

【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23年6月2日(2011.6.2)

【公表番号】特表2010-528012(P2010-528012A)

【公表日】平成22年8月19日(2010.8.19)

【年通号数】公開・登録公報2010-033

【出願番号】特願2010-509382(P2010-509382)

【国際特許分類】

C 0 7 C 17/386 (2006.01)

C 0 7 C 17/42 (2006.01)

C 0 7 C 19/08 (2006.01)

B 0 1 D 3/40 (2006.01)

【F I】

C 0 7 C 17/386

C 0 7 C 17/42

C 0 7 C 19/08

B 0 1 D 3/40

【手続補正書】

【提出日】平成23年4月11日(2011.4.11)

【手続補正 1】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0 1 2 2

【補正方法】変更

【補正の内容】

【0 1 2 2】

実施例 1 4

1 - エチル - 3 - メチルイミダゾリウムビス(トリフルオロメチルスルホニル)イミド [emim][Tf<sub>2</sub>N] 中での 1 - クロロ - 1, 1, 2, 2 - テトラフルオロエタン (R - 1 2 4 a) の溶解度

約 10 ~ 75 の温度で、0.1 bar (0.01 MPa) ~ 約 3.0 bar (0.3 MPa) の圧力範囲にわたって溶解度研究を行い、[emim][Tf<sub>2</sub>N] 中での R - 1 2 4 a の溶解度 (x) またはモル分率を、重量微量天秤を用いて計測した。表 1 5 が、T、P および x についてのデータをそれぞれ提供している。

【表 16】

表 15

T (°C)	P (bar)	R-124a (モル分率)
10.044	0.10	0.047
9.968	0.50	0.212
9.934	1.00	0.401
9.959	1.50	0.573
9.985	2.00	0.759
24.964	0.10	0.029
25.065	0.50	0.128
24.964	1.00	0.244
24.973	1.50	0.356
24.822	1.99	0.461
24.998	2.50	0.572
24.948	3.00	0.692
49.894	0.10	0.012
49.894	0.50	0.058
50.034	1.00	0.116
50.025	1.50	0.171
49.935	2.00	0.222
49.935	2.50	0.271
49.96	3.00	0.322
74.927	0.10	0.001
74.919	0.50	0.027
74.935	1.00	0.057
74.968	1.50	0.087
74.895	2.00	0.116
74.927	2.50	0.143
74.952	3.00	0.171

## 【手続補正 2】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0123

【補正方法】変更

【補正の内容】

【0123】

以上、本発明を要約すると以下のとおりである。

1. 1, 1, 2, 2 - テトラフルオロエタンおよび 1, 1, 1, 2 - テトラフルオロエタンを含む混合物から 1, 1, 2, 2 - テトラフルオロエタンまたは 1, 1, 1, 2 - テトラフルオロエタンを分離する方法であって、

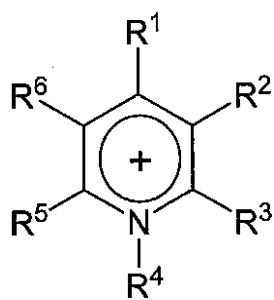
(a) 混合物を、1, 1, 1, 2 - テトラフルオロエタンが 1, 1, 2, 2 - テトラフルオロエタンよりも大幅に可溶性である少なくとも 1 つのイオン液体と接触させ、1, 1, 2, 2 - テトラフルオロエタンを混合物から分離する工程；または

(b) 混合物を、1, 1, 2, 2 - テトラフルオロエタンが 1, 1, 1, 2 - テトラフルオロエタンよりも大幅に可溶性である少なくとも 1 つのイオン液体と接触させ、1, 1, 1, 2 - テトラフルオロエタンを混合物から分離する工程を含む方法。

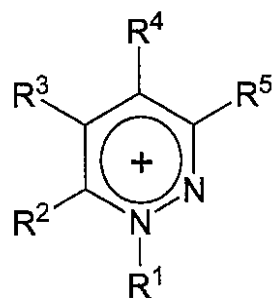
2. 1, 1, 1, 2 - テトラフルオロエタンが、1, 1, 2, 2 - テトラフルオロエタンよりも大幅にイオン液体に可溶性であるか、または 1, 1, 2, 2 - テトラフルオロエタンが、1, 1, 1, 2 - テトラフルオロエタンよりも大幅にイオン液体に可溶性である、上記 1 に記載の方法。

