

【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19年11月1日(2007.11.1)

【公表番号】特表2007-514780(P2007-514780A)

【公表日】平成19年6月7日(2007.6.7)

【年通号数】公開・登録公報2007-021

【出願番号】特願2006-545641(P2006-545641)

【国際特許分類】

C 07 C	51/265	(2006.01)
C 07 C	63/24	(2006.01)
C 07 C	63/26	(2006.01)
C 07 C	63/307	(2006.01)
C 07 C	63/38	(2006.01)
B 01 J	31/04	(2006.01)
B 01 J	37/04	(2006.01)
C 07 B	61/00	(2006.01)

【F I】

C 07 C	51/265	
C 07 C	63/24	
C 07 C	63/26	E
C 07 C	63/307	
C 07 C	63/38	
B 01 J	31/04	Z
B 01 J	37/04	1 0 2
C 07 B	61/00	3 0 0

【手続補正書】

【提出日】平成19年9月13日(2007.9.13)

【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】

- a)少なくとも1の重金属酸化触媒；
- b)臭素源；及び
- c)多環式芳香族炭化水素

を含む触媒の存在下、液相条件下で、芳香族炭化水素を分子状酸素源で酸化して芳香族カルボン酸を形成するプロセス。

【請求項2】

前記多環式芳香族炭化水素は、アントラセン、ナフタリン、テトラセン及びこれらの組み合わせからなる群より選択される、請求項1に記載のプロセス。

【請求項3】

前記多環式芳香族炭化水素はアントラセンである、請求項2に記載のプロセス。

【請求項4】

前記臭素源は、Br<sub>2</sub>、HBr、NaBr、KBr、NH<sub>4</sub>Br、臭化ベンジル、プロム酢酸、ジプロム酢酸、テトラプロモエタン、二臭化エチレン及びプロモアセチルプロミドから選択される1以上の臭素化合物を含む、請求項1に記載のプロセス。

**【請求項 5】**

前記重金属は、コバルトと、マンガン、セリウム、ジルコニウム、チタン、バナジウム、モリブデン、ニッケル及びハフニウムから選択される1以上の二次金属と、を含む、請求項1に記載のプロセス。

**【請求項 6】**

前記重金属は、100 ppmw~6000 ppmwの範囲にある量で存在する、請求項1に記載のプロセス。

**【請求項 7】**

酸化は、50 ~ 250 の範囲にある温度にて行われる、請求項1に記載のプロセス。

**【請求項 8】**

酸化は、120 ~ 250 の範囲にある温度で行われる、請求項1に記載のプロセス。

**【請求項 9】**

酸化は、90 psig~450 psigの範囲にある圧力で行われる、請求項1に記載のプロセス。

。

**【請求項 10】**

酸化は、100 psig~400 psigの範囲にある圧力で行われる、請求項1に記載のプロセス。

。

**【請求項 11】**

前記芳香族カルボン酸は、イソフタル酸、テレフタル酸、トリメリット酸及び2,6-ナフタリンジカルボン酸から選択される、請求項1に記載のプロセス。

**【請求項 12】**

芳香族炭化水素類の液相酸化により芳香族カルボン酸を製造するための触媒系であって、

a)少なくとも1の重金属酸化触媒；

b)臭素源；及び

c)多環式芳香族炭化水素

を含む触媒系。

**【請求項 13】**

前記多環式芳香族炭化水素は、アントラセン、ナフタリン、テトラセン及びこれらの組み合わせから選択される、請求項12に記載の触媒系。

**【請求項 14】**

前記多環式芳香族炭化水素はアントラセンである、請求項12に記載の触媒系。

**【請求項 15】**

前記臭素源は、Br<sub>2</sub>、HBr、NaBr、KBr、NH<sub>4</sub>Br、臭化ベンジル、プロム酢酸、ジプロム酢酸、テトラブロモエタン、二臭化エチレン及びブロモアセチルブロミドから選択される1以上の臭素化合物を含む、請求項12に記載の触媒系。

**【請求項 16】**

前記重金属は、コバルトと、マンガン、セリウム、ジルコニウム、チタン、バナジウム、モリブデン、ニッケル及びハフニウムから選択される1以上の二次金属とを含む、請求項12に記載の触媒系。

