



## (12) ОПИСАНИЕ ИЗОБРЕТЕНИЯ К ЕВРАЗИЙСКОМУ ПАТЕНТУ

(45) Дата публикации и выдачи патента

2021.06.17

(21) Номер заявки

201690369

(22) Дата подачи заявки

2014.09.22

(51) Int. Cl. C07F 7/22 (2006.01)

B01J 31/12 (2006.01)

C07C 68/04 (2006.01)

C07C 69/96 (2006.01)

C07B 61/00 (2006.01)

## (54) СОЕДИНЕНИЕ АЛКИЛОЛОВА

(31) 2013-199871; 2013-199873

(32) 2013.09.26

(33) JP

(43) 2016.07.29

(86) PCT/JP2014/075128

(87) WO 2015/046167 2015.04.02

(71)(73) Заявитель и патентовладелец:

АСАХИ КАСЕИ КАБУСИКИ КАЙСЯ  
(JP)

(72) Изобретатель:

Мияке Нобухиса, Синохата Масааки,  
Нисиямо Будианто, Окубо Ацуси (JP)

(74) Представитель:

Медведев В.Н. (RU)

(56) BALLIVET-TKATCHENKO, D. et al.,  
"Reactivity of ditert-butyl dimethoxystannane with

carbon dioxide and methanol: X-ray structure of the resulting complex", Journal of Organometallic Chemistry, 2006, Vol. 691, p. 1498-1504, particularly, abstract

NEUMANN, W.P. et al., "Organotin compounds. X. Hydrostannation of aldehydes and ketones", Justus Liebigs Annalen der Chemie, 1965, Vol. 683, p. 11-23, CAPLUS [online], [retrieved on 2014.12.02], Retrieved from STN, Accession No. 1965:446331

JP-A-527983

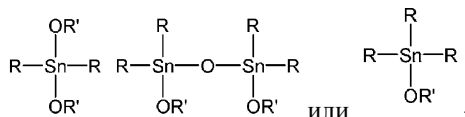
POMMIER, J.-C. et al., "ETUDE DE LA REACTION D'OXYDATION D'ALCOOLS PAR VOIE ORGANOSTANNIQUE", Journal of Organometallic Chemistry, 1974, Vol. 74, p. 405-416, particularly, p. 410

CN-A-1431190

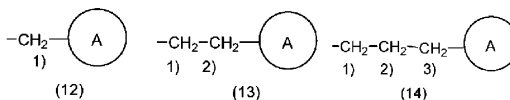
JP-A-49134630

WO-A1-03055840

(57) Изобретение относится к соединению алкилолова, выбранному из соединений общих формул:



где каждый из множества R независимо представляет собой разветвленную алкильную группу или алкильную группу, замещенную циклической группой, а каждый из множества OR' независимо представляет собой C<sub>2-8</sub>алкоксигруппу, в котором разветвленной алкильной группой является C<sub>5-18</sub>алкильная группа, разветвленная по меньшей мере на одном атоме углерода из числа атомов углерода с первого по третий с началом отсчета от атома олова, и алкильной группой, замещенной циклической группой, является алкильная группа, представленная формулами (12), (13) или (14):



где кольцо A представляет собой C<sub>3-16</sub>алициклическую углеводородную группу или C<sub>6-16</sub>ароматическую углеводородную группу. Также изобретение относится к каталитической композиции, содержащей указанное соединение алкилолова, к катализатору на основе указанного соединения алкилолова для способа получения сложного эфира угольной кислоты из диоксида углерода и спирта, а также к способу получения сложного эфира угольной кислоты с использованием указанного соединения алкилолова.

### Область техники

Настоящее изобретение относится к соединениям алкилолова. В частности, оно относится к разветвленным соединениям алкилолова и соединениям алкил(замещенный циклической группой) олова, обладающим отличной термостабильностью.

Изобретение является усовершенствованием "Проекта обеспечения практического развития промышленных технологий" программы Инноваций и Развития 2010 Организации по разработке новой энергетической и промышленной технологии (НЕДО).

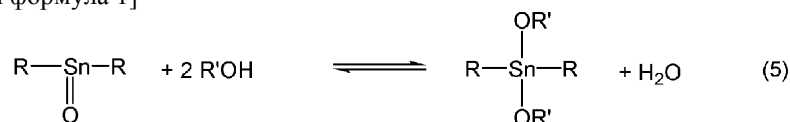
### Уровень техники

Соединения алкилолова широко используются в качестве разновидности катализаторов органического синтеза. Подгруппа диалкоксидов диалкилолова в значительной степени пригодна в качестве катализаторов, таких как катализаторы синтеза сложных эфиров, катализаторы синтеза сложных эфиров угольной кислоты, катализаторы реакции переэтерификации и катализаторы отверждения силиконового полимера или уретана. Сложные эфиры угольной кислоты используют в качестве добавок, таких как добавки к бензину с целью повышения октанового числа и добавки к дизельному топливу с целью снижения содержания твердых частиц в выхлопном газе, в то же время они также являются пригодными соединениями в качестве алкилирующих агентов, карбонилирующих агентов, растворителей и т.п. для синтеза органических соединений, таких как поликарбонаты и уретаны, лекарственные средства и сельскохозяйственные химикаты или литиевые аккумуляторные батареи, исходные материалы для получения смазочных масел или исходные материалы для вещества для раскислителей для предотвращения образования ржавчины котельных труб, и вышеуказанные диалкоксиды диалкилолова представляют особый интерес в качестве катализаторов для их синтеза.

