

【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6月15日(2006.6.15)

【公表番号】特表2002-511444(P2002-511444A)

【公表日】平成14年4月16日(2002.4.16)

【出願番号】特願2000-543417(P2000-543417)

【国際特許分類】

C 07 C	67/08	(2006.01)
C 07 B	61/00	(2006.01)
C 07 C	51/353	(2006.01)
C 07 C	57/04	(2006.01)
C 07 C	69/54	(2006.01)

【F I】

C 07 C	67/08	
C 07 B	61/00	3 0 0
C 07 C	51/353	
C 07 C	57/04	
C 07 C	69/54	Z

【手続補正書】

【提出日】平成18年4月7日(2006.4.7)

【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】

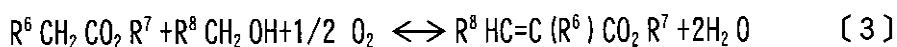
【特許請求の範囲】

【請求項1】ニオブ触媒の存在下に、そしてバナジウム及びリンの不存在下に、エステル又はカルボン酸を、酸素及びアルコールと反応させて、それぞれ、-不飽和エステル又はカルボン酸を製造する工程を含む、ニオブ触媒を使用する方法。

【請求項2】メタノールをアルコールとして使用し、そしてエステル又はカルボン酸を酸素及びメタノールを含む蒸気流中でニオブ触媒上を通過させる請求項1に記載のニオブ触媒の使用方法。

【請求項3】エステル又はカルボン酸と酸素及びアルコールとの反応が、反応〔3〕：

【化1】



(式中、R<sup>6</sup>～R<sup>8</sup>は独立に、有機基又は水素原子である)

に従う請求項1に記載のニオブ触媒の使用方法。

【請求項4】R<sup>8</sup>が水素原子、アルキル基、アリール基及びオレフィン基からなる群から選ばれる請求項3に記載のニオブ触媒の使用方法。

【請求項5】R<sup>6</sup>が水素原子、アルキル基、アリール基、アラルキル基、シクロアルキル基及びアルキルアリール基からなる群から選ばれる請求項3に記載のニオブ触媒の使用方法。

【請求項6】ニオブ触媒の存在下に、そしてバナジウム及びリンの不存在下に、エ

ステルと酸素とを反応させて、、、-不飽和カルボン酸を製造する工程を含むニオブ触媒の使用方法。

【請求項 7】ニオブ触媒が1~70重量%の範囲内の元素状ニオブを含む請求項1又は6に記載のニオブ触媒の使用方法。

【請求項 8】プロセスを250~350の温度で操作する請求項1又は6に記載のニオブ触媒の使用方法。

【請求項 9】プロセスを0.5~5絶対atmの圧力で操作する請求項1又は6に記載のニオブ触媒の使用方法。

【請求項 10】不活性ガスで希釈した反応剤の蒸気流をニオブ触媒上を通過させる請求項1又は6に記載のニオブ触媒の使用方法。

**【手続補正2】**

**【補正対象書類名】明細書**

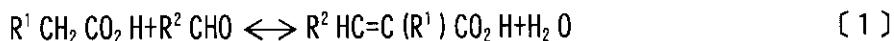
**【補正対象項目名】0004**

**【補正方法】変更**

**【補正の内容】**

**【0004】**

**【化2】**



**【手続補正3】**

**【補正対象書類名】明細書**

**【補正対象項目名】0005**

**【補正方法】変更**

**【補正の内容】**

**【0005】**

に示される。アクリル酸を生成するホルムアルデヒドと酢酸との縮合に於いて、R<sup>1</sup>及びR<sup>2</sup>は水素原子である。メタクリル酸を生成するホルムアルデヒドとプロピオン酸との縮合に於いて、R<sup>1</sup>はメチル基であり、R<sup>2</sup>は水素原子である。反応[1]及び次の反応を理解するために、反応剤であるアルデヒド中に示される炭素原子(R<sup>2</sup>C<sub>2</sub>H<sub>4</sub>O)が、反応剤である酸中の-C<sub>2</sub>H<sub>3</sub>O基と二重結合を形成することに注目することが重要である。反応剤である酸中の-C<sub>2</sub>H<sub>3</sub>O基は、酸の炭素に隣接する炭素原子(R<sup>1</sup>C<sub>2</sub>H<sub>2</sub>CO<sub>2</sub>H)である。R<sup>1</sup>は、反応剤である酸及び生成物である酸の両方に於いて、-C<sub>2</sub>H<sub>3</sub>O基に結合している。しかしながら、生成物の空間関係のために、R<sup>1</sup>は生成物の中間に示され、一方R<sup>2</sup>は左側に示される。

