

【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 2 部門第 1 区分

【発行日】平成24年2月16日 (2012.2.16)

【公表番号】特表2007-522934(P2007-522934A)

【公表日】平成19年8月16日 (2007.8.16)

【年通号数】公開・登録公報2007-031

【出願番号】特願2006-553662(P2006-553662)

【国際特許分類】

B 0 1 J 31/24 (2006.01)

C 0 7 F 19/00 (2006.01)

C 0 7 F 17/02 (2006.01)

C 0 7 C 69/24 (2006.01)

C 0 7 C 67/38 (2006.01)

C 0 7 F 15/00 (2006.01)

C 0 7 F 9/50 (2006.01)

C 0 7 F 9/6568 (2006.01)

C 0 7 B 61/00 (2006.01)

【F I】

B 0 1 J 31/24 Z

C 0 7 F 19/00

C 0 7 F 17/02

C 0 7 C 69/24

C 0 7 C 67/38

C 0 7 F 15/00 C

C 0 7 F 9/50

C 0 7 F 9/6568

C 0 7 B 61/00 3 0 0

【誤訳訂正書】

【提出日】平成23年12月21日 (2011.12.21)

【誤訳訂正 1】

【訂正対象書類名】特許請求の範囲

【訂正対象項目名】全文

【訂正方法】変更

【訂正の内容】

【特許請求の範囲】

【請求項 1】

エチレン系不飽和化合物のカルボニル化を触媒することが可能な触媒系であって、

a) パラジウム金属またはその化合物、

b) 二座ホスフィン配位子、および

c) 1.8 の水溶液中で測定して 4 未満の p K a を有する酸

を組み合わせることにより得られ、該配位子は、該金属または該金属化合物中の金属に対して少なくとも 2 : 1 の m o l 過剰で存在し、該酸は、該配位子に対して 少なくとも 5 : 1 から 9 5 : 1 の範囲内で存在する、触媒系。

【請求項 2】

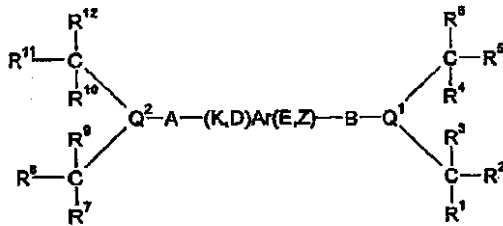
前記配位子と前記金属との比は、5 : 1 から 7 5 0 : 1 の範囲内である、請求項 1 に記載の触媒系。

【請求項 3】

エチレン系不飽和化合物のカルボニル化を触媒することが可能な触媒系であって、

- a) パラジウム金属またはその化合物、  
 b) 二座ホスフィン配位子、および  
 c) 18 の水溶液中で測定して4未満の p K a を有する酸  
 を組み合わせることにより得られ、  
 前記二座ホスフィン配位子は、以下の一般式 ( I ) を有し、

【化 1】



(I)