В патентной литературе 1 описан способ получения сложных эфиров угольной кислоты посредством термического разложения продукта присоединения, образованного посредством реакции металлоорганического соединения, содержащего диалкоксид диалкилолова, с диоксидом углерода.

В предшествующем уровне техники известны способы получения диалкоксидов диалкилолова посредством реакции дегидрирования оксидов диалкилолова и спиртов и удаления компонентов с низкой температурой кипения, включая воду, собранную из реакционной смеси (см., например, патентную литературу 2-4 и непатентную литературу 1-2). Предполагается, что способы получения диалкоксидов диалкилолова посредством реакции дегидрирования оксидов диалкилолова со спиртами являются равновесными реакциями, возникающими с дегидрированием, представленными химическим уравнением (5).

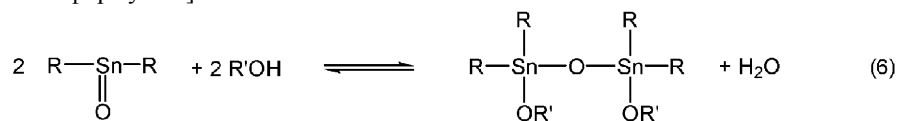
[Химическая формула 1]



[В данном уравнении R и R' представляют собой алкильные группы].

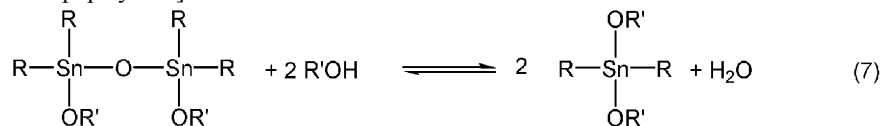
В подавляющем большинстве случаев в равновесной реакции равновесие смещено влево, и, возможно, оно часто сопровождается последующей реакцией дегидрирования посредством тетраалкилдиалкоксидистанноксана, как представлено химическими уравнениями (6) и (7).

[Химическая формула 2]



В данном уравнении R и R' представляют собой алкильные группы.

[Химическая формула 3]



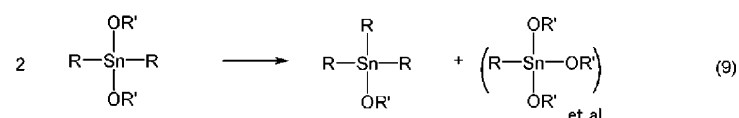
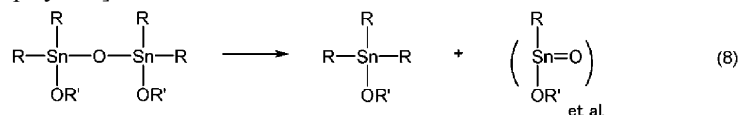
В данном уравнении R и R' представляют собой алкильные группы.

Для получения диалкоксида диалкилолова с высоким выходом получение проводят при удалении воды, собранной посредством реакции дегидрирования из системы, но, так как эта реакция невыгодна в отношении энергии, реакцию следует проводить в течение длительного периода времени при высокой температуре (например, 180°C). Даже при использовании диалкоксидов диалкилолова в качестве катализаторов для других реакции этерификации и реакции уретанирования их часто применяют при высоких температурах, превышающих 100°C.

С другой стороны, известно, что посредством нагревания соединений алкоксида диалкилолова (таких как диалкоксиды диалкилолова) приблизительно до 180°C, например, образуются модифицированные формы, такие как алкоксиды триалкилолова с тремя алкильными группами на одном атоме олова (см., например, непатентную литературу 2). Несмотря на то, что остается неясным, посредством какой

реакции получают алкоксиды триалкилолова, полагают, что алкильные группы переносят внутри молекулы. Например, когда алкоксидом алкилолова является тетраалкилдиалкоксидистанноксан, подтверждено образование модифицированных соединений (алкоксидов триалкилолова и компонентов олова с высокой температурой кипения) посредством реакции диспропорционирования, представленной химическим уравнением (8), и. когда алкоксидом диалкилолова является диалкоксид диалкилолова, подтверждено образование модифицированных соединений (алкоксидов триалкилолова и компонентов олова с высокой температурой кипения) посредством реакции диспропорционирования, представленной химическим уравнением (9), в то время как получение алкоксидов триалкилолова также подтверждается с течением времени во время синтеза диалкоксидов диалкилолова из оксидов диалкилолова и спиртов и во время синтеза диалкоксидов диалкилолова из тетраалкилдиалкоксидистанноксанов и спиртов. На всем протяжении описания настоящего изобретения "компонент олова" относится к соединению, содержащему все атомы олова, имеющиеся в реакционной смеси или композиции.

