

【公報種別】特許法第17条の2の規定による補正の掲載

【部門区分】第3部門第2区分

【発行日】平成18年4月20日(2006.4.20)

【公開番号】特開2004-43465(P2004-43465A)

【公開日】平成16年2月12日(2004.2.12)

【年通号数】公開・登録公報2004-006

【出願番号】特願2003-178437(P2003-178437)

【国際特許分類】

**C 0 7 C 51/58 (2006.01)**

**B 0 1 J 27/12 (2006.01)**

**C 0 7 C 53/50 (2006.01)**

**C 0 7 C 59/135 (2006.01)**

C 0 7 B 61/00 (2006.01)

【F I】

C 0 7 C 51/58

B 0 1 J 27/12 Z

C 0 7 C 53/50

C 0 7 C 59/135

C 0 7 B 61/00 3 0 0

【手続補正書】

【提出日】平成18年3月8日(2006.3.8)

【手続補正1】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】特許請求の範囲

【補正方法】変更

【補正の内容】

【特許請求の範囲】

【請求項1】 フッ化カルボニル( $\text{COF}_2$ )を一般式： $\text{T} = \text{CR}_1\text{R}_2$

(I)を有する化合物と反応することによりフッ化アシルを生成する方法であって、ここで、

TはOまたは $\text{CF}_2$ であり、

$\text{R}_1$ および $\text{R}_2$ は、等しいかまたは異なって、Fまたは $\text{R}(\text{O})_t$ 基であり、但し、 $\text{T} = \text{CF}_2$ である場合、

R = 任意に1個以上の酸素原子を含む線状または分岐 $\text{C}_1 - \text{C}_7$ (パー)フルオロアルキル、好ましくは $\text{C}_1 - \text{C}_5$ 、

tは、0または1に等しい整数である、

Tが酸素である場合、

$\text{R}_1$ および $\text{R}_2$ は、互いに等しく、 $\text{R} = \text{C}_1 - \text{C}_7$ (パー)フルオロアルキルであり、任意に1個以上の酸素原子を含有し、 $t = 0$ である、

また、多孔性化合物に支持された触媒が使用され、前記触媒は、

$\text{CsF}$ 、 $\text{RbF}$ 、 $\text{KF}$ 、 $\text{AgF}$ から選択され、各々は、任意に1以上のそれ以外のものと混合しても良く、

多孔性化合物が反応条件下で不活性な化合物によって生成され、水銀ヘリウム方法によって決定され、0.2よりも高く、好ましくは0.3よりも高い気孔容積と全固体容積との比で表される気孔率を有する、フッ化アシルの生成方法。

【請求項2】  $\text{COF}_2$ と式(I)の化合物とのモル比が、1:1~6:1である請求項1に記載の方法。

【請求項3】 触媒支持体を形成する多孔性化合物が、以下の群：

アルカリ金属フッ化物、好ましくは  $\text{LiF}$  および  $\text{NaF}$ 、  
アルカリ土類金属フッ化物、好ましくは  $\text{CaF}_2$ 、 $\text{BaF}_2$ 、 $\text{MgF}_2$ 、 $\text{SrF}_2$ 、  
 $\text{AgF}$

の少なくとも 1 個から選択された 1 個以上のフッ化物によって構成される請求項 1 又は 2 に記載の方法。

【請求項 4】 多孔性支持体が、触媒として示される 1 個以上のフッ化物によって生成される場合、多孔性支持体は触媒を生成する請求項 1 ~ 3 のいずれか 1 つに記載の方法。

【請求項 5】 温度が、 $100 \sim 400$ 、好ましくは  $150 \sim 300$  の範囲である請求項 1 ~ 4 のいずれか 1 つに記載の方法。