3. 上記 1 に記載の方法であって、イオン液体が、以下の 11 種のカチオン：

【化 3】

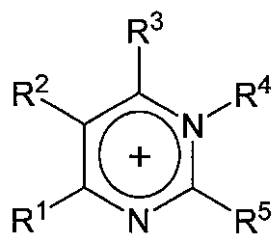


ピリジニウム

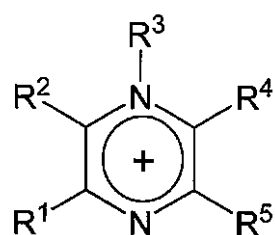


ピリダジニウム

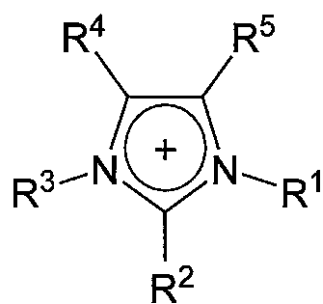
## 【化 4】



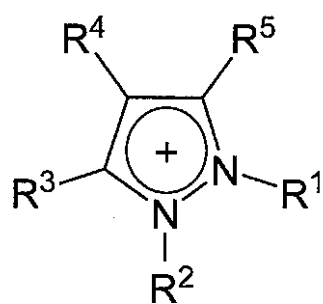
ピリジニウム



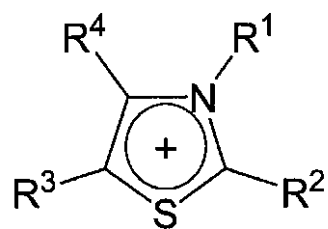
ピラジニウム



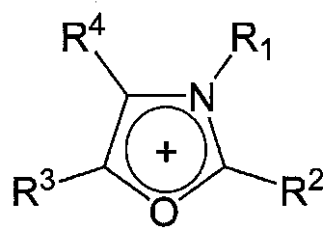
イミダゾリウム



ピラゾリウム

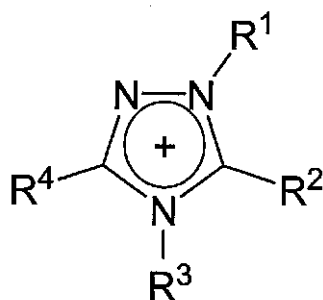


チアゾリウム

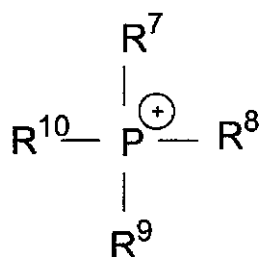


オキサゾリウム

## 【化 5】

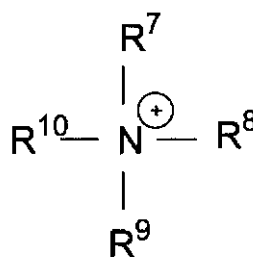


トリアゾリウム



ホスホニウム

および



アンモニウム

からなる群から選択されるカチオンを含み、

上式中、 $R^1$ 、 $R^2$ 、 $R^3$ 、 $R^4$ 、 $R^5$  および  $R^6$  は、独立して：

(i) H、

(ii) ハロゲン、

(iii) 場合により Cl、Br、F、I、OH、 $NH_2$  および SH からなる群から選択される少なくとも 1 個の構成員で置換される、 $-CH_3$ 、 $-C_2H_5$ 、または  $C_3 \sim C_{25}$  直鎖、分岐または環状の、アルカンまたはアルケン、

(iv) 場合により Cl、Br、F、I、OH、 $NH_2$  および SH からなる群から選択される少なくとも 1 個の構成員で置換され、O、N、Si および S からなる群から選択される 1 ～ 3 個のヘテロ原子を含む、 $-CH_3$ 、 $-C_2H_5$ 、または  $C_3 \sim C_{25}$  直鎖、分岐または環状の、アルカンまたはアルケン、