[Химическая формула 4]



Исходя из химического уравнения (8), сделан вывод, что алкоксид триалкилолова и соединение моноалкилолова с одной алкильной группой на одном атоме олова образуются как модифицированные формы тетраалкилдиалкоксидистанноксана. Авторы настоящего изобретения фактически подтвердили, что алкоксиды триалкилолова и компоненты олова с высокой температурой кипения присутствуют в числе модифицированных форм тетраалкилдиалкоксидистанноксанов, и сделан предположительный вывод о том, что компоненты олова с высокой температурой кипения соответствуют соединениям моноалкилолова.

Однако до настоящего времени не изучены структуры компонентов олова с высокой температурой кипения, которые предположительно соответствуют соединениям моноалкилолова. Модифицированные соединения, предположительно являющиеся алкоксидами триалкилолова и алкоксидами моноалкилолова, также получают из диалкоксидов диалкилолова, но структуры модифицированных соединений, предположительно являющихся алкоксидами моноалкилолова, до настоящего времени не исследованы.

Образование таких модифицированных соединений было также подтверждено в процессе получения вышеупомянутых диалкоксидов диалкилолова и в процессе получения сложных эфиров угольной кислоты посредством термического разложения продуктов присоединения, образованных посредством реакции диоксида углерода с металлоорганическими соединениями, содержащими диалкоксиды диалкилолова.

Известна крайне низкая способность алкоксидов триалкилолова к образованию сложных эфиров угольной кислоты при получении сложных эфиров угольной кислоты посредством реакции диоксида углерода с соединениями олова (см., например, непатентную литературу 3). Компоненты олова с высокой температурой кипения, которые присутствуют в числе вышеуказанных модифицированных соединений и структуры которых невозможно определить, также обладают низкой способностью к образованию сложных эфиров угольной кислоты при получении сложных эфиров угольной кислоты посредством реакции диоксида углерода с соединениями олова (см., например, непатентную литературу 4).

Таким образом, в связи с тем, что модифицированные соединения не проявляют высокой реактивности при получении сложных эфиров угольной кислоты посредством реакции диоксида углерода с соединениями олова, когда такие модифицированные соединения получают в ходе получения таких сложных эфиров угольной кислоты, повторное использование соединений алкоксида алкилолова приведет к накоплению модифицированных форм соединений алкоксида диалкилолова с низкой активностью и уменьшению количественного соотношения активных соединений алкоксида диалкилолова, зачастую со снижением скорости реакции и уменьшением выхода сложных эфиров угольной кислоты. В таких случаях добавляют небольшое количество свежего соединения алкоксида диалкилолова с целью поддержания постоянной скорости реакции или выхода для большинства реакций, но простое добавление свежих соединений алкоксида диалкилолова с сохранением модифицированных соединений приводит к проблеме накопления большого количества продуктов разрушения с низкой активностью (модифицированные соединения) в реакционной системе. Даже когда некоторые соединения алкоксида алкилолова, содержащие модифицированные продукты соединений алкоксида диалкилолова, экстрагируют из реакционной системы при одновременном добавлении свежих соединений алкоксида диалкилолова для поддержания постоянной концентрации соединений алкоксида диалкилолова в реакционной системе, модифицированные соединения алкоксида диалкилолова, которые экстрагировали, представляют собой не только отхо-

ды, но активные соединения алкоксида диалкилолова также экстрагируют одновременно как отходы, и это приводит к основным проблемам в отношении стоимости и утилизации.

Для решения данной проблемы представлено несколько растворов (см., например, патентную литературу 5-6). В частности, в патентной литературе 5 описан способ, при котором во время получения сложных эфиров угольной кислоты с использованием соединений алкоксида диалкилолова, содержащих модифицированные формы соединений алкоксида диалкилолова, компонент соединения триалкилолова отделен посредством дистилляции из соединений алкоксида диалкилолова, включающих модифицированные соединения, таким образом, предотвращая их накопление в реакционной системе. Однако компоненты олова с высокой температурой кипения, структуры которых невозможно определить и которые присутствуют в числе модифицированных форм соединений алкоксида диалкилолова, невозможно удалить из реакционной системы, и, таким образом, не представляется возможным полностью предотвратить накопление модифицированных соединений алкоксида диалкилолова посредством данного способа.

Ранее авторы настоящего изобретения описали способ разделения и восстановления продуктов, полученных из соединений алкоксида диалкилолова в качестве диалкоксидов диалкилолова, посредством реакции спиртов и/или сложных эфиров угольной кислоты со смесями соединений алкоксида диалкилолова и модифицированными формами соединений алкоксида диалкилолова, экстрагированными из реакционной системы (см. патентную литературу 6). Этот способ решил проблему, при которой активные соединения алкоксида диалкилолова удаляют вместе с модифицированными соединениями, обеспечивая селективное удаление только модифицированных форм соединений алкоксида диалкилолова. Однако ввиду отсутствия возможности повторного использования модифицированных соединений алкоксида диалкилолова, сохраняется проблема стоимости и утилизации отходов.

