコールジエチルエーテル、トリエチレングリコールモノメチルエーテル、トリエチレングリコールモノエチルエーテル、トリエチレングリコールジメチルエーテル、トリエチレングリコールジエチルエーテル、ポリエチレングリコールモノメチルエーテル、ポリエチレングリコールモノエチルエーテル、ポリエチレングリコールジメチルエーテル、ポリエチレングリコールジエチルエーテル、1, 4-ジオキサン、1, 3-ジオキサン、テトラヒドロフランからなる群から選択される。

10

【0139】

特にハロゲン化溶剤は、ジクロロメタン、クロロホルム、テトラクロロメタンからなる群から選択される。

20

【0140】

特にアミドは、ジメチルホルムアミド、ジメチルアセトアミドからなる群から選択される。

【0141】

特にチオ化合物は、ジメチルスルホキシド、スルホランからなる群から選択される。

【0142】

特にカルボン酸は、ギ酸、酢酸、プロピオン酸、ブタン酸、ペンタン酸からなる群から選択される。

【0143】

特にアルコールは、メタノール、エタノール、プロパノール、イソプロパノール、1, 2-プロパンジオール、1, 3-プロパンジオール、グリセリン、ブタノール、*s*-ブタノール、イソブタノール、*t*-ブタノール、1, 2-ブタンジオール、1, 3-ブタンジオール、1, 4-ブタンジオール、1-ペンタノール、2-ペンタノール、3-ペンタノール、*t*-アミルアルコール、1, 2-ペンタンジオール、1, 3-ペンタンジオール、1, 4-ペンタンジオール、1, 5-ペンタンジオール、シクロペンタノール、ヘキサノール、シクロヘキサノール、ヘプタノール、オクタノール、ノナノール、デカノール、エチレングリコール、ジエチレングリコール、トリエチレングリコール、ポリエチレングリコール、ベンジルアルコール、フェノールからなる群から選択される；有利には、メタノール、エタノール、*n*-プロパノール、イソプロパノールからなる群から選択される；有利にはメタノールである。

30

40

【0144】

本発明による方法は、連続的または不連続的に、すなわちバッチ式に実施することもできる。

【0145】

反応時間は、方法の経過および所望の転化率に依存する—通常、出来る限り高い転化率を達成しようと努められ、かつ本発明による方法は、出発材料の転化がもはや観察され得なくなるまで続けられる。

【0146】

本発明による方法における温度は制限されておらず、かつ有利には20℃から350℃までの範囲、更に有利には50℃から300℃までの範囲、更に一層有利には50℃から

50

250℃までの範囲、極めて有利には70℃から200℃までの範囲、更に一層有利には80℃から140℃までの範囲にある。

【0147】

本発明による方法における圧力は制限されておらず、かつ有利には2barから500barまでの範囲、更に有利には5barから350barまでの範囲、更に一層有利には15barから300barまでの範囲、更に一層有利には20barから42barまでの範囲にある。

【0148】

当然の事ながら、上記の温度範囲および圧力範囲は、組み合わせあって存在してもよい。そのため、本方法は、有利には20℃から350℃までの範囲〔更に有利には50℃から300℃までの範囲、更に一層有利には50℃から250℃までの範囲、極めて有利には70℃から200℃までの範囲、更に一層有利には80℃から140℃までの範囲〕の温度および2barから500barまでの範囲〔有利には2barから500barまでの範囲、更に有利には5barから350barまでの範囲、更に一層有利には15barから300barまでの範囲、更に一層有利には20barから42barまでの範囲〕の圧力で実施されることができる。

10

【0149】

この方法は、本発明による課題を解決する。とりわけ好ましいのは、反応において、副生成物として水のみが発生することである。そのうえ、小過剰量のホルムアルデヒドを、水素化によってメタノールに変換するか、または蒸留分離し、かつ場合により返送することができる。

20

それゆえ、粗生成物の後処理は非常に簡単である：触媒は、ろ過によって除去され（工業的に固定床触媒を使用し、そうすることで、この工程も省くということも考えられる）、引き続き、粗生成物は、蒸留によって精製される。蒸留においては、単にメタノール（これは再循環させられることができる）、水、生成物および場合によりホルムアルデヒド（これも同様に再循環させられることができる）のみが生じる。

【0150】

つまり、先行技術に従った方法とは異なり、形成された塩を分離（一般的に、更なる溶剤を用いた抽出によって行われる）する必要がなく、そのうえ、上述の塩（もしくはその水溶液）が廃棄流として生じない。

30

【0151】

本発明による方法において更に好ましいのは、ピペリジン窒素（N<sup>1</sup>）上にメチル基を導入することに加えて、他のアミノ基も同時にメチル化することができることである。例えば、N<sup>4</sup>-アルキル-4-アミノ-2, 2, 6, 6-テトラメチルピペリジンは、選択的にN<sup>1</sup>, N<sup>4</sup>-ジメチル-N<sup>4</sup>-アルキル-4-アミノ-2, 2, 6, 6-テトラメチルピペリジンに変換されることができる。つまり、この場合、2個以上のメチル基が同時に導入される（例E2を参照されたい）。

【0152】

更なる利点は、第三級アミノ基の存在も許容されることであり、その際、当該アミノ基は、第四級アンモニウム塩に変換されない（例E3を参照されたい）。

40

【0153】

下記の例は、本発明を詳述するものであるが、本発明をこれらの実施形態に制限するものではない。

【実施例】

【0154】

パラホルムアルデヒドを、Sigma-Aldrich社から入手した（純度95%）。

【0155】

使用した37質量%のホルマリン溶液は、Sigma-Aldrich社から入手した。

50

## 【0156】

例E1～E12において用いた出発材料は、Evonik Industries AG社から販売されていた。

## 【0157】

例E13において使用した出発材料は、Cytec社から得た（製品名：Cyasorb 3346）。

## 【0158】

例E14において使用した出発材料は、Beijing Huashan Auxiliaryから入手した（製品名：Tinuvin 770）。

## 【0159】

使用したPd／活性炭－触媒は、Evonik Industries AG社から販売されていた（製品名：E 196 NN／W 10％）。

## 【0160】

本発明による例E1～E10

2 Lの加圧式オートクレーブ中に、個々のトリアセトンアミン化合物（表1に記載される“出発材料”）1.5モル、パラジウム3ミリモル（Pd／活性炭－触媒として）およびメタノール400 mlを加えた。続けて、ホルムアルデヒドの水溶液（37質量％のホルムアルデヒド－ここで、％値は、溶液の全質量に対するものと理解されるべきであり、すなわち、溶液100 gがホルムアルデヒド37 gを含有する）を、表1に記載される量で添加し、かつ反応器を閉じた。