(v)  $C_6 \sim C_{20}$  非置換アリール、または O、N、Si および S からなる群から独立して選択される 1 ～ 3 個のヘテロ原子を有する  $C_3 \sim C_{25}$  非置換ヘテロアリール、および

(vi)  $C_6 \sim C_{25}$  置換アリール、または O、N、Si および S からなる群から独立して選択される 1 ～ 3 個のヘテロ原子を有する  $C_3 \sim C_{25}$  置換ヘテロアリールであって、

(1) 場合により Cl、Br、F、I、OH、 $NH_2$  および SH からなる群から選択される少なくとも 1 個の構成員で置換される  $-CH_3$ 、 $-C_2H_5$ 、または  $C_3 \sim C_{25}$  直鎖、分岐または環状の、アルカンまたはアルケン、

(2) OH、

(3)  $NH_2$ 、および

(4) SH

からなる群から独立して選択される 1 ～ 3 個の置換基を有する上記置換アリールまたは置換ヘテロアリール、

からなる群から選択され；

$R^7$ 、 $R^8$ 、 $R^9$  および  $R^{10}$  は、独立して；

(vii) 場合により  $Cl$ 、 $Br$ 、 $F$ 、 $I$ 、 $OH$ 、 $NH_2$  および  $SH$  からなる群から選択される少なくとも1個の構成員で置換される、 $-CH_3$ 、 $-C_2H_5$ 、または  $C_3 \sim C_{25}$  直鎖、分岐または環状の、アルカンまたはアルケン、

(viii) 場合により  $Cl$ 、 $Br$ 、 $F$ 、 $I$ 、 $OH$ 、 $NH_2$  および  $SH$  からなる群から選択される少なくとも1個の構成員で置換され、 $O$ 、 $N$ 、 $Si$  および  $S$  からなる群から選択される1～3個のヘテロ原子を含む、 $-CH_3$ 、 $-C_2H_5$ 、または  $C_3 \sim C_{25}$  直鎖、分岐または環状の、アルカンまたはアルケン、

(ix)  $C_6 \sim C_{25}$  非置換アリール、または  $O$ 、 $N$ 、 $Si$  および  $S$  からなる群から独立して選択される1～3個のヘテロ原子を有する  $C_3 \sim C_{25}$  非置換ヘテロアリール、および

(x)  $C_6 \sim C_{25}$  置換アリール、または  $O$ 、 $N$ 、 $Si$  および  $S$  からなる群から独立して選択される1～3個のヘテロ原子を有する  $C_3 \sim C_{25}$  置換ヘテロアリールであって、

(1) 場合により  $Cl$ 、 $Br$ 、 $F$ 、 $I$ 、 $OH$ 、 $NH_2$  および  $SH$  からなる群から選択される少なくとも1個の構成員で置換される、 $-CH_3$ 、 $-C_2H_5$ 、または  $C_3 \sim C_{25}$  直鎖、分岐または環状の、アルカンまたはアルケン、

(2)  $OH$ 、

(3)  $NH_2$ 、および

(4)  $SH$

からなる群から独立して選択される1～3個の置換基を有する上記置換アリールまたは置換ヘテロアリール、

からなる群から選択され、

ここで、場合により、 $R^1$ 、 $R^2$ 、 $R^3$ 、 $R^4$ 、 $R^5$ 、 $R^6$ 、 $R^7$ 、 $R^8$ 、 $R^9$  および  $R^{10}$  の少なくとも2つは一緒に環状または二環状の、アルカニルまたはアルケニル基を形成する、方法。

4.  $R^1$ 、 $R^2$ 、 $R^3$ 、 $R^4$ 、 $R^5$ 、 $R^6$ 、 $R^7$ 、 $R^8$ 、 $R^9$ 、および  $R^{10}$  の少なくとも1つが  $F$ -を含む、上記3に記載の方法。

5. イオン液体が、 $[CH_3CO_2]^-$ 、 $[HSO_4]^-$ 、 $[CH_3OSO_3]^-$ 、 $[C_2H_5OSO_3]^-$ 、 $[AlCl_4]^-$ 、 $[CO_3]^{2-}$ 、 $[HCO_3]^-$ 、 $[NO_2]^-$ 、 $[NO_3]^-$ 、 $[SO_4]^{2-}$ 、 $[PO_4]^{3-}$ 、 $[HPO_4]^{2-}$ 、 $[H_2PO_4]^-$ 、 $[HSO_3]^-$ 、 $[CuCl_2]^-$ 、 $Cl^-$ 、 $Br^-$ 、 $I^-$ 、 $SCN^-$ 、および任意のフッ素化アニオンからなる群から選択されるアニオンを含む、上記1に記載の方法。

