

【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25年1月31日 (2013.1.31)

【公表番号】特表2012-522048(P2012-522048A)

【公表日】平成24年9月20日 (2012.9.20)

【年通号数】公開・登録公報2012-038

【出願番号】特願2012-503408(P2012-503408)

【国際特許分類】

C 0 7 C 45/50 (2006.01)

C 0 7 C 47/02 (2006.01)

B 0 1 J 31/24 (2006.01)

C 0 7 B 61/00 (2006.01)

【F I】

C 0 7 C 45/50

C 0 7 C 47/02

B 0 1 J 31/24 Z

C 0 7 B 61/00 3 0 0

【手続補正書】

【提出日】平成24年12月6日 (2012.12.6)

【手続補正 1】

【補正対象書類名】特許請求の範囲

【補正対象項目名】全文

【補正方法】変更

【補正の内容】

【特許請求の範囲】

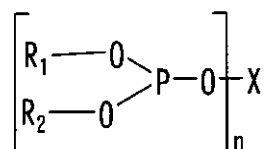
【請求項 1】

少なくとも 1 種のアルデヒド生成物を連続的に製造するヒドロホルミル化方法であって、当該方法がヒドロホルミル化反応流体中において、連続反応条件下に、二重オープンエンド型オルガノポリホスファイトリガンド及びオルガノモノホスフィンリガンドの混合物であって、その少なくとも 1 方のリガンドが遷移金属に結合している混合物の存在下に、1 種又はそれ以上のオレフィン性不飽和化合物、一酸化炭素及び水素を接触させて、遷移金属-リガンド錯体ヒドロホルミル化触媒を形成させる工程を含んで成り；前記オルガノポリホスファイトリガンドが、それぞれ 3 つのヒドロカルビルオキシラジカルと結合した複数のリン(III)原子を含み、その任意の非架橋種が(置換又は非置換の)アリアルオキシラジカルから本質的に成り；前記金属に対する前記オルガノモノホスフィン及び前記オルガノポリホスファイトの両方のモル比が少なくとも 1 となる様式で前記接触を実施する方法。

【請求項 2】

前記オルガノポリホスファイトリガンドが以下の式：

## 【化 1】



(式中、 $n$ は2～4であり、 $X$ は2～40の炭素原子を含む置換又は非置換の $n$ 価の有機架橋ラジカルを表し、そしてそれぞれの $R_1$ 及び $R_2$ は同一であるか又は相違し、且つ6～40の炭素原子を含む置換又は非置換の1価のアリールラジカルを表す)によって表される請求項1に記載の方法。

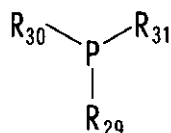
## 【請求項3】

前記遷移金属に対するオルガノポリホスファイトリガンドのモル比が、オルガノポリホスファイトリガンドを前記反応流体に添加することによって増加又は維持される請求項1又は2に記載の方法。

## 【請求項4】

前記オルガノモノホスフィンリガンドが以下の式：

## 【化 2】



(式中、 $R_{29}$ 、 $R_{30}$ 及び $R_{31}$ は、それぞれ独立に、4～40又はそれより多い炭素原子を含むアルキルもしくはシクロアルキルラジカル又は置換もしくは非置換のアリールラジカルを表し、且つ同一であっても、又は相違してもよい)によって表される請求項1～3のいずれか1項に記載の方法。

## 【請求項5】

前記 $R_{29}$ 、 $R_{30}$ 及び $R_{31}$ が、それぞれ独立に、4～40又はそれより多い炭素原子を含む置換又は非置換のアリールラジカルを表す請求項4に記載の方法。