## 【0161】

攪拌しながら、水素を圧入した（ $H_2$  40 bar）。80℃から140℃までの温度および20 barから42 barまでの圧力で、水素の消費がもはや大して観察され得なくなるまで水素化した。

## 【0162】

その後、反応器を冷却し、かつ減圧した。粗生成物を排出し、ろ過し、引き続き、まず溶剤を除去した（80～120℃、常圧）。次いで、ガスクロマトグラフィー（＝GC、Agilent 5890もしくは7890、FID検出器）により、得られた粗生成物中の生成物および場合により副生成物（E2、E3、E7、E9、E10）の収率を測定した（表1を参照されたい、“粗生成物”の欄における構造）。例E1～E6の場合、更に残留物を、引き続き真空蒸留によって精製し、かつ主生成物の収率をGCにより測定した。

## 【0163】

結果を表1にまとめている。

## 【0164】

本発明による例E11～E14

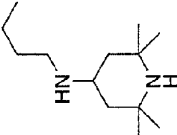
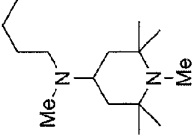
1 Lの加圧式オートクレーブ中に、表2に記される個々のトリアセトンアミン化合物（表2に記載される“出発材料”）の量、Pd／活性炭－触媒としてのPd 0.2モル％（出発材料の量に対するモル％）、および溶剤250 ml（メタノールまたはトルエン）を加えた。続けて、パラホルムアルデヒドを表2に記載の量で添加し、溶剤50 mlで後洗浄し、かつ反応器を閉じた。攪拌しながら、水素を圧入した（ $H_2$  40 bar）。80℃から140℃までの温度および20 barから42 barまでの圧力で、水素の消費がもはや大して観察され得なくなるまで水素化した。その後、反応器を冷却し、かつ減圧した。粗生成物を排出し、ろ過し、引き続き、まず溶剤を除去した（80～120℃、常圧）。次いで、例E11、E12、E14の場合、ガスクロマトグラフィー（＝GC、Agilent 5890もしくは7890、FID検出器）により、例E13の場合、MS－ESIにより、得られた粗生成物中の生成物の収率を測定した（表2を参照されたい、“粗生成物”の欄における構造）。例E11の場合、残留物を、引き続き可能な限り真空蒸留によって精製した。

結果を表2にまとめている。

【0165】

【表1-1】

第1表

| 例の番号 | バッチ                                                                                                                            |                                                                                                                     | 粗生成物                                                                               |       | 純生成物       |                                  |
|------|--------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------|---------------------------------------------------------------------------------------------------------------------|------------------------------------------------------------------------------------|-------|------------|----------------------------------|
|      | 出発材料の構造                                                                                                                        | ホルマリン水溶液 (ホルムアルデヒド37質量%)                                                                                            | 構造                                                                                 | GC-分析 | GC-分析      | 収率                               |
|      | (i) 出発材料のモル質量<br>(ii) 用いた出発材料の量 (g [若しくはモル] 記載)                                                                                | (i) 用いたホルマリン水溶液の量 (水中でホルムアルデヒド37質量%) (g 記載)<br>(ii) 用いたホルムアルデヒドの量 (モル記載)<br>(iii) 出発材料に対する、ホルムアルデヒドのモル当量 ["moleq."] |                                                                                    | 面積 %  | 含有率 [面積-%] | 純フラクシオン [% 用いた出発材料の量に対する (モル記載)] |
| E1   | <br>(i) 212.4 g/モル<br>(ii) 321.4 g [1.5 モル] | (i) 267.8 g<br>(ii) 3.30 モル<br>(iii) 2.2 モル当量                                                                       |  | 97.9  | 98.3       | 93.7                             |

【0166】

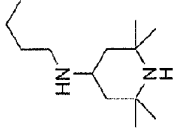
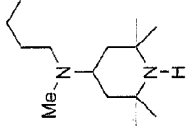
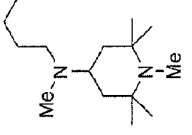
10

20

30

40

【表 1－2】

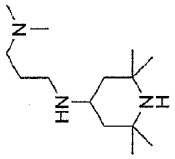
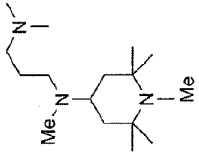
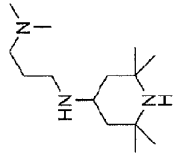
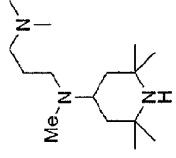
|    |                                                                                                                                               |                                                            |                                                                                                                                                                                                                                   |                                 |                 |                 |
|----|-----------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------|------------------------------------------------------------|-----------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------|---------------------------------|-----------------|-----------------|
| E2 | <div><p>(i) 212.4 g/モル<br/>(ii) 321.4 g [1.5 モル]</p></div> | <div>(i) 133.9 g<br/>(ii) 1.65 モル<br/>(iii) 1.1 モル当量</div> | <div><div><p>Me</p></div><div><p>Me</p></div><p>副生成物:</p></div> | <div>88.6</div> <div>10.4</div> | <div>99.4</div> | <div>77.8</div> |
|----|-----------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------|------------------------------------------------------------|-----------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------|---------------------------------|-----------------|-----------------|

10

20

30

【表 1 - 3】

|    |                                                                                                                                       |                                                |                                                                                                |              |      |      |
|----|---------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------|------------------------------------------------|------------------------------------------------------------------------------------------------|--------------|------|------|
| E3 |  <p>(i) 241.4 g/モル<br/>(ii) 362.1 g [1.50 モル]</p>  | (i) 267.8 g<br>(ii) 3.30 モル<br>(iii) 2.2 モル当量. |  <p>副生成物:</p> | 86.8<br>12.5 | 99.7 | 61.8 |
| E4 |  <p>(i) 241.4 g/モル<br/>(ii) 365.4 g [1.51 モル]</p> | (i) 121.7 g<br>(ii) 1.50 モル<br>(iii) 1.0 モル当量. |              | 97.6         | 98.8 | 82.2 |

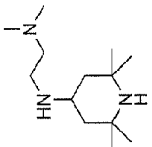
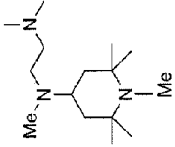
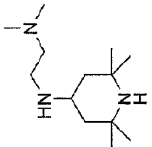
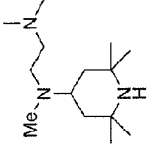
【 0 1 6 8】