**【手続補正4】**

**【補正対象書類名】明細書**

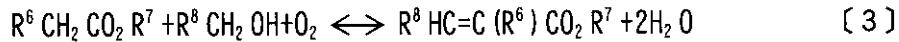
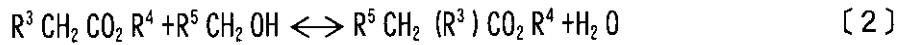
**【補正対象項目名】0007**

**【補正方法】変更**

**【補正の内容】**

**【0007】**

【化3】



【手続補正5】

【補正対象書類名】明細書

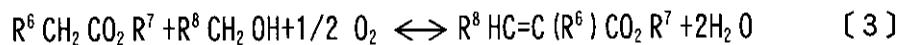
【補正対象項目名】0 0 1 4

【補正方法】変更

【補正の内容】

【0 0 1 4】

【化4】



【手続補正6】

【補正対象書類名】明細書

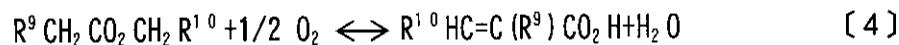
【補正対象項目名】0 0 1 7

【補正方法】変更

【補正の内容】

【0 0 1 7】

【化5】



【手続補正7】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0 0 2 6

【補正方法】変更

【補正の内容】

【0 0 2 6】

【化6】



【手続補正8】

【補正対象書類名】明細書

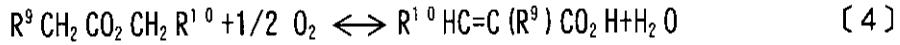
【補正対象項目名】0 0 3 1

【補正方法】変更

【補正の内容】

【0 0 3 1】

【化 7】



【手続補正 9】

【補正対象書類名】明細書

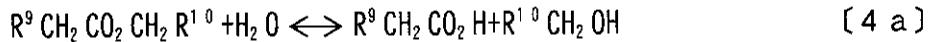
【補正対象項目名】0 0 3 4

【補正方法】変更

【補正の内容】

【0 0 3 4】

【化 8】



【手続補正 1 0】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0 0 3 6

【補正方法】変更

【補正の内容】

【0 0 3 6】

【化 9】



【手続補正 1 1】

【補正対象書類名】明細書

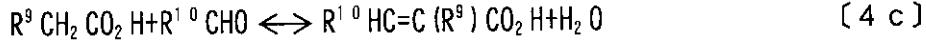
【補正対象項目名】0 0 3 8

【補正方法】変更

【補正の内容】

【0 0 3 8】

【化 1 0】



【手続補正 1 2】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】 0 0 5 2

【補正方法】 変更

【補正の内容】

【0 0 5 2】

本発明を、その好ましい態様及び実施例を特に参照して詳細に説明したが、変形及び修正が本発明の精神及び範囲内で実施できることはいうまでもない。

以下に本発明の態様を列挙する。

1. ニオブ触媒の存在下に、エステル又はカルボン酸を、酸素及びアルコールと反応させて、それぞれ、- 不飽和エステル又はカルボン酸を製造する工程を含む、ニオブ触媒を使用する方法。

2. メタノールをアルコールとして使用し、そしてエステル又はカルボン酸を酸素及びメタノールを含む蒸気流中でニオブ触媒上を通過させる態様 1 に記載のニオブ触媒の使用方法。

3. エステル又はカルボン酸と酸素及びアルコールとの反応が、前記反応〔3〕に従う態様 1 に記載のニオブ触媒の使用方法。

4. R<sup>8</sup> が水素原子、アルキル基、アリール基及びオレフィン基からなる群から選ばれる態様 3 に記載のニオブ触媒の使用方法。

5. R<sup>6</sup> が水素原子、アルキル基、アリール基、アラルキル基、シクロアルキル基及びアルキルアリール基からなる群から選ばれる態様 3 に記載のニオブ触媒の使用方法。

6. R<sup>6</sup> が炭素数 2 1 以下の鎖長を有するオレフィン鎖又はアルキル鎖である態様 3 に記載のニオブ触媒の使用方法。

7. カルボン酸又はエステル反応剤が炭素数 1 5 以下の鎖長を有する態様 1 に記載のニオブ触媒の使用方法。

8. R<sup>6</sup> がメチル基である態様 3 に記載のニオブ触媒の使用方法。

9. ニオブ触媒として酸化ニオブを使用する態様 1 に記載のニオブ触媒の使用方法。

10. 触媒として担体上の酸化ニオブを使用する態様 1 に記載のニオブ触媒の使用方法。

11. 担体が酸化ケイ素、酸化アルミニウム、酸化チタン及びこれらの混合物からなる群から選ばれる酸化物である態様 1 に記載のニオブ触媒の使用方法。

12. 触媒がフッ化ニオブを酸化ケイ素、酸化アルミニウム、酸化チタン及びこれらの混合物からなる群から選ばれる酸化物と反応させることによって生成される態様 1 に記載のニオブ触媒の使用方法。