[ 式中、

Ar は、任意に置換されていてもよいアリール部分を含み、これに利用可能な隣接する炭素原子の所でリン原子が結合している架橋基であり；

A および B はそれぞれ独立に、低級アルキレンを表し；

K、D、E および Z は、アリール部分 ( Ar ) の置換基であり、それぞれ独立に、水素、低級アルキル、アリール、H e t、ハロ、シアノ、ニトロ、OR<sup>19</sup>、OC ( O ) R<sup>20</sup>、C ( O ) R<sup>21</sup>、C ( O ) OR<sup>22</sup>、NR<sup>23</sup>R<sup>24</sup>、C ( O ) NR<sup>25</sup>R<sup>26</sup>、C ( S ) R<sup>25</sup>R<sup>26</sup>、SR<sup>27</sup>、C ( O ) SR<sup>27</sup>または - J - Q<sup>3</sup> ( CR<sup>13</sup> ( R<sup>14</sup> ) ( R<sup>15</sup> ) CR<sup>16</sup> ( R<sup>17</sup> ) ( R<sup>18</sup> ) (ここで、J は低級アルキレンを表す) を表すか；K、Z、D および E から選択される2個の隣接する基はそれらが結合しているアリール環の炭素原子と一緒にあって、さらなるフェニル環を形成し、該フェニル環は、水素、低級アルキル、ハロ、シアノ、ニトロ、OR<sup>19</sup>、OC ( O ) R<sup>20</sup>、C ( O ) R<sup>21</sup>、C ( O ) OR<sup>22</sup>、NR<sup>23</sup>R<sup>24</sup>、C ( O ) NR<sup>25</sup>R<sup>26</sup>、C ( S ) R<sup>25</sup>R<sup>26</sup>、SR<sup>27</sup>またはC ( O ) SR<sup>27</sup>から選択される1個または複数の置換基により任意に置換されていてもよく；

R<sup>13</sup>からR<sup>18</sup>はそれぞれ独立に、低級アルキル、アリールまたはH e tを表し；

R<sup>19</sup>からR<sup>27</sup>はそれぞれ独立に、水素、低級アルキル、アリールまたはH e tを表し；

R<sup>1</sup>からR<sup>12</sup>はそれぞれ独立に、低級アルキル、アリールまたはH e tを表し；

Q<sup>1</sup>、Q<sup>2</sup>およびQ<sup>3</sup> (存在する場合) は、それぞれ独立に、リンを表す]

前記配位子と該金属または該金属化合物中の金属との比は、5 : 1 から 7 5 0 : 1 の範囲内であり、

該酸は、該配位子に対して少なくとも2 : 1 のm o l 過剰で存在する、触媒系。

【請求項 4】

前記酸と前記配位子との比は、5 : 1 から 9 5 : 1 の範囲内である、請求項 3 に記載の触媒系。

【請求項 5】

前記酸と前記金属とのモル比は、1 0 : 1 から 7 5 0 0 0 : 1 の範囲内である、請求項 3 に記載の触媒系。

【請求項 6】

前記パラジウムは、金属の形態である、請求項 1 ~ 5 のいずれか一項に記載の触媒系。

【請求項 7】

前記触媒系は、液体反応媒質中に、液体担体に溶解されているポリマー分散剤を含み、該ポリマー分散剤は、触媒系の金属または金属化合物の粒子のコロイド懸濁液を液体担体内で安定化させることが可能である、請求項 1 乃至 6 のいずれかに記載の触媒系。

## 【請求項 8】

エチレン系不飽和化合物と、一酸化炭素およびヒドロキシル基含有化合物とを、請求項 1 乃至 7 のいずれかに記載の触媒系の存在下で接触させる工程を含む、エチレン系不飽和化合物をカルボニル化する方法。

## 【請求項 9】

エテンと、一酸化炭素およびヒドロキシル基含有化合物とを、エテンのカルボニル化を触媒することが可能な触媒系の存在下で接触させる工程を含む、エチレン系不飽和化合物をカルボニル化する方法であって、該触媒系は、

a) パラジウム金属またはその化合物、

b) 二座ホスフィン配位子、および

c) 18 の水溶液中で測定して 4 未満の pKa を有する酸

を組み合わせるにより得られ、該配位子は、該金属または該金属化合物中の金属に対して少なくとも 2 : 1 の mol 過剰で存在し、該酸は、該配位子に対して少なくとも 2 : 1 の mol 過剰で存在する触媒系である、方法。

## 【請求項 10】

エチレン系不飽和化合物のカルボニル化を 1 種または複数の非プロトン性溶剤中で行う、請求項 8 または 9 に記載の方法。

## 【請求項 11】

適切なエチレン系不飽和化合物には、C<sub>30</sub>までの、すなわち、2 から 30 個の炭素原子を含み、直鎖または分枝鎖、環式または非環式または部分環式であってよく、二重結合が炭素鎖の任意の適切な位置を占めてよく、それらのすべての立体異性体も包含するエテン、プロペン、ヘキセン、ビニル化合物、ヘプテン、オクテン、ノネン、デセン、ウンデセン、ドデセンが含まれる、請求項 8 または 10 に記載の方法。