10

20

30

【表 1 - 4】

|    |                                                                                                                                      |                                               |                                                                                   |      |      |      |
|----|--------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------|-----------------------------------------------|-----------------------------------------------------------------------------------|------|------|------|
| E5 |  <p>(i) 227.4 g/モル<br/>(ii) 341.8 g [1.50 モル]</p> | (i) 316.5 g<br>(ii) 3.90 モル<br>(iii) 2.6 モル当量 |  | 97.5 | 99.9 | 72.4 |
| E6 |  <p>(i) 227.4 g/モル<br/>(ii) 178.0 g [0.78 モル]</p> | (i) 63.3 g<br>(ii) 0.78 モル<br>(iii) 1.0 モル当量  |  | 98.9 | 98.8 | 86.7 |

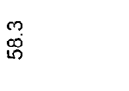
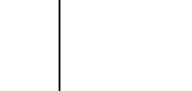
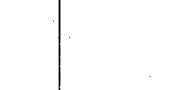
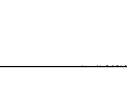
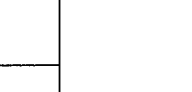
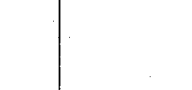
【 0 1 6 9】

10

20

30

【表 1 - 5】

|    |                                                                                                                                     |                                               |                                                                                                                                                                                   |                  |      |   |
|----|-------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------|-----------------------------------------------|-----------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------|------------------|------|---|
| E7 | <br>(i) 156.3 g/モル<br>(ii) 238.0 g [1.5 モル]        | (i) 401.8 g<br>(ii) 4.95 モル<br>(iii) 3.3 モル当量 | <br>副生成物:<br> | 76.0<br><br>21.5 | 58.3 | - |
| E8 | <br>(i) 157.3 g/モル<br>(ii) 157.0 g<br>(iii) 1.0 モル | (i) 89.3 g<br>(ii) 1.10 モル<br>(iii) 1.1 モル当量  | <br>副生成物:<br> | 98.5             | 99.3 | - |

【 0 1 7 0 】

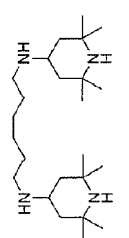
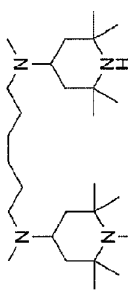
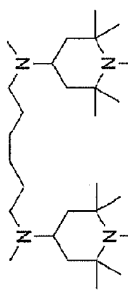
10

20

30

40

【表 1-6】

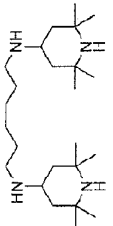
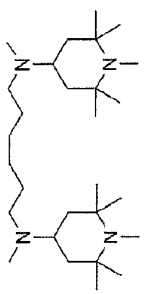
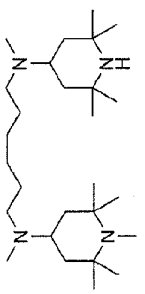
|    |                                                                                                                                           |                                                       |                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                            |                                    |                   |
|----|-------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------|-------------------------------------------------------|------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------|------------------------------------|-------------------|
| E9 |  <p>(i) 394.7 g [0.5 モル]<br/>(ii) 198.3 g [0.5 モル]</p> | <p>(i) 89.2 g<br/>(ii) 1.10 モル<br/>(iii) 2.2 モル当量</p> | <p>副生成物:</p> <div style="display: flex; justify-content: space-around; align-items: center;">    </div> | <p>80.4</p> <p>18.0</p> <p>1.1</p> | <p>-</p> <p>-</p> |
|----|-------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------|-------------------------------------------------------|------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------|------------------------------------|-------------------|

10

20

30

【表 1－7】

|     |                                                                                                                                |                                                |                                                                                                                                                                                 |             |   |
|-----|--------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------|------------------------------------------------|---------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------|-------------|---|
| E10 | <br>(i) 394.7 g/モル<br>(ii) 198.3 g [0.5 モル] | (i) 170.4 g<br>(ii) 2.10 モル<br>(iii) 4.2 モル当量. | <br><br>副生成物: | 90.5<br>8.3 | - |
|     |                                                                                                                                |                                                |                                                                                                                                                                                 |             |   |

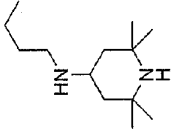
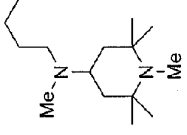
10

20

30

【表 2 - 1】

第 2 表

| 例の番号 | バッチ                                                                                                                                    |                                                                                                                        | 溶剤    | 粗生成物                                                                              |       | 純生成物       |                                   |
|------|----------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------|------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------|-------|-----------------------------------------------------------------------------------|-------|------------|-----------------------------------|
|      | 出発材料の構造                                                                                                                                | パラホルムアルデヒド (純度 95 %)                                                                                                   |       | 構造                                                                                | GC-分析 | GC-分析      | 収率                                |
|      | (i) 出発材料のモル質量<br>(ii) 用いた出発材料の量<br>(g) [若しくはモル]<br>(記載)                                                                                | (i) 用いたパラホルムアルデヒドの量 (g) (記載)<br>(ii) 用いたホルムアルデヒドの量 (モル記載) (95 %の純度を考慮して計算)<br>(iii) 出発材料に対する、ホルムアルデヒドのモル当量 ["mol eq."] |       |                                                                                   | 面積-%  | 含有率 [面積-%] | 純フラクション [%; 用いた出発材料の量に対する (モル記載)] |
| E11  | <br>(i) 212.4 g/モル<br>(ii) 160.9 g<br>(iii) 0.76 モル | (i) 52.2 g<br>(ii) 1.65 モル<br>(iii) 2.2 モル当量.                                                                          | メタノール |  | 97.9  | 98.3       | 93.7                              |

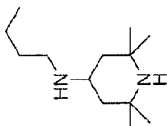
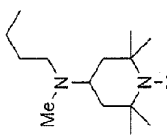
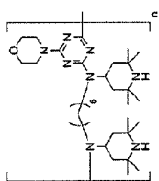
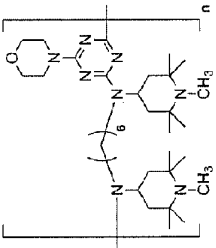
【 0 1 7 3 】