**【請求項 17】**

前記重金属は100 ppmw~6000 ppmwの範囲にある量で存在する、請求項12に記載の触媒系。

**【請求項 18】**

酸化は100 ~ 250 の範囲にある温度で行われる、請求項12に記載の触媒系。

**【請求項 19】**

酸化は120 ~ 250 の範囲にある温度で行われる、請求項12に記載の触媒系。

**【請求項 20】**

酸化は90 psig~450 psigの範囲にある圧力で行われる、請求項12に記載の触媒系。

**【請求項 21】**

酸化は300 psig~400 psigの範囲にある圧力で行われる、請求項12に記載の触媒系。

【請求項22】

前記芳香族カルボン酸は、イソフタル酸、テレフタル酸、トリメリット酸及び2,6-ナフタリンジカルボン酸から選択される、請求項12に記載の触媒系。

【請求項23】

- a)少なくとも1の重金属酸化触媒；
- b)臭素源；及び
- c)多環式芳香族炭化水素

を含む触媒の存在下、液相条件下でパラキシレンを分子状酸素源で酸化してテレフタル酸を形成する請求項1に記載のプロセス。

【請求項24】

前記多環式芳香族炭化水素は、アントラセン、ナフタリン、テトラセン及びこれらの組み合わせから選択される、請求項23に記載のプロセス。

【請求項25】

前記多環式芳香族炭化水素はアントラセンである、請求項24に記載のプロセス。

【請求項26】

- a)少なくとも1の重金属酸化触媒；
- b)臭素源；及び
- c)多環式芳香族炭化水素

を含む触媒の存在下、液相条件下で、メタキシレンを分子状酸素源で酸化してイソフタル酸を形成する請求項1に記載のプロセス。

【請求項27】

前記多環式芳香族炭化水素は、アントラセン、ナフタリン、テトラセン及びこれらの組み合わせから選択される、請求項26に記載のプロセス。

【請求項28】

前記多環式芳香族炭化水素はアントラセンである、請求項27に記載のプロセス。

【請求項29】

- a)少なくとも1の重金属酸化触媒；
- b)臭素源；及び
- c)多環式芳香族炭化水素

を含む触媒の存在下、液相条件下で、2,6-ジメチルナフタリンを分子状酸素源で酸化して2,6-ナフタリンジカルボン酸を形成する請求項1に記載のプロセス。

【請求項30】

前記多環式芳香族炭化水素は、アントラセン、ナフタリン、テトラセン及びこれらの組み合わせから選択される、請求項29に記載のプロセス。

【請求項31】

前記多環式芳香族炭化水素はアントラセンである、請求項30に記載のプロセス。

【請求項32】

プソイドクメンをトリメリット酸まで酸化する請求項1に記載のプロセスであって、

- a)少なくとも1の重金属酸化触媒；
- b)臭素源；及び
- c)多環式芳香族炭化水素

を含む触媒の存在下、液相条件下で、プソイドクメン含有供給原料を分子状酸素源で接触酸化することを含むプロセス。

【請求項33】

前記多環式芳香族炭化水素は、アントラセン、ナフタリン、テトラセン及びこれらの組み合わせから選択される、請求項32に記載のプロセス。

【請求項34】

前記多環式芳香族炭化水素はアントラセンである、請求項33に記載のプロセス。

【請求項35】

前記重金属は、コバルトと、マンガン、セリウム、ジルコニウム、チタン及びハフニウムから選択される1以上の二次金属と、を含む、請求項32に記載のプロセス。

【請求項36】

前記重金属は、100 ppmw~6000 ppmwの範囲にある量で存在する、請求項32に記載のプロセス。

【請求項37】

プソイドクメンをトリメリット酸まで転化する請求項32に記載のプロセスであって、

- a)コバルト-マンガン-セリウム触媒；
- b)臭素源；及び
- c)アントラセン

を含む触媒の存在下、液相条件下で、プソイドクメン含有供給原料を分子状酸素源で接触酸化することを含むプロセス。

【請求項38】