Кроме того, авторы настоящего изобретения также описали способ высокоэффективного восстановления диалкоксидов диалкилолова посредством подтверждения соединений олова, полученных из реакции диспропорционирования, реакции перераспределения (см. патентную литературу 7). Авторы также описали способ получения сложных эфиров угольной кислоты на протяжении длительного периода времени без потери продуктивности посредством включения стадии вышеуказанной реакции перераспределения в качестве стадии процессов синтеза сложных эфиров угольной кислоты (см. патентную литературу 8).

Однако до настоящего момента не представлялось возможным предотвращение инактивации самих соединений диалкоксида диалкилолова, и существует необходимость в разработке соединений алкоксида диалкилолова, устойчивых к реакции диспропорционирования при использовании в синтезе сложных эфиров, реакции уретанирования и т.п., и катализаторов алкилолова с высокой продуктивностью сложных эфиров угольной кислоты, с минимальной инактивацией диспропорционирования, в особенности во время получения сложных эфиров угольной кислоты, обладающих высокой практической промышленной ценностью, и этому по-прежнему необходимо найти решение.

#### **Список библиографических ссылок**

Патентная литература.

Патентная литература 1: Международная публикация патента № WO 2003/055840.

Патентная литература 2: Патент США № 5545600.

Патентная литература 3: Международная публикация патента № WO 2005/111049.

Патентная литература 4: Публикация нерассмотренной заявки на патент Японии № 2005-298433.

Патентная литература 5: Международная публикация патента № WO 2004/014840.

Патентная литература 6: Международная публикация патента № WO 2007/097388.

Патентная литература 7: Международная публикация патента № WO 2008/044575.

Патентная литература 8: Международная публикация патента № WO 2010/016297.

Непатентная литература.

Непатентная литература 1: Journal of Chemical Society, 23(1971), 3972.

Непатентная литература 2: Kogaku Kagaku Zasshi, т. 72, № 7, 1543-1549 (1969).

Непатентная литература 3: Journal of the American Chemical Society, 121 (1999), 3793.

#### **Сущность изобретения**

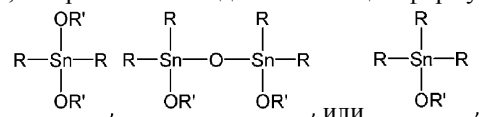
##### **Техническая задача**

Целью изобретения является обеспечение соединений алкилолова с минимальным получением модифицированных соединений (неактивированных форм) даже при повторном использовании при высоких температурах.

##### **Решение задачи**

В результате тщательно выполненного исследования, направленного на достижение данной цели, авторы настоящего изобретения обнаружили, что вышеописанные проблемы можно преодолеть посредством соединений алкилолова с конкретными разветвленными алкильными или алкильными группами, замещенными циклической группой, и, таким образом, осуществили настоящее изобретение. В частности, изобретение относится к следующему.

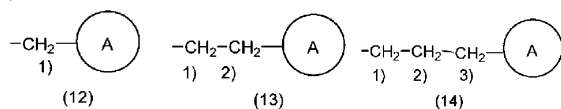
[1] Соединение алкилолова, выбранное из соединений общих формул:



где каждый из множества R независимо представляет собой разветвленную алкильную группу или алкильную группу, замещенную циклической группой, а каждый из множества OR' независимо представляет собой C<sub>2-8</sub>алкоксигруппу,

в котором разветвленной алкильной группой является C<sub>5-18</sub>алкильная группа, разветвленная по меньшей мере на одном атоме углерода из числа атомов углерода с первого по третий с началом отсчета от атома олова; и

алкильной группой, замещенной циклической группой, является алкильная группа, представленная формулами (12), (13) или (14):



где кольцо A представляет собой C<sub>3-16</sub>алициклическую углеводородную группу или C<sub>6-16</sub>ароматическую углеводородную группу.

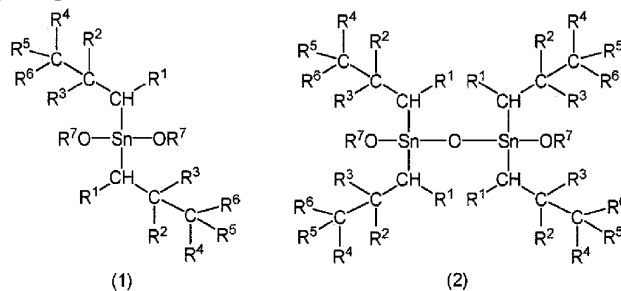
[2] Соединение алкилолова в соответствии с [1], имеющее от одного до трех разветвленных алкильных групп, связанных с одним атомом олова, атом олова является четырехвалентным.