10

20

30

【表 2 - 2】

|     |                                                                                                                                                                                                                                                                                           |                                                        |      |                                                                                   |                  |   |      |
|-----|-------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------|--------------------------------------------------------|------|-----------------------------------------------------------------------------------|------------------|---|------|
| E12 |  <p>(i) 212.4 g/モル<br/>(ii) 160.9 g<br/>(iii) 0.76 モル</p>                                                                                                                                              | (i) 52.2 g<br>(ii) 1.65 モル<br>(iii) 2.2 モル当量           | トルエン |  | 99.6             | - | -    |
| E13 | <p>1,6-N,N'-Bis(2,2,6,6-テトラメチル-4-ピペリジン)-ヘキサジアミンと2,4-ジシクロロ-6-(4-ホルリニル)-1,3,5-トリアジンから形成されたポリマー (CAS 番号:082451-48-7);<br/>モノマー単位:</p>  <p>(i) モノマー単位 1 モル当たり 558.8 g<br/>(ii) 167.0 g [0.3 モルのモノマー単位]</p> | (i) 20.9 g<br>(ii) 0.66 モル<br>(iii) モノマー単位当たり 2.2 モル当量 | トルエン |  | MS-ESIは、完全な転化を示す | - | 95.0 |

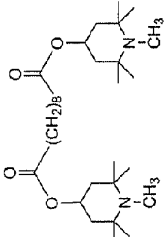
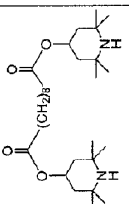
【 0 1 7 4 】

10

20

30

【表 2 - 3】

|     |                                                                                                                                 |  |  |  |  |    |
|-----|---------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------|--|--|--|--|----|
|     |                                                                                                                                 |  |  |  |  |    |
|     |                                                                                                                                 |  |  |  |  |    |
|     | 94.1                                                                                                                            |  |  |  |  | 10 |
|     |                                                |  |  |  |  |    |
|     | MeOH                                                                                                                            |  |  |  |  | 20 |
|     | (i) 34.8 g<br>(ii) 1.10 モル<br>(iii) 2.2 モル当量                                                                                    |  |  |  |  |    |
|     | <br>(i) 480.7 g/モル<br>(ii) 241.1 g [0.50 モル] |  |  |  |  | 30 |
| E14 |                                                                                                                                 |  |  |  |  |    |

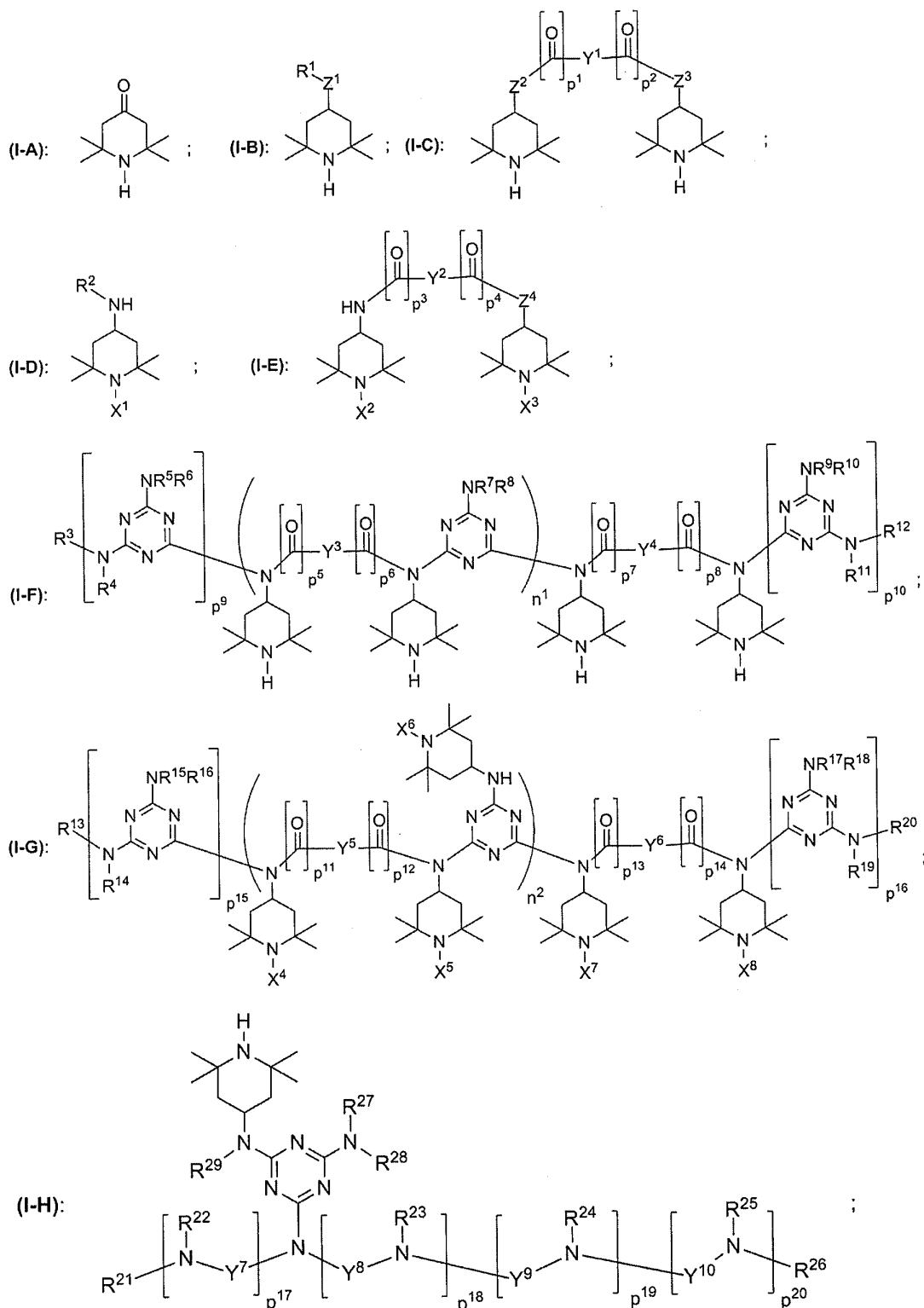
【0175】

[本発明の態様]

1. N-メチル置換されたトリアセトンアミン化合物の製造方法であって、  
 少なくとも1種のトリアセトンアミン化合物(I)とホルムアルデヒドとを還元性条件下で反応させ、その際、  
 前記トリアセトンアミン化合物(I)は、化学構造(I-A)、(I-B)、(I-C)、  
 (I-D)、(I-E)、(I-F)、(I-G)、(I-H)

40

【化 6 4】



からなる群から選択され、前記化学構造において、

$n^1$ 、 $n^2$ は、それぞれ互いに独立して、1～20の範囲からのいずれかの整数であり、  
 $p^1$ 、 $p^2$ 、 $p^3$ 、 $p^4$ 、 $p^5$ 、 $p^6$ 、 $p^7$ 、 $p^8$ 、 $p^9$ 、 $p^{10}$ 、 $p^{11}$ 、 $p^{12}$ 、 $p^{13}$ 、 $p^{14}$ 、 $p^{15}$ 、  
 $p^{16}$ 、 $p^{17}$ 、 $p^{18}$ 、 $p^{19}$ 、 $p^{20}$ は、それぞれ互いに独立して、0または1であり、  
 $X^1$ は、OH、 $-O\cdot$ 、1～10個の炭素原子を有する非分枝鎖状もしくは分枝鎖状のアルキル基、1～10個の炭素原子を有する非分枝鎖状もしくは分枝鎖状のアルコキシ基からなる群から選択され、