## 【請求項 12】

エテンを含む 1 種または複数の反応成分と、

パラジウム金属またはその化合物、二座ホスフィン配位子、および 18 の水溶液中で測定して 4 未満の pKa を有する酸を含むか、それらを組み合わせるにより得られ、該配位子は、該金属または該金属化合物中の該金属に対して少なくとも 2 : 1 の mol 過剰で存在し、該酸は、該配位子に対して少なくとも 2 : 1 の mol 過剰で存在する触媒系と、

を含む反応媒質。

## 【請求項 13】

1 種または複数の反応成分と、請求項 1 乃至 7 のいずれか 1 項に記載の触媒系とを含む反応媒質。

## 【請求項 14】

媒質中に存在する遊離酸の量は、500 ppm を上回る、請求項 12 または 13 に記載の反応媒質。

## 【請求項 15】

a) パラジウム金属またはその化合物、

b) 二座ホスフィン配位子、および

c) 18 の水溶液中で測定して 4 未満の pKa を有する酸

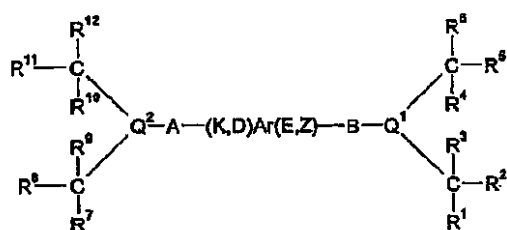
を含むか、これらを組み合わせるにより得られ、該配位子は、該金属または該金属化合物中の該金属に対して少なくとも 2 : 1 の mol 過剰で存在し、該酸は、該配位子に対して少なくとも 2 : 1 の mol 過剰で存在する系の、エテンをカルボニル化する際の触媒としての使用方法。

## 【請求項 16】

a) パラジウム金属またはその化合物、

b) 以下の一般式 (I) を有する二座ホスフィン配位子、

## 【化 2】



## (I)

[ 式中、

A r は、任意に置換されていてもよいアリール部分を含み、これに利用可能な隣接する炭素原子の所でリン原子が結合している架橋基であり；

A および B はそれぞれ独立に、低級アルキレンを表し；

K、D、E および Z は、アリール部分 ( A r ) の置換基であり、それぞれ独立に、水素、低級アルキル、アリール、H e t、ハロ、シアノ、ニトロ、O R<sup>19</sup>、O C ( O ) R<sup>20</sup>、C ( O ) R<sup>21</sup>、C ( O ) O R<sup>22</sup>、N R<sup>23</sup> R<sup>24</sup>、C ( O ) N R<sup>25</sup> R<sup>26</sup>、C ( S ) R<sup>25</sup> R<sup>26</sup>、S R<sup>27</sup>、C ( O ) S R<sup>27</sup> または - J - Q<sup>3</sup> ( C R<sup>13</sup> ( R<sup>14</sup> ) ( R<sup>15</sup> ) C R<sup>16</sup> ( R<sup>17</sup> ) ( R<sup>18</sup> ) (ここで、J は低級アルキレンを表す) を表すか；K、Z、D および E から選択される 2 個の隣接する基はそれらが結合しているアリール環の炭素原子と一緒にあって、さらなるフェニル環を形成し、該フェニル環は、水素、低級アルキル、ハロ、シアノ、ニトロ、O R<sup>19</sup>、O C ( O ) R<sup>20</sup>、C ( O ) R<sup>21</sup>、C ( O ) O R<sup>22</sup>、N R<sup>23</sup> R<sup>24</sup>、C ( O ) N R<sup>25</sup> R<sup>26</sup>、C ( S ) R<sup>25</sup> R<sup>26</sup>、S R<sup>27</sup> または C ( O ) S R<sup>27</sup> から選択される 1 個または複数の置換基により任意に置換されていてもよく；