[3] Соединение алкилолова в соответствии с [2], где разветвленной алкильной группой является C<sub>4-18</sub>разветвленная алкильная группа и C<sub>1-8</sub>алкоксигруппа также связана с атомом олова.

[4] Соединение алкилолова в соответствии с [2] или [3], являющееся алкоксидом диалкилолова или тетраалкилдиалкоксидистанноксаном.

[5] Соединение алкилолова в соответствии с [4], являющееся соединением, представленным формулой (1), или соединением, представленным формулой (2):

[Химическая формула 5]

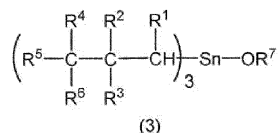


где каждый из R<sup>1</sup>, R<sup>2</sup>, R<sup>3</sup>, R<sup>4</sup>, R<sup>5</sup> и R<sup>6</sup> независимо представляет собой водород или C<sub>1-15</sub>алкильную группу и R<sup>7</sup> представляет собой C<sub>1-8</sub>алкильную группу при условии, что не все из R<sup>1</sup>, R<sup>2</sup>, R<sup>3</sup>, R<sup>4</sup>, R<sup>5</sup> и R<sup>6</sup> являются водородом, по меньшей мере один из R<sup>1</sup>, R<sup>2</sup> и R<sup>3</sup> является алкильной группой или все из R<sup>1</sup>, R<sup>2</sup> и R<sup>3</sup> являются водородом и по меньшей мере два из R<sup>4</sup>, R<sup>5</sup> и R<sup>6</sup> являются алкильными группами, общее число атомов углерода R<sup>1</sup>, R<sup>2</sup>, R<sup>3</sup>, R<sup>4</sup>, R<sup>5</sup> и R<sup>6</sup> составляет от 2 до 15.

[6] Соединение алкилолова в соответствии с [2] или [3], являющееся соединением триалкилолова.

[7] Соединение алкилолова в соответствии с [6], являющееся соединением, представленным формулой (3):

[Химическая формула 6]



где каждый из R<sup>1</sup>, R<sup>2</sup>, R<sup>3</sup>, R<sup>4</sup>, R<sup>5</sup> и R<sup>6</sup> независимо представляет собой водород или C<sub>1-15</sub>алкильную группу и R<sup>7</sup> представляет собой C<sub>1-8</sub>алкильную группу при условии, что не все из R<sup>1</sup>, R<sup>2</sup>, R<sup>3</sup>, R<sup>4</sup>, R<sup>5</sup> и R<sup>6</sup> являются водородом, по меньшей мере один из R<sup>1</sup>, R<sup>2</sup> и R<sup>3</sup> является алкильной группой или все из R<sup>1</sup>, R<sup>2</sup> и R<sup>3</sup> являются водородом и по меньшей мере два из R<sup>4</sup>, R<sup>5</sup> и R<sup>6</sup> являются алкильной группой, общее число атомов углерода R<sup>1</sup>, R<sup>2</sup>, R<sup>3</sup>, R<sup>4</sup>, R<sup>5</sup> и R<sup>6</sup> составляет от 2 до 15.

[8] Соединение алкилолова в соответствии с [3], где алкоксигруппа является алкоксигруппой, выбранной из числа n-бутилокси, изобутилокси, втор-бутилокси и C<sub>5-8</sub>алкоксигрупп.

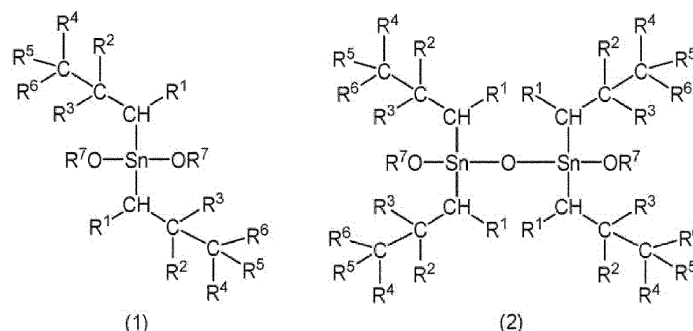
[9] Соединение алкилолова в соответствии с [3] или [8], где алкоксигруппа является разветвленной алкоксигруппой.

[10] Соединение алкилолова в соответствии с любым из [3], [8] и [9], являющееся алкоксидом алкилолова, полученным из карбоксилата алкилолова, оксида алкилолова, полимера оксида алкилолова

или галогенида алкилолова.

[11] Соединение алкилолова в соответствии с [2], являющееся алкоксидом алкилолова с  $C_{5-18}$ разветвленной алкильной группой и  $C_{4-8}$ разветвленной алкоксигруппой, и являющееся соединением, представленным формулой (1), или соединением, представленным формулой (2):

[Химическая формула 7]



где каждый из  $R^1, R^2, R^3, R^4, R^5$  и  $R^6$  независимо представляет собой водород или  $C_{1-15}$ алкильную группу и  $R^7$  представляет собой  $C_{4-8}$ разветвленную алкильную группу при условии, что не все из  $R^1, R^2, R^3, R^4, R^5$  и  $R^6$  являются водородом, по меньшей мере один из  $R^1, R^2$  и  $R^3$  является алкильной группой или все из  $R^1, R^2$  и  $R^3$  являются водородом и по меньшей мере два из  $R^4, R^5$  и  $R^6$  являются алкильными группами, общее число атомов углерода  $R^1, R^2, R^3, R^4, R^5$  и  $R^6$  составляет от 2 до 15.