6. イオン液体が、 $[BF_4]^-$ 、 $[BF_3CF_3]^-$ 、 $[BF_3C_2F_5]^-$ 、 $[PF_6]^-$ 、 $[PF_3(C_2F_5)_3]^-$ 、 $[SbF_6]^-$ 、 $[CF_3SO_3]^-$ 、 $[HCF_2CF_2SO_3]^-$ 、 $[CF_3HFCF_2SO_3]^-$ 、 $[HCClFCF_2SO_3]^-$ 、 $[(CF_3SO_2)_2N]^-$ 、 $[(CF_3CF_2SO_2)_2N]^-$ 、 $[(CF_3SO_2)_3C]^-$ 、 $[CF_3CO_2]^-$ 、 $[CF_3OCF_2HCF_2SO_3]^-$ 、 $[CF_3CF_2OCF_2HCF_2SO_3]^-$ 、 $[CF_3CF_2HOCF_2CF_2SO_3]^-$ 、 $[CF_2HCF_2OCF_2CF_2SO_3]^-$ 、 $[CF_2ICF_2OCF_2CF_2SO_3]^-$ 、 $[CF_3CF_2OCF_2CF_2SO_3]^-$ 、 $[(CF_2HCF_2SO_2)_2N]^-$ 、 $[(CF_3CF_2HCF_2SO_2)_2N]^-$ 、および  $F^-$  からなる群から選択されるアニオンを含む、上記1に記載の方法。

7. イオン液体が、イミダゾリウムおよびピリジニウムイオンからなる群から選択されるカチオン、ならびに  $[BF_4]^-$ 、 $[BF_3CF_3]^-$ 、 $[BF_3C_2F_5]^-$ 、 $[PF_6]^-$ 、 $[PF_3(C_2F_5)_3]^-$ 、 $[SbF_6]^-$ 、 $[CF_3SO_3]^-$ 、 $[HCF_2CF_2SO_3]^-$ 、 $[CF_3HFCF_2SO_3]^-$ 、 $[HCClFCF_2SO_3]^-$ 、 $[(CF_3SO_2)_2N]^-$ 、 $[(CF_3CF_2SO_2)_2N]^-$ 、 $[(CF_3SO_2)_3C]^-$ 、 $[CF_3CO_2]^-$ 、 $[CF_3OCF_2HCF_2SO_3]^-$ 、 $[CF_3CF_2OCF_2HCF_2SO_3]^-$ 、 $[CF_3CF_2HOCF_2CF_2SO_3]^-$ 、 $[CF_2HCF_2OCF_2CF_2SO_3]^-$ 、 $[CF_2ICF_2OCF_2CF_2SO_3]^-$ 、 $[CF_3CF_2OCF_2CF_2SO_3]^-$ 、 $[(CF_2HCF_2SO_2)_2N]^-$ 、 $[(CF_3CF_2HCF_2SO_2)_2N]^-$ 、および  $F^-$  からなる群から選択されるアニオンを含む、上記1に記載の方法。

${}^2\text{OCF}_2\text{CF}_2\text{SO}_3^-$ 、 $[\text{CF}_2\text{ICF}_2\text{OCF}_2\text{CF}_2\text{SO}_3]^-$ 、 $[\text{CF}_3\text{CF}_2\text{OCF}_2\text{CF}_2\text{SO}_3]^-$ 、 $[(\text{CF}_2\text{HCF}_2\text{SO}_2)_2\text{N}]^-$ 、 $[(\text{CF}_3\text{CFHCF}_2\text{SO}_2)_2\text{N}]^-$  および  $[\text{CH}_3\text{OSO}_3]^-$  からなる群から選択されるアニオンを含む、上記 1 に記載の方法。