R<sup>13</sup> から R<sup>18</sup> はそれぞれ独立に、低級アルキル、アリールまたは H e t を表し；

R<sup>19</sup> から R<sup>27</sup> はそれぞれ独立に、水素、低級アルキル、アリールまたは H e t を表し；

R<sup>1</sup> から R<sup>12</sup> はそれぞれ独立に、低級アルキル、アリールまたは H e t を表し；

Q<sup>1</sup>、Q<sup>2</sup> および Q<sup>3</sup> (存在する場合) は、それぞれ独立に、リンを表す]

および

c) 18 の水溶液中で測定して 4 未満の p K a を有する酸

を含むか、これらを組み合わせることにより得られ、

前記配位子と前記金属または該金属化合物中の金属との比は、5 : 1 から 750 : 1 の範囲内であり、

該酸は、該配位子に対して少なくとも 2 : 1 の m o l 過剰で存在する系の、エチレン系不飽和化合物をカルボニル化する際の触媒としての使用方法。

## 【請求項 17】

a) パラジウム金属またはその化合物、

b) 二座ホスフィン配位子、および

c) 18 の水溶液中で測定して 4 未満の p K a を有する酸

を含むか、これらを組み合わせることにより得られ、

該配位子は、該金属または該金属化合物中の金属に対して少なくとも 2 : 1 m o l 過剰で存在し、

該酸は、該配位子に対して少なくとも 5 : 1 から 95 : 1 の範囲内で存在する系の、エチレン系不飽和化合物をカルボニル化する際の触媒としての使用方法。

## 【誤訳訂正 2】

【訂正対象書類名】明細書

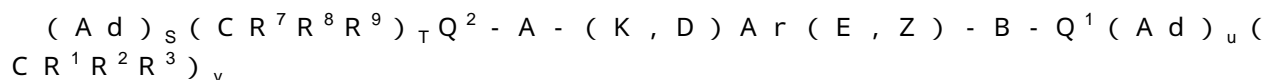
【訂正対象項目名】0060

【訂正方法】変更

## 【訂正の内容】

## 【0060】

この実施形態では、式 I は、



と表すことができ、上式中、Ar、A、B、K、D、EおよびZ、Q<sup>1</sup>、Q<sup>2</sup>およびQ<sup>3</sup>ならびにR<sup>1</sup>からR<sup>27</sup>は上述と同様に定義されるが、ただし、K、D、EおよびZは、 $-J - Q^3 (CR^{13} (R^{14}) (R^{15})) CR^{16} (R^{17}) (R^{18})$ の代わりに $-J - Q^3 (Ad)_w (CR^{13} (R^{14}) (R^{15}))_x$ を表してもよく、Adは、上述と同様に定義され、

SおよびUは0、1または2であるが、ただし、S + U = 1であり；

TおよびVは0、1または2であるが、ただし、T + V = 3であり；

WおよびXは0、1または2である。

## 【誤訳訂正3】

## 【訂正対象書類名】明細書

## 【訂正対象項目名】0066

## 【訂正方法】変更

## 【訂正の内容】

## 【0066】

式 I の特に好ましい化合物には、Adが同じ位置でそれぞれQ<sup>1</sup>またはQ<sup>2</sup>に結合しているものが含まれる。好ましくは、S = 1およびU = 1であり、さらに好ましくはS = 2およびU = 1またはその逆であり、最も好ましくはSおよびUは2であるが、この際、Sは、Q<sup>2</sup>に結合している(Ad)基の数であり、Uは、Q<sup>1</sup>に結合している(Ad)基の数である。