[12] Композиция, содержащая соединение алкилолова в соответствии с любым из [1] - [11].

[13] Композиция в соответствии с [12], содержащая соединение алкилолова в соответствии с [4] или [5] и соединение алкилолова в соответствии с [6] или [7].

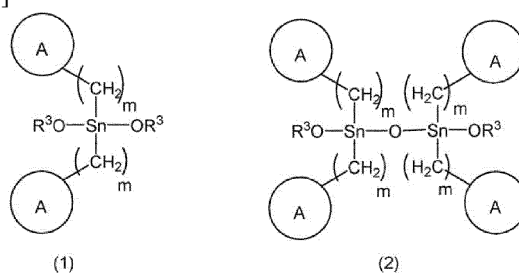
[14] Соединение алкилолова в соответствии с [1], являющееся соединением алкилолова с алкильной группой, замещенной циклической группой, связанной с атомом олова, алкильной группой, замещенной циклической группой, является алкильная группа с циклической группой, выбранной из числа алициклических углеводородных групп и ароматических углеводородных групп, связанных по меньшей мере с одним атомом углерода из числа атомов углерода с первого по третий с началом отсчета от атома олова, и атом олова является четырехвалентным.

[15] Соединение алкилолова в соответствии с [14], где соединение алкилолова также имеет  $C_{1-8}$ алкоксигруппу, и циклической группой является  $C_{4-18}$ циклическая группа.

[16] Соединение алкилолова в соответствии с [14] или [15], являющееся диалкоксидом ди(алкил(замещенный циклической группой))олова или тетра(алкил(замещенный циклической группой))диалкоксидистанноксаном.

[17] Соединение алкилолова в соответствии с [16], являющееся соединением, представленным следующей формулой (1), или соединением, представленным формулой (2):

[Химическая формула 8]

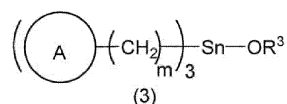


где кольцо А представляет собой  $C_{3-16}$ алициклическую углеводородную группу или  $C_{6-16}$ ароматическую углеводородную группу, m является целым числом от 1 до 3 и  $R^3$  представляет собой  $C_{1-8}$ алкильную группу.

[18] Соединение алкилолова в соответствии с [14] или [15], являющееся соединением три(алкил(замещенный циклической группой))олова.

[19] Соединение алкилолова в соответствии с [18], являющееся соединением, представленным формулой (3):

[Химическая формула 9]



где кольцо А представляет собой  $C_{3-16}$ алициклическую углеводородную группу или  $C_{6-16}$ ароматическую углеводородную группу, m является целым числом от 1 до 3 и  $R^3$  представляет собой  $C_{1-8}$ алкильную группу.

[20] Соединение алкилолова в соответствии с [15], где алкоксигруппой является  $C_{4-8}$ алкоксигруппа и спиртом, соответствующим алкоксигруппе, является спирт с температурой кипения  $100^{\circ}C$  или выше при обычном давлении.

[21] Соединение алкилолова в соответствии с [20], где спирт образует азеотропную смесь с водой.

[22] Соединение алкилолова в соответствии с любым из [15], [20] и [21], где алкоксигруппой является разветвленная алкоксигруппа.

[23] Соединение алкилолова в соответствии с любым из [15], [20], [21] и [22], являющееся алкоксидом алкилолова, полученным из карбоксилата алкил(замещенный циклической группой)олова, оксида алкил(замещенный циклической группой)олова, полимера оксида алкил(замещенный циклической группой)олова или галогенированного соединения алкил(замещенный циклической группой)олова.

[24] Композиция, содержащая соединение алкилолова в соответствии с любым из [14]-[23].

[25] Композиция в соответствии с [24], содержащая соединение алкилолова в соответствии с [16] или [17] и содержащая соединение алкилолова в соответствии с [18] или [19].

[25] Катализатор для способа получения сложного эфира угольной кислоты из диоксида углерода и спирта, содержащий соединение алкилолова в соответствии с любым из [1]-[11] и [14]-[23].