## 【請求項6】

前記オルガノモノホスフィンリガンドがトリフェニルホスフィンである請求項1～5のいずれか1項に記載の方法。

## 【請求項7】

前記遷移金属の濃度が、ヒドロホルミル化反応流体の重量に基づき、100万分の1(ppm)超で且つ500ppm未満である請求項1～6のいずれか1項に記載の方法。

## 【請求項8】

前記工程温度が-25超で且つ200未満である請求項1～7のいずれか1項に記載の方法。

## 【請求項9】

前記一酸化炭素、水素及びオレフィン反応体(複数)を含む総ガス圧力が2.5psia(172kPa)超で且つ2,000psia(13,790kPa)未満である請求項1～8のいずれか1項に記載の方法。

## 【請求項10】

前記オレフィンが2～30の炭素原子を有するアキラル - オレフィン又は4～20の

炭素原子を有するアキラル内部オレフィンである請求項 1 ~ 9 のいずれか 1 項に記載の方法。

【請求項 1 1】

前記一酸化炭素及び水素が 1 : 10 ~ 100 : 1 の  $H_2 : CO$  モル比を与える量で存在する請求項 1 ~ 10 のいずれか 1 項に記載の方法。

【請求項 1 2】

前記遷移金属がロジウム、コバルト、イリジウム、ルテニウム及びその混合物から選定されるVIII族金属である請求項 1 ~ 11 のいずれか 1 項に記載の方法。

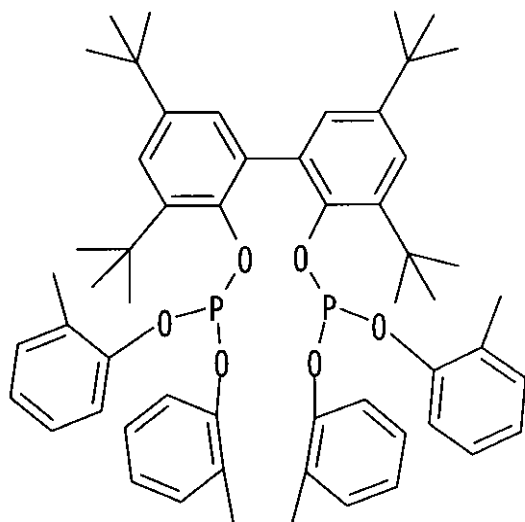
【請求項 1 3】

オルガノポリホスファイトリガンドの混合物を用いるか；又はオルガノモノホスフィンリガンドの混合物を用いるか；又はオルガノポリホスファイトリガンドの混合物及びオルガノモノホスフィンリガンドの混合物を一緒に用いる請求項 1 ~ 12 のいずれか 1 項に記載の方法。

【請求項 1 4】

1 種又はそれ以上の反応体、一酸化炭素及び水素をヒドロホルミル化触媒の存在下に反応させて、1 種又はそれ以上の生成物を含む反応生成物流体を生成させることを含んで成るヒドロホルミル化方法であって、前記反応を触媒金属、トリアリールホスフィン化合物及び式

【化 3】



の二重オープンエンド型ビスホスファイトリガンド(リガンド A)の存在下に、実施する方法。

【請求項 1 5】

少なくとも 1 種のアルデヒド生成物を連続的に製造するヒドロホルミル化方法であって：当該方法がヒドロホルミル化反応流体中において、連続反応条件下に、リガンド A 及びトリフェニルホスフィンの混合物であって、その少なくとも 1 つのリガンドが遷移金属に結合している混合物の存在下に、1 種又はそれ以上の  $C_2 \sim C_4$  アキラルオレフィン、一酸化炭素及び水素を接触させて、遷移金属-リガンド錯体ヒドロホルミル化触媒を生成させる工程を含んで成る方法であって、前記金属がロジウムを含み、前記金属に対する前記オルガノモノホスフィン及び前記オルガノポリホスファイトの両方のモル比が少なくとも 1 である様式で前記接触を実施し、前記プロセス温度が  $-25$  超で且つ  $200$  未満であり、そして前記一酸化炭素、水素及びオレフィン反応体(複数)を含む総ガス圧力が、 $2.5 \text{ psia}$  ( $172 \text{ kPa}$ ) 超で且つ  $2,000 \text{ psia}$  ( $13,790 \text{ kPa}$ ) 未満である方法。