$X^2$ 、 $X^3$ は、水素、OH、 $-O\cdot$ 、1～10個の炭素原子を有する非分枝鎖状もしくは分

10

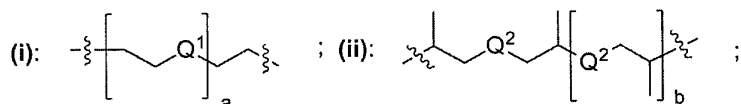
20

30

40

50

【化 6 5】

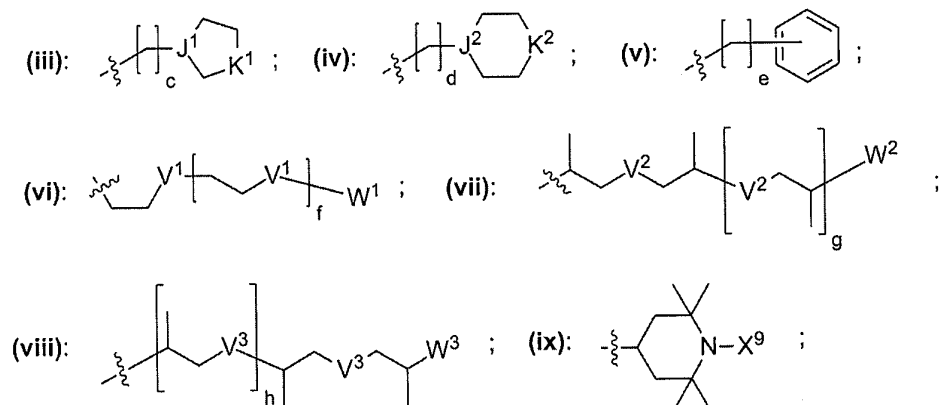


1～30個の炭素原子を有する非分枝鎖状もしくは分枝鎖状のアシル基であって、少なくとも1個の水素基が $-\text{OH}$ 、 $-\text{NH}_2$ 、 $-\text{OCH}_3$ 、 $-\text{OCH}_2\text{CH}_3$ 、 $-\text{NH}(\text{CH}_3)$

、 $-\text{N}(\text{CH}_3)_2$ 、 $-\text{NH}(\text{CH}_2\text{CH}_3)$ 、 $-\text{N}(\text{CH}_2\text{CH}_3)_2$ 、 $-\text{N}(\text{CH}_3)(\text{CH}_2\text{CH}_3)$  からなる群から選択されるいずれかの基によって置き換えられていてよい前記アシル基、

(iii)、(iv)、(v)、(vi)、(vii)、(viii)、(ix)

【化66】



10

からなる群から選択されるいずれかの化学構造を有する基

からなる群から選択され、前記化学構造において、

$\text{J}^1$ 、 $\text{J}^2$ は、それぞれ互いに独立して、 $\text{CH}$ 、 $\text{N}$ からなる群から選択され、

20

$\text{K}^1$ 、 $\text{K}^2$ は、それぞれ互いに独立して、 $-\text{O}-$ 、 $-\text{NH}-$ 、 $-\text{N}(\text{CH}_3)-$ 、 $-\text{N}(\text{CH}_2\text{CH}_3)-$ 、 $-\text{S}-$ 、 $-\text{CH}_2-$ からなる群から選択され、

$\text{V}^1$ 、 $\text{V}^2$ 、 $\text{V}^3$ は、それぞれ互いに独立して、 $-\text{O}-$ 、 $-\text{S}-$ 、 $-\text{NH}-$ 、 $-\text{NR}''-$ からなる群から選択され、ここで $\text{R}''$ は、1～6個の炭素原子を有する非分枝鎖状もしくは分枝鎖状のアルキル基であり、

$\text{W}^1$ 、 $\text{W}^2$ 、 $\text{W}^3$ は、それぞれ互いに独立して、 $\text{H}$ 、メチル、エチルからなる群から選択され、

$c$ 、 $d$ 、 $e$ 、 $f$ 、 $g$ 、 $h$ は、それぞれ互いに独立して、0～50の範囲からのいずれかの整数であり、

$\text{X}^9$ は、水素、 $-\text{OH}$ 、 $-\text{O}\cdot$ 、1～10個の炭素原子を有する非分枝鎖状もしくは分枝鎖状のアルキル基、1～10個の炭素原子を有する非分枝鎖状もしくは分枝鎖状のアルコキシ基からなる群から選択され、

30

前記化学構造(iii)、(iv)、(v)、(vi)、(vii)、(viii)、(ix)において、炭素原子に結合された少なくとも1個の水素原子は、 $-\text{OH}$ 、 $-\text{NH}_2$ 、 $-\text{OCH}_3$ 、 $-\text{OCH}_2\text{CH}_3$ 、 $-\text{NH}(\text{CH}_3)$ 、 $-\text{N}(\text{CH}_3)_2$ 、 $-\text{NH}(\text{CH}_2\text{CH}_3)$ 、 $-\text{N}(\text{CH}_2\text{CH}_3)_2$ 、 $-\text{N}(\text{CH}_3)(\text{CH}_2\text{CH}_3)$ からなる群から選択されるいずれかの基によって置き換えられていてよく、

基 $\text{R}^7$ 、 $\text{R}^8$ は、それぞれ互いに独立して、

水素、

1～30個の炭素原子を有する非分枝鎖状もしくは分枝鎖状のアルキル基であって、少なくとも1個の水素基が $-\text{OH}$ 、 $-\text{NH}_2$ 、 $-\text{OCH}_3$ 、 $-\text{OCH}_2\text{CH}_3$ 、 $-\text{NH}(\text{CH}_3)$ 、 $-\text{N}(\text{CH}_3)_2$ 、 $-\text{NH}(\text{CH}_2\text{CH}_3)$ 、 $-\text{N}(\text{CH}_2\text{CH}_3)_2$ 、 $-\text{N}(\text{CH}_3)(\text{CH}_2\text{CH}_3)$ からなる群から選択されるいずれかの基によって置き換えられていてよい前記アルキル基、