[27] Способ получения сложного эфира угольной кислоты с использованием соединения алкилолова в соответствии с любым из [1]-[11] и [14]-[23], включающий следующие стадии с (1) по (3):

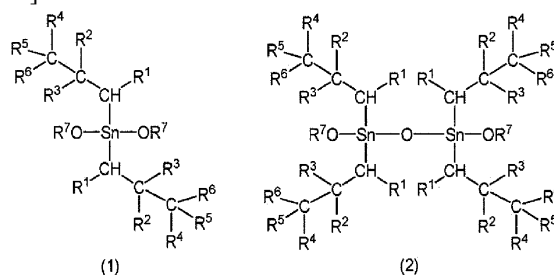
стадия (1): стадия реакции соединения алкилолова с диоксидом углерода для получения реакционной смеси, содержащей сложный эфир угольной кислоты;

стадия (2): стадия отделения сложного эфира угольной кислоты от реакционной смеси для получения остаточного раствора;

стадия (3): стадия реакции остаточного раствора со спиртом и удаления воды, полученной посредством реакции, для получения алкоксида алкилолова и повторного использования его на стадии (1).

[28] Способ в соответствии с [27], где соединение алкилолова включает или любое из или одновременно соединение, представленное формулой (1), и/или соединение, представленное формулой (2):

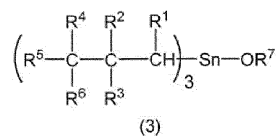
[Химическая формула 10]



где каждый из  $R^1$ ,  $R^2$ ,  $R^3$ ,  $R^4$ ,  $R^5$  и  $R^6$  независимо представляет собой водород или  $C_{1-15}$ алкильную группу и  $R^7$  представляет собой  $C_{1-8}$ алкильную группу при условии, что не все из  $R^1$ ,  $R^2$ ,  $R^3$ ,  $R^4$ ,  $R^5$  и  $R^6$  являются водородом, по меньшей мере один из  $R^1$ ,  $R^2$  и  $R^3$  является алкильной группой или все из  $R^1$ ,  $R^2$  и  $R^3$  являются водородом и по меньшей мере два из  $R^4$ ,  $R^5$  и  $R^6$  являются алкильными группами, общее число атомов углерода  $R^1$ ,  $R^2$ ,  $R^3$ ,  $R^4$ ,  $R^5$  и  $R^6$  составляет от 2 до 15.

[29] Способ в соответствии с [28], где соединение алкилолова также содержит соединение, представленное формулой (3):

[Химическая формула 11]



где каждый из  $R^1$ ,  $R^2$ ,  $R^3$ ,  $R^4$ ,  $R^5$  и  $R^6$  независимо представляет собой водород или  $C_{1-15}$ алкильную группу и  $R^7$  представляет собой  $C_{1-8}$ алкильную группу при условии, что не все из  $R^1$ ,  $R^2$ ,  $R^3$ ,  $R^4$ ,  $R^5$  и  $R^6$  являются водородом, по меньшей мере один из  $R^1$ ,  $R^2$  и  $R^3$  является алкильной группой или все из  $R^1$ ,  $R^2$  и  $R^3$  являются водородом и по меньшей мере два из  $R^4$ ,  $R^5$  и  $R^6$  являются алкильными группами, общее число атомов углерода  $R^1$ ,  $R^2$ ,  $R^3$ ,  $R^4$ ,  $R^5$  и  $R^6$  составляет от 2 до 15.

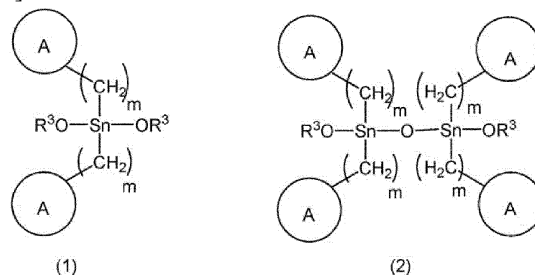
Способ в соответствии с [28] или [29], где алкоксигруппа соединения алкилолова выбрана из числа *n*-бутилокси, изобутилокси, втор-бутилокси и  $C_{5-8}$ алкоксигрупп.

Способ в соответствии с любым из [28]-[30], где спиртом является спирт, выбранный из числа *n*-бутилового спирта, изобутилового спирта, втор-бутилового спирта и  $C_{5-8}$ алкиловых спиртов.

[32] Способ в соответствии с любым из [28]-[31], где алкоксигруппой соединения алкилолова является разветвленная алкоксигруппа и спиртом является разветвленный спирт, соответствующий разветвленной алкоксигруппе.

[33] Способ в соответствии с [27], где соединение алкилолова включает или любое из или одновременно соединение, представленное формулой (1), и/или соединение, представленное формулой (2):

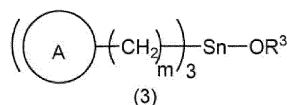
[Химическая формула 12]



где кольцо А представляет собой C<sub>3-16</sub>алициклическую углеводородную группу или C<sub>6-16</sub>ароматическую углеводородную группу, m является целым числом от 1 до 3 и R<sup>3</sup> представляет собой C<sub>1-8</sub>алкильную группу.

[34] Способ в соответствии с [33], где соединение алкилолова также включает соединение, представленное формулой (3):

[Химическая формула 13]



где кольцо А представляет собой C<sub>3-16</sub>алициклическую углеводородную группу или C<sub>6-16</sub>ароматическую углеводородную группу, m является целым числом от 1 до 3 и R<sup>3</sup> представляет собой C<sub>1-8</sub>алкильную группу.