13. ニオブ触媒が 1 ~ 7 0 重量 % の範囲内の元素状ニオブを含む態様 1 に記載のニオブ触媒の使用方法。

14. ニオブ触媒が 1 0 ~ 3 0 重量 % の範囲内の元素状ニオブを含む態様 1 に記載のニオブ触媒の使用方法。

15. ニオブ触媒の存在下にエステルと酸素とを反応させて、- 不飽和カルボン酸を製造する工程を含むニオブ触媒の使用方法。

16. メチルエステルを酸素と反応させる態様 1 5 に記載のニオブ触媒の使用方法。

17. エステルと酸素との反応が、前記反応〔4〕に従う態様 1 5 に記載のニオブ触媒の使用方法。

18. R<sup>9</sup> が水素原子、アルキル基、アリール基及びオレフィン基からなる群から選ばれ、そして R<sup>10</sup> がメチル基である態様 1 7 に記載のニオブ触媒の使用方法。

19. ニオブ触媒として酸化ニオブを使用する態様 1 5 に記載のニオブ触媒の使用方法。

20. 触媒として担体上の酸化ニオブを使用する態様 1 5 に記載のニオブ触媒の使用方法。

21. 担体が酸化ケイ素、酸化アルミニウム、酸化チタン及びこれらの混合物からなる群から選ばれる酸化物である態様 1 5 に記載のニオブ触媒の使用方法。

22. 触媒が、フッ化ニオブを、酸化ケイ素、酸化アルミニウム、酸化チタン及びこれ

らの混合物からなる群から選ばれる酸化物と反応させることによって生成される態様 1 5 に記載のニオブ触媒の使用方法。

2 3 . ニオブ触媒が 1 ~ 7 0 重量 % の範囲内の元素状ニオブを含む態様 1 5 に記載のニオブ触媒の使用方法。

2 4 . ニオブ触媒が 1 0 ~ 3 0 重量 % の範囲内の元素状ニオブを含む態様 1 5 に記載のニオブ触媒の使用方法。

2 5 . プロセスを 1 5 0 ~ 4 5 0 の温度で操作する態様 1 に記載のニオブ触媒の使用方法。

2 6 . プロセスを 1 5 0 ~ 4 5 0 の温度で操作する態様 1 5 に記載のニオブ触媒の使用方法。

2 7 . プロセスを 2 5 0 ~ 3 5 0 の温度で操作する態様 1 に記載のニオブ触媒の使用方法。

2 8 . プロセスを 2 5 0 ~ 3 5 0 の温度で操作する態様 1 5 に記載のニオブ触媒の使用方法。

2 9 . プロセスを 0 . 1 ~ 1 5 絶対 atm の圧力で操作する態様 1 に記載のニオブ触媒の使用方法。

3 0 . プロセスを 0 . 1 ~ 1 5 絶対 atm の圧力で操作する態様 1 5 に記載のニオブ触媒の使用方法。

3 1 . プロセスを 0 . 5 ~ 5 絶対 atm の圧力で操作する態様 1 に記載のニオブ触媒の使用方法。

3 2 . プロセスを 0 . 5 ~ 5 絶対 atm の圧力で操作する態様 1 5 に記載のニオブ触媒の使用方法。

3 3 . プロセスを 1 0 ~ 1 0 , 0 0 0 L / kg (触媒) / 時の反応剤の流速で操作する態様 1 又は 1 5 に記載のニオブ触媒の使用方法。

3 4 . プロセスを 1 0 0 ~ 1 , 0 0 0 L / kg (触媒) / 時の反応剤の流速で操作する態様 1 又は 1 5 に記載のニオブ触媒の使用方法。

3 5 . エステルを、酸素を含む蒸気流中でニオブ触媒上を通過させる態様 1 5 に記載のニオブ触媒の使用方法。

3 6 . 不活性ガスで希釀した反応剤の蒸気流をニオブ触媒上を通過させる態様 1 又は 1 5 に記載のニオブ触媒の使用方法。