40

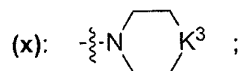
1～30個の炭素原子を有する非分枝鎖状もしくは分枝鎖状のアシル基であって、少なくとも1個の水素基が $-\text{OH}$ 、 $-\text{NH}_2$ 、 $-\text{OCH}_3$ 、 $-\text{OCH}_2\text{CH}_3$ 、 $-\text{NH}(\text{CH}_3)$ 、 $-\text{N}(\text{CH}_3)_2$ 、 $-\text{NH}(\text{CH}_2\text{CH}_3)$ 、 $-\text{N}(\text{CH}_2\text{CH}_3)_2$ 、 $-\text{N}(\text{CH}_3)(\text{CH}_2\text{CH}_3)$ からなる群から選択されるいずれかの基によって置き換えられていてよい前記アシル基

からなる群から選択され、

50

$p^9 = 1$  の場合に、 $-NR^3R^4$  は、化学構造 (x) の基であってもよく、  
 $p^{10} = 1$  の場合に、 $-NR^{11}R^{12}$  は、化学構造 (x) の基であってもよく、  
 基  $-NR^5R^6$ 、 $-NR^7R^8$ 、 $-NR^9R^{10}$  は、それぞれ互いに独立して、化学構造 (x) の基であってもよく、  
 化学構造 (x) は、以下に定義される通り：

【化 6 7】



[前記化学構造において、  
 $K^3$  は、 $-O-$ 、 $-S-$ 、 $-NH-$ 、 $-N(CH_3)-$ 、 $-N(CH_2CH_3)-$  からなる群から選択される] であり、

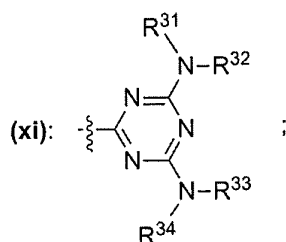
基  $R^{21}$ 、 $R^{22}$ 、 $R^{23}$ 、 $R^{24}$ 、 $R^{25}$ 、 $R^{26}$  は、それぞれ互いに独立して、

水素、

1 ~ 30 個の炭素原子を有する非分枝鎖状もしくは分枝鎖状のアルキル基、

化学構造 (xi)

【化 6 8】



を有する基

からなる群から選択され、前記化学構造において、

基  $R^{27}$ 、 $R^{28}$ 、 $R^{29}$ 、 $R^{31}$ 、 $R^{32}$ 、 $R^{33}$ 、 $R^{34}$  は、それぞれ互いに独立して、

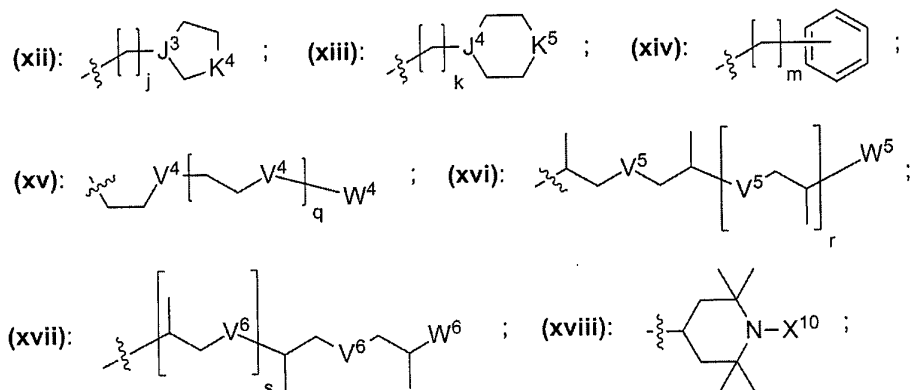
水素、

1 ~ 30 個の炭素原子を有する非分枝鎖状もしくは分枝鎖状のアルキル基であって、少なくとも 1 個の水素基が  $-OH$ 、 $-NH_2$ 、 $-OCH_3$ 、 $-OCH_2CH_3$ 、 $-NH(CH_3)$ 、 $-N(CH_3)_2$ 、 $-NH(CH_2CH_3)$ 、 $-N(CH_2CH_3)_2$ 、 $-N(CH_3)(CH_2CH_3)$  からなる群から選択されるいずれかの基によって置き換えられていてよい前記アルキル基、

1 ~ 30 個の炭素原子を有する非分枝鎖状もしくは分枝鎖状のアシル基であって、少なくとも 1 個の水素基が  $-OH$ 、 $-NH_2$ 、 $-OCH_3$ 、 $-OCH_2CH_3$ 、 $-NH(CH_3)$ 、 $-N(CH_3)_2$ 、 $-NH(CH_2CH_3)$ 、 $-N(CH_2CH_3)_2$ 、 $-N(CH_3)(CH_2CH_3)$  からなる群から選択されるいずれかの基によって置き換えられていてよい前記アシル基、

(xii)、(xiii)、(xiv)、(xv)、(xvi)、(xvii)、(xviii)

## 【化 6 9】



10

からなる群から選択されるいずれかの化学構造を有する基

からなる群から選択され、前記化学構造において、

$J^3$ 、 $J^4$ は、それぞれ互いに独立して、CH、Nからなる群から選択され、

$K^4$ 、 $K^5$ は、それぞれ互いに独立して、 $-O-$ 、 $-NH-$ 、 $-N(CH_3)-$ 、 $-N(CH_2CH_3)-$ 、 $-S-$ 、 $-CH_2-$ からなる群から選択され、

$V^4$ 、 $V^5$ 、 $V^6$ は、それぞれ互いに独立して、 $-O-$ 、 $-S-$ 、 $-NH-$ 、 $-NR''''$ からなる群から選択され、ここで $R''''$ は、1～6個の炭素原子を有する非分枝鎖状もしくは分枝鎖状のアルキル基であり、

20

$W^4$ 、 $W^5$ 、 $W^6$ は、それぞれ互いに独立して、H、メチル、エチルからなる群から選択され、

$j$ 、 $k$ 、 $m$ 、 $q$ 、 $r$ 、 $s$ は、それぞれ互いに独立して、0～50の範囲からのいずれかの整数であり、

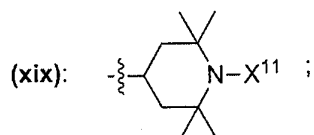
$X^{10}$ は、水素、 $-OH$ 、 $-O\cdot$ 、1～10個の炭素原子を有する非分枝鎖状もしくは分枝鎖状のアルキル基、1～10個の炭素原子を有する非分枝鎖状もしくは分枝鎖状のアルコキシ基からなる群から選択され、

前記化学構造 (xii)、(xiii)、(xiv)、(xv)、(xvi)、(xvii)、(xviii)において、炭素原子に結合された少なくとも1個の水素原子は、 $-OH$ 、 $-NH_2$ 、 $-OCH_3$ 、 $-OCH_2CH_3$ 、 $-NH(CH_3)$ 、 $-N(CH_3)_2$ 、 $-NH(CH_2CH_3)$ 、 $-N(CH_2CH_3)_2$ 、 $-N(CH_3)(CH_2CH_3)$ からなる群から選択されるいずれかの基によって置き換えられてよく、