8. イオン液体が、1 - ブチル - 3 - メチルイミダゾリウムカチオン、および  $[\text{BF}_4]^-$ 、 $[\text{BF}_3\text{CF}_3]^-$ 、 $[\text{BF}_3\text{C}_2\text{F}_5]^-$ 、 $[\text{PF}_6]^-$ 、 $[\text{PF}_3(\text{C}_2\text{F}_5)_3]^-$ 、 $[\text{SbF}_6]^-$ 、 $[\text{CF}_3\text{SO}_3]^-$ 、 $[\text{HCF}_2\text{CF}_2\text{SO}_3]^-$ 、 $[\text{CF}_3\text{HFCCF}_2\text{SO}_3]^-$ 、 $[\text{HCClFCF}_2\text{SO}_3]^-$ 、 $[(\text{CF}_3\text{SO}_2)_2\text{N}]^-$ 、 $[(\text{CF}_3\text{CF}_2\text{SO}_2)_2\text{N}]^-$ 、 $[(\text{CF}_3\text{SO}_2)_3\text{C}]^-$ 、 $[\text{CF}_3\text{CO}_2]^-$ 、 $[\text{CF}_3\text{OCF}_2\text{HCF}_2\text{SO}_3]^-$ 、 $[\text{CF}_3\text{CF}_2\text{OCF}_2\text{HCF}_2\text{SO}_3]^-$ 、 $[\text{CF}_3\text{CFHOCF}_2\text{CF}_2\text{SO}_3]^-$ 、 $[\text{CF}_2\text{HCF}_2\text{OCF}_2\text{CF}_2\text{SO}_3]^-$ 、 $[\text{CF}_2\text{ICF}_2\text{OCF}_2\text{CF}_2\text{SO}_3]^-$ 、 $[\text{CF}_3\text{CF}_2\text{OCF}_2\text{CF}_2\text{SO}_3]^-$ 、 $[(\text{CF}_2\text{HCF}_2\text{SO}_2)_2\text{N}]^-$ 、 $[(\text{CF}_3\text{CFHCF}_2\text{SO}_2)_2\text{N}]^-$  からなる群から選択されるアニオンを含む、上記 1 に記載の方法。

9. イオン液体が、1 - エチル - 3 - メチルイミダゾリウムカチオン、ならびに  $[\text{BF}_4]^-$ 、 $[\text{BF}_3\text{CF}_3]^-$ 、 $[\text{BF}_3\text{C}_2\text{F}_5]^-$ 、 $[\text{PF}_6]^-$ 、 $[\text{PF}_3(\text{C}_2\text{F}_5)_3]^-$ 、 $[\text{SbF}_6]^-$ 、 $[\text{CF}_3\text{SO}_3]^-$ 、 $[\text{HCF}_2\text{CF}_2\text{SO}_3]^-$ 、 $[\text{CF}_3\text{HFCCF}_2\text{SO}_3]^-$ 、 $[\text{HCClFCF}_2\text{SO}_3]^-$ 、 $[(\text{CF}_3\text{SO}_2)_2\text{N}]^-$ 、 $[(\text{CF}_3\text{CF}_2\text{SO}_2)_2\text{N}]^-$ 、 $[(\text{CF}_3\text{SO}_2)_3\text{C}]^-$ 、および  $[\text{CF}_3\text{CO}_2]^-$ 、 $[\text{CF}_3\text{OCF}_2\text{HCF}_2\text{SO}_3]^-$ 、 $[\text{CF}_3\text{CF}_2\text{OCF}_2\text{HCF}_2\text{SO}_3]^-$ 、 $[\text{CF}_3\text{CFHOCF}_2\text{CF}_2\text{SO}_3]^-$ 、 $[\text{CF}_2\text{HCF}_2\text{OCF}_2\text{CF}_2\text{SO}_3]^-$ 、 $[\text{CF}_2\text{ICF}_2\text{OCF}_2\text{CF}_2\text{SO}_3]^-$ 、 $[\text{CF}_3\text{CF}_2\text{OCF}_2\text{CF}_2\text{SO}_3]^-$ 、 $[(\text{CF}_2\text{HCF}_2\text{SO}_2)_2\text{N}]^-$  および  $[(\text{CF}_3\text{CFHCF}_2\text{SO}_2)_2\text{N}]^-$  からなる群から選択されるアニオンを含む、上記 1 に記載の方法。