【請求項 6】 気相で行われる請求項 1 ~ 5 のいずれか 1 つに記載の方法。

【請求項 7】 連続法またはバッチで行われる請求項 1 ~ 6 のいずれか 1 つに記載の方法。

【請求項 8】 使用される圧力が、大気圧から  $40 \text{ Atm}$  ( $4.05 \times 10^6 \text{ Pa}$ ) までの範囲である請求項 1 ~ 7 のいずれか 1 つに記載の方法。

【請求項 9】 不活性ガス、好ましくは窒素もしくはヘリウム、又はパーフルオロカーボンもしくはパーフルオロエーテル、好ましくは  $\text{C}_3\text{F}_8$ 、 $\text{C}_2\text{F}_6$ 、シクロ  $\text{C}_4\text{F}_8$ 、 $\text{C}_4\text{F}_{10}$  が希釈剤として用いられる請求項 1 ~ 8 のいずれか 1 つに記載の方法。

【請求項 10】 接触時間が 2 秒 ~ 1 分で連続的に行われる請求項 7 ~ 9 のいずれか 1 つに記載の方法。

【請求項 11】 支持される金属フッ化物触媒の重量濃度が  $1 \sim 40$  重量%であり、好ましくは  $10 \sim 30$  重量%である請求項 1 ~ 10 のいずれか 1 つに記載の方法。

【請求項 12】 触媒が、 $\text{NaF}$  に担持された  $\text{CsF}$  である請求項 1 ~ 11 のいずれか 1 つに記載の方法。

【請求項 13】 双極性非プロトン性溶媒の存在下、使用される触媒の重量以下の重量で操作される請求項 1 ~ 12 のいずれか 1 つに記載の方法。

【手続補正 2】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0008

【補正方法】変更

【補正の内容】

【0008】

【発明の実施の形態】

本発明の目的は、フッ化カルボニル ( $\text{COF}_2$ ) を一般式： $\text{T} = \text{CR}_1\text{R}_2$

(I) を有する化合物と反応することによりフッ化アシルを生成する方法であって、ここで、

$\text{T}$  は  $\text{O}$  または  $\text{CF}_2$  であり、

$\text{R}_1$  および  $\text{R}_2$  は、等しいかまたは異なって、 $\text{F}$  または  $\text{R}(\text{O})_t$  基であり、但し、 $\text{T} = \text{CF}_2$  である場合、

$\text{R}$  = 任意に 1 個以上の酸素原子を含む線状または分岐  $\text{C}_1 - \text{C}_7$  (パー)フルオロアルキル、好ましくは  $\text{C}_1 - \text{C}_5$ 、

$t$  は、0 または 1 に等しい整数である、

$\text{T}$  が酸素である場合、

$\text{R}_1$  および  $\text{R}_2$  は、互いに等しく、 $\text{R} = \text{C}_1 - \text{C}_7$  (パー)フルオロアルキルであり、任意に 1 個以上の酸素原子を含有し、 $t = 0$  である、

また、多孔性化合物に支持された触媒が使用され、前記触媒は、

$\text{CsF}$ 、 $\text{RbF}$ 、 $\text{KF}$ 、 $\text{AgF}$  から選択され、各々は、任意に 1 以上のそれ以外のものと混合しても良く、

多孔性化合物が反応条件下で不活性な化合物によって生成され、水銀ヘリウム方法によって決定され、 $0.2$  よりも高く、好ましくは  $0.3$  よりも高い気孔容積と全固体容積との

比で表される気孔率を有する。

【手続補正3】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0015

【補正方法】変更

【補正の内容】

【0015】

支持される触媒としての金属フッ化物の重量濃度は1～40重量%であり、10～30重量%までが好ましい。

好ましい支持触媒は、触媒としてCsFおよび支持体としてNaFを用いる。

触媒は、固定床または流動床に適する粒径を有する。固定床の場合には、一般に、最小粒径が0.05mm以上でなければならない。可能な粒径は、球、円柱または顆粒等の触媒支持体化合物形状に依存する。

上記のように、本発明の触媒は、式(I)の化合物、好ましくは(パー)フルオロオレフィンとCOF<sub>2</sub>との反応に用いられる。