30

但し、 $R^{21}$ および $R^{26}$ は、 $p^{17}=p^{18}=p^{19}=p^{20}=0$ の場合に、それぞれ互いに独立して、化学構造 (xix)

## 【化 7 0】



40

〔前記化学構造において、

$X^{11}$ は、水素、OH、 $-O\cdot$ 、1～10個の炭素原子を有する非分枝鎖状もしくは分枝鎖状のアルキル基、1～10個の炭素原子を有する非分枝鎖状もしくは分枝鎖状のアルコキシ基からなる群から選択される〕の基であってもよいものとし、かつ

還元性条件は、前記少なくとも1種のトリアセトンアミン化合物 (I) とホルムアルデヒドとを、水素の存在下で、かつ担体触媒の存在下で反応させることによって調整され、前記担体触媒が、少なくとも1種の金属Mを有し、前記金属Mは、V、Cr、Mo、Mn、Ni、Pd、Pt、Fe、Ru、Os、Co、Rh、Ir、Cuからなる群から選択される、ことを特徴とする前記製造方法。

2. 1に記載の方法であって、

50

$p^1 = p^2 = p^3 = p^4 = p^5 = p^6 = p^7 = p^8 = p^{11} = p^{12} = p^{13} = p^{14} = 0$  であり、かつ  $p^9$ 、 $p^{10}$ 、 $p^{15}$ 、 $p^{16}$ 、 $p^{17}$ 、 $p^{18}$ 、 $p^{19}$ 、 $p^{20}$  は、それぞれ互いに独立して、0 または 1 である、前記方法。

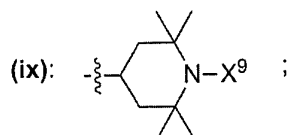
3. 1 または 2 に記載の方法であって、  
 $Y^1$ 、 $Y^2$ 、 $Y^3$ 、 $Y^4$ 、 $Y^5$ 、 $Y^6$ 、 $Y^7$ 、 $Y^8$ 、 $Y^9$ 、 $Y^{10}$  は、それぞれ互いに独立して、  
 1 ～ 30 個の炭素原子を有する非分枝鎖状もしくは分枝鎖状のアルキレン基、  
 3 ～ 30 個の炭素原子を有する二価の飽和炭化水素基であって、3 ～ 30 個の炭素原子からなる少なくとも 1 個の飽和環を有する前記二価の飽和炭化水素基、  
 からなる群から選択される、前記方法。

4. 1 から 3 までのいずれかに記載の方法であって、  
 基  $R^1$ 、 $R^2$ 、 $R^3$ 、 $R^4$ 、 $R^5$ 、 $R^6$ 、 $R^9$ 、 $R^{10}$ 、 $R^{11}$ 、 $R^{12}$ 、 $R^{13}$ 、 $R^{14}$ 、 $R^{15}$ 、 $R^{16}$ 、 $R^{17}$ 、 $R^{18}$ 、 $R^{19}$ 、 $R^{20}$ 、 $R^{30}$  は、それぞれ互いに独立して、  
 水素、

1 ～ 30 個の炭素原子を有する非分枝鎖状もしくは分枝鎖状のアルキル基であって、少なくとも 1 個の水素基が  $-OH$ 、 $-NH_2$ 、 $-OCH_3$ 、 $-OCH_2CH_3$ 、 $-NH(CH_3)$ 、 $-N(CH_3)_2$ 、 $-NH(CH_2CH_3)$ 、 $-N(CH_2CH_3)_2$ 、 $-N(CH_3)(CH_2CH_3)$  からなる群から選択されるいずれかの基によって置き換えられていてよい前記アルキル基、

化学構造 (ix)

【化 7 1】



を有する基

からなる群から選択され、前記化学構造において、

$X^9$  は、水素、 $-OH$ 、 $-O\cdot$ 、1 ～ 10 個の炭素原子を有する非分枝鎖状もしくは分枝鎖状のアルキル基、1 ～ 10 個の炭素原子を有する非分枝鎖状もしくは分枝鎖状のアルコキシ基からなる群から選択され、

基  $R^7$ 、 $R^8$  は、それぞれ互いに独立して、

水素、

1 ～ 30 個の炭素原子を有する非分枝鎖状もしくは分枝鎖状のアルキル基であって、少なくとも 1 個の水素基が  $-OH$ 、 $-NH_2$ 、 $-OCH_3$ 、 $-OCH_2CH_3$ 、 $-NH(CH_3)$ 、 $-N(CH_3)_2$ 、 $-NH(CH_2CH_3)$ 、 $-N(CH_2CH_3)_2$ 、 $-N(CH_3)(CH_2CH_3)$  からなる群から選択されるいずれかの基によって置き換えられていてよい前記アルキル基

からなる群から選択され、

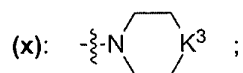
$p^9 = 1$  の場合に、 $-NR^3R^4$  は、化学構造 (x) の基であってもよく、

$p^{10} = 1$  の場合に、 $-NR^{11}R^{12}$  は、化学構造 (x) の基であってもよく、

基  $-NR^5R^6$ 、 $-NR^7R^8$ 、 $-NR^9R^{10}$  は、それぞれ互いに独立して、化学構造 (x) の基であってもよく、

化学構造 (x) は、以下に定義される通り：

【化 7 2】



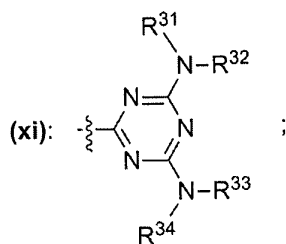
[前記化学構造において、

$K^3$  は、 $-O-$ 、 $-S-$ 、 $-NH-$ 、 $-N(CH_3)-$ 、 $-N(CH_2CH_3)-$  からなる群から選択される] であり、

基  $R^{21}$ 、 $R^{22}$ 、 $R^{23}$ 、 $R^{24}$ 、 $R^{25}$ 、 $R^{26}$  は、それぞれ互いに独立して、  
水素、

1～30個の炭素原子を有する非分枝鎖状もしくは分枝鎖状のアルキル基、  
化学構造 (xi)

【化73】



10

を有する基

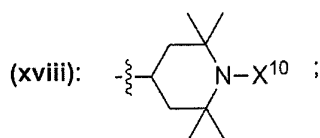
からなる群から選択され、前記化学構造において、

基  $R^{27}$ 、 $R^{28}$ 、 $R^{29}$ 、 $R^{31}$ 、 $R^{32}$ 、 $R^{33}$ 、 $R^{34}$  は、それぞれ互いに独立して、  
水素、