プソイドクメンをトリメリット酸まで転化する請求項32に記載のプロセスであって、

- a)ジルコニウム-コバルト-マンガン-セリウム触媒；
- b)臭素源；及び
- c)アントラセン

を含む触媒の存在下、液相条件下でプソイドクメン含有供給原料を分子状酸素源で接触酸化させることを含むプロセス。

【請求項39】

酸化は、50 ~ 250 の範囲にある温度で行われる、請求項32に記載のプロセス。

【請求項40】

酸化は100 ~ 250 の範囲にある温度で行われる、請求項32に記載のプロセス。

【請求項41】

酸化は90 psig~300 psigの範囲にある圧力で行われる、請求項32に記載のプロセス。

。

【請求項42】

プソイドクメンをトリメリット酸まで転化するプロセスであって、

- a)少なくとも1の重金属酸化触媒；
- b)臭素源；及び
- c)アントラセン、ナフタリン、テトラセン及びこれらの組み合わせから選択される多環式芳香族炭化水素を含む触媒の存在下、

130 ~ 220 の範囲にある温度、90 psig~300 psigの範囲にある圧力で、液相条件下で、プソイドクメン含有供給原料を分子状酸素源で接触酸化させることを含むプロセス。

【請求項43】

酸化は、170 ~ 220 の範囲にある温度、105 psig~280 psigの範囲にある圧力で行われ、

前記多環式芳香族炭化水素はアントラセンである、請求項42に記載のプロセス。

【請求項44】

前記重金属は、コバルトと、マンガン、セリウム、ジルコニウム、チタン及びハフニウムから選択される1以上の二次金属とを含み、

前記重金属は100 ppmw~6000 ppmwの範囲にある量で存在する、請求項42に記載のプロセス。

【請求項45】

プソイドクメンをトリメリット酸まで転化する請求項1に記載のプロセスであって、

液相条件下で、コバルト源と、マンガン源及び臭素源と、多環式芳香族炭化水素とを含みジルコニウム源を含むか又は含まない触媒の存在下、100 ~ 250 の範囲にある温度で、2段で、プソイドクメン含有供給原料を分子状酸素源で接触酸化させることを含み、第1段はバッチ式又は半連続式で行われ、第2段はバッチ式で行われ、臭素成分の添加は第1段で総臭素の10 wt%~35 wt%が添加され、残量は第2段で添加されるように行われ、第2段の

温度は175 から250 に上昇し、第1段の温度は125 ~ 165 の間にあり、臭素成分の2段添加は分子状酸素源を供給原料に導入しながら行われる、プロセス。

【請求項 4 6】

前記多環式芳香族炭化水素は、アントラセン、ナフタリン、テトラセン及びこれらの組み合わせから選択される、請求項 4 5 に記載のプロセス。

【請求項 4 7】

液相条件下、ブソイドクメンを分子状酸素でトリメリット酸まで酸化する請求項 1 に記載のプロセスであって、ブソイドクメンのグラムモル当たり総金属3~10ミリグラム原子を提供するプラス3(+3)の原子価を有するセリウム、ジルコニウム、コバルト及びマンガンを含む1以上の重金属酸化触媒と臭素源と多環式芳香族炭化水素とを含む触媒の存在下、100 ~ 275 の範囲にある温度で、少なくとも2段での臭素成分の段階的添加を含み、総臭素の0~35 wt%が第1段で添加され、残りは最後段で添加され、全セリウムは最後段で添加され、最後段の温度は175 から275 に上昇し、先行する段の温度は125 ~ 165 の間にある、プロセス。

【請求項 4 8】

前記多環式芳香族炭化水素は、アントラセン、ナフタリン、テトラセン及びこれらの組み合わせから選択される、請求項 4 7 に記載のプロセス。

【請求項 4 9】

前記多環式芳香族炭化水素は、多環式芳香族炭化水素含有石油精製副産物流を含む、請求項 1 に記載のプロセス。

【請求項 5 0】

前記多環式芳香族炭化水素は、多環式芳香族炭化水素含有石油精製副産物流を含む、請求項 1 2 に記載の触媒系。