[35] Способ в соответствии с [33] или [34], где алкоксигруппы соединения, представленного формулой (1), и соединения, представленного формулой (2), являются C<sub>4-8</sub>алкоксигруппами, спирты, соответствующие алкоксигруппам, являются спиртами с температурой кипения 100°C или выше при обычном давлении, и спиртом, используемым на стадии (3), является спирт, соответствующий алкоксигруппе.

[36] Способ в соответствии с [33] или [34], где спиртом является C<sub>4-8</sub>спирт с температурой кипения 100°C или выше при обычном давлении.

[37] Способ в соответствии с любым из [33]-[36], где спиртом является спирт, выбранный из числа n-бутилового спирта, изобутилового спирта, втор-бутилового спирта и C<sub>5-8</sub>алкиловых спиртов.

[38] Способ в соответствии с любым из [33]-[37], где алкоксигруппой соединения алкилолова является разветвленная алкоксигруппа и спиртом является разветвленный спирт.

#### Полезный эффект изобретения

По изобретению представлены соединения алкилолова с минимальным получением модифицированных соединений (неактивированных форм) даже при повторном использовании при высоких температурах. Ввиду того, что соединения алкилолова по изобретению могут свести к минимуму образование неактивированных форм даже при использовании при высоких температурах и обеспечить стабильное повторное и непрерывное получение сложных эфиров, они в большой степени пригодны в промышленной области для синтеза сложных эфиров.

#### Краткое описание фигур

Фиг. 1 представляет собой схематическое изображение циркуляционного реактора непрерывного действия, в котором сложноэфирное соединение получают посредством реакции переэтерификации с использованием соединения алкилолова по одному из вариантов осуществления изобретения.

Фиг. 2 представляет собой схематическое изображение циркуляционного реактора непрерывного действия, в котором сложноэфирное соединение получают посредством реакции переэтерификации с использованием соединения алкилолова по одному из вариантов осуществления изобретения.

Фиг. 3 представляет собой схематическое изображение циркуляционного реактора непрерывного действия, в котором сложноэфирное соединение получают посредством реакции переэтерификации с использованием соединения алкилолова по одному из вариантов осуществления изобретения.

Фиг. 4 представляет собой схематическое изображение циркуляционного реактора непрерывного действия, в котором сложный эфир угольной кислоты получают с использованием соединения алкилолова по одному из вариантов осуществления изобретения.

Фиг. 5 представляет собой схематическое изображение циркуляционного реактора непрерывного действия, в котором сложный эфир угольной кислоты получают с использованием соединения алкилолова по одному из вариантов осуществления изобретения.

#### Описание вариантов осуществления изобретения

Далее следует подробное описание предпочтительных способов осуществления изобретения (в настоящем документе обозначаемых как "варианты осуществления изобретения"). Изобретение не ограничено описываемыми вариантами осуществления изобретения, и его можно осуществлять с различными модификациями, такими как те, которые находятся в пределах объема и сущности изобретения.

По одному из аспектов изобретение относится к соединениям алкилолова с алкильной группой, свя-



занной с атомом олова. В соединении алкилолова алкильной группой является разветвленная алкильная группа или алкильная группа, замещенная циклической группой, разветвленной алкильной группой является алкильная группа, разветвленная по меньшей мере на одном атоме углерода из числа атомов углерода с первого по третий с началом отсчета от атома олова, и алкильной группой, замещенной циклической группой, является алкильная группа с циклической группой, присоединенной по меньшей мере на одном атоме углерода из числа атомов углерода с первого по третий с началом отсчета от атома олова.

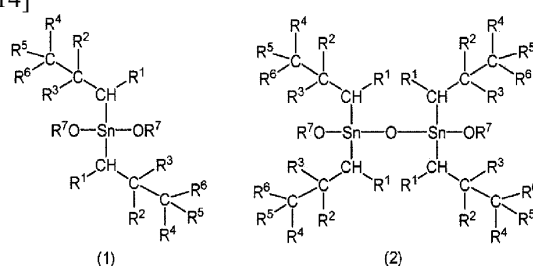
По одному из вариантов осуществления изобретения соединением алкилолова может быть соединение алкилолова с одной-тремя разветвленными алкильными группами, связанными с одним атомом олова. Атом олова может быть четырехвалентным.

По одному из вариантов осуществления изобретения разветвленными алкильными группами могут быть  $C_{4-18}$ разветвленные алкильные группы. Атом олова может также иметь  $C_{1-8}$ алкоксигруппу, связанную с ним.

По одному из вариантов осуществления изобретения соединением алкилолова может быть алкоксид диалкилолова или тетраалкилдиалкоксидистанноксан.

По одному из вариантов осуществления изобретения соединением алкилолова может быть соединение, представленное формулой (1), или соединение, представленное формулой (2):

[Химическая формула 14]