1～30個の炭素原子を有する非分枝鎖状もしくは分枝鎖状のアルキル基であって、少なくとも1個の水素基が  $-OH$ 、 $-NH_2$ 、 $-OCH_3$ 、 $-OCH_2CH_3$ 、 $-NH(CH_3)$ 、 $-N(CH_3)_2$ 、 $-NH(CH_2CH_3)$ 、 $-N(CH_2CH_3)_2$ 、 $-N(CH_3)(CH_2CH_3)$  からなる群から選択されるいずれかの基によって置き換えられていてよい前記アルキル基、

化学構造 (xviii)

【化74】



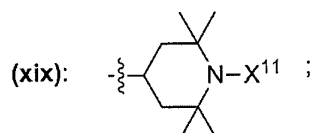
を有する基

からなる群から選択され、前記化学構造において、

$X^{10}$  は、水素、 $-OH$ 、 $-O\cdot$ 、1～10個の炭素原子を有する非分枝鎖状もしくは分枝鎖状のアルキル基、1～10個の炭素原子を有する非分枝鎖状もしくは分枝鎖状のアルコキシ基からなる群から選択され、

但し、 $R^{21}$  および  $R^{26}$  は、 $p^{17} = p^{18} = p^{19} = p^{20} = 0$  の場合に、それぞれ互いに独立して、化学構造 (xix)

【化75】



40

[前記化学構造において、

$X^{11}$  は、水素、 $OH$ 、 $-O\cdot$ 、1～10個の炭素原子を有する非分枝鎖状もしくは分枝鎖状のアルキル基、1～10個の炭素原子を有する非分枝鎖状もしくは分枝鎖状のアルコキシ基からなる群から選択される] の基であってもよいものとする、前記方法。

5. 1から4までのいずれかに記載の方法であって、  
 $X^4 = X^5 = X^6 = X^7 = X^8 = X^9 = X^{10} = X^{11}$  = 水素である、前記方法。

6. 1から5までのいずれかに記載の方法であって、  
前記トリアセトンアミン化合物 (I) は、化学構造 (I-A)、(I-B)、(I-C)

50

、(I-D)、(I-E)からなる群から選択される、前記方法。

7. 1から6までのいずれかに記載の方法であって、  
前記トリアセトンアミン化合物(I)は、化学構造(I-A)、(I-B)、(I-D)  
からなる群から選択され、

Z<sup>1</sup>は、-O-、-S-、-NR<sup>30</sup>-からなる群から選択され、  
基R<sup>1</sup>、R<sup>2</sup>、R<sup>30</sup>は、それぞれ互いに独立して、

水素、

1~30個の炭素原子を有する非分枝鎖状もしくは分枝鎖状のアルキル基であって、少なくとも1個の水素基が-OH、-NH<sub>2</sub>、-OCH<sub>3</sub>、-OCH<sub>2</sub>CH<sub>3</sub>、-NH(CH<sub>3</sub>)、-N(CH<sub>3</sub>)<sub>2</sub>、-NH(CH<sub>2</sub>CH<sub>3</sub>)、-N(CH<sub>2</sub>CH<sub>3</sub>)<sub>2</sub>、-N(CH<sub>3</sub>)(CH<sub>2</sub>CH<sub>3</sub>)からなる群から選択されるいずれかの基によって置き換えられていてよい前記アルキル基

10

からなる群から選択される、前記方法。

8. 1から7までのいずれかに記載の方法であって、  
前記トリアセトンアミン化合物(I)は、化学構造(I-A)、(I-B)、(I-D)  
からなる群から選択され、

Z<sup>1</sup>は、-O-、-NR<sup>30</sup>-からなる群から選択され、  
基R<sup>1</sup>、R<sup>2</sup>、R<sup>30</sup>は、それぞれ互いに独立して、

水素、

1~12個の炭素原子を有する非分枝鎖状もしくは分枝鎖状のアルキル基  
からなる群から選択される、前記方法。

20

9. 1から8までのいずれかに記載の方法であって、  
ホルムアルデヒドは、ガスとして、水溶液として、または固体として使用される、前記方法。

10. 1から9までのいずれかに記載の方法であって、  
前記少なくとも1種のトリアセトンアミン化合物(I)とホルムアルデヒドとを還元性条件下で少なくとも1種の溶剤中で反応させ、前記溶剤は、脂肪族溶剤、芳香族溶剤、エーテル、ハロゲン化溶剤、アミド、チオ化合物、カルボン酸、アルコール、水からなる群から選択される、前記方法。

11. 1から10までのいずれかに記載の方法であって、  
前記少なくとも1種のトリアセトンアミン化合物(I)とホルムアルデヒドとを還元性条件下で20℃から350℃までの範囲の温度および2 barから500 barまでの範囲の圧力で反応させる、前記方法。

30

フロントページの続き

- (74)代理人 100162880  
弁理士 上島 類
- (72)発明者 ヨヘン ニーマイアー  
ドイツ連邦共和国 エッセン ハイニッケシュトラッセ 22
- (72)発明者 ベンヤミン ヴィリー  
ドイツ連邦共和国 デュッセルドルフ トゥールーザー アレー 9
- (72)発明者 フェリックス ニッセン  
ドイツ連邦共和国 ノットウルン ニーダーシュトックマー ヴェーク 81
- (72)発明者 マンフレート ノイマン  
ドイツ連邦共和国 マール グライフェンベアガー シュトラッセ 14
- (72)発明者 ギュンター クライルカンブ  
ドイツ連邦共和国 マール グリュネ シュトラッセ 35
- (72)発明者 ザビーネ シェーリング  
ドイツ連邦共和国 シェアムベック ゲオアクシュトラッセ 17

審査官 伊藤 幸司

- (56)参考文献 特開平08-245588 (JP, A)  
特開昭53-002477 (JP, A)  
米国特許第04435572 (US, A)  
特開2014-105193 (JP, A)  
特開2011-168566 (JP, A)  
特開2008-214478 (JP, A)  
特開昭62-056472 (JP, A)  
特開平02-133620 (JP, A)  
特表2004-531611 (JP, A)  
特開昭53-105480 (JP, A)  
中国特許出願公開第101768104 (CN, A)  
社団法人日本化学会編, 第4版実験化学講座20 有機合成I Iーアルコール・アミン, 丸善株式会社, 1996年 4月25日, 第300~303頁  
J. Org. Chem., 1962年, 27, pp.1695-1703

- (58)調査した分野(Int.Cl., DB名)  
C07D  
CAplus/REGISTRY/CASREACT (STN)