10. イオン液体が、1, 3 - ジメチルイミダゾリウムカチオン、ならびに  $[\text{BF}_4]^-$ 、 $[\text{BF}_3\text{CF}_3]^-$ 、 $[\text{BF}_3\text{C}_2\text{F}_5]^-$ 、 $[\text{PF}_6]^-$ 、 $[\text{PF}_3(\text{C}_2\text{F}_5)_3]^-$ 、 $[\text{SbF}_6]^-$ 、 $[\text{CF}_3\text{SO}_3]^-$ 、 $[\text{HCF}_2\text{CF}_2\text{SO}_3]^-$ 、 $[\text{CF}_3\text{HFCCF}_2\text{SO}_3]^-$ 、 $[\text{HCClFCF}_2\text{SO}_3]^-$ 、 $[(\text{CF}_3\text{SO}_2)_2\text{N}]^-$ 、 $[(\text{CF}_3\text{CF}_2\text{SO}_2)_2\text{N}]^-$ 、 $[(\text{CF}_3\text{SO}_2)_3\text{C}]^-$ 、および  $[\text{CF}_3\text{CO}_2]^-$ 、 $[\text{CF}_3\text{OCF}_2\text{HCF}_2\text{SO}_3]^-$ 、 $[\text{CF}_3\text{CF}_2\text{OCF}_2\text{HCF}_2\text{SO}_3]^-$ 、 $[\text{CF}_3\text{CFHOCF}_2\text{CF}_2\text{SO}_3]^-$ 、 $[\text{CF}_2\text{HCF}_2\text{OCF}_2\text{CF}_2\text{SO}_3]^-$ 、 $[\text{CF}_2\text{ICF}_2\text{OCF}_2\text{CF}_2\text{SO}_3]^-$ 、 $[\text{CF}_3\text{CF}_2\text{OCF}_2\text{CF}_2\text{SO}_3]^-$ 、 $[(\text{CF}_2\text{HCF}_2\text{SO}_2)_2\text{N}]^-$ 、および  $[(\text{CF}_3\text{CFHCF}_2\text{SO}_2)_2\text{N}]^-$  からなる群から選択されるアニオンを含む、上記 1 に記載の方法。

11. イオン液体が、3 - メチル - 1 - プロピルピリジニウムカチオン、および  $[(\text{CF}_3\text{SO}_2)_2\text{N}]^-$  アニオンを含むか、またはイオン液体が、1 - ヘキシル - 3 - メチルイミダゾリウムカチオン、および  $[\text{PF}_3(\text{C}_2\text{F}_5)_3]^-$  アニオンを含む、上記 1 に記載の方法。

12. 蒸留カラム中で行われる、上記 1 に記載の方法。

13. イオン液体が、抽出剤としてカラムに供給され、カラム中で混合物と接触する、上記 15 に記載の方法。

14. 1, 1, 2, 2 - テトラフルオロエタンが、蒸気としてカラムの上部に存在するか、または 1, 1, 1, 2 - テトラフルオロエタンが、蒸気としてカラムの上部に存在する、上記 12 に記載の方法。

15. イオン液体を、カラム底部から回収し、カラムに再循環する、上記 12 に記載の方法。

【手続補正 3】

【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】

1, 1, 2, 2 - テトラフルオロエタンおよび 1, 1, 1, 2 - テトラフルオロエタンを含む混合物から 1, 1, 2, 2 - テトラフルオロエタンまたは 1, 1, 1, 2 - テトラフルオロエタンを分離する方法であって、

(a) 混合物を、1, 1, 1, 2 - テトラフルオロエタンが 1, 1, 2, 2 - テトラフルオロエタンよりも大幅に可溶性である少なくとも 1 つのイオン液体と接触させ、1, 1, 2, 2 - テトラフルオロエタンを混合物から分離する工程；または

(b) 混合物を、1, 1, 2, 2 - テトラフルオロエタンが 1, 1, 1, 2 - テトラフルオロエタンよりも大幅に可溶性である少なくとも 1 つのイオン液体と接触させ、1, 1, 1, 2 - テトラフルオロエタンを混合物から分離する工程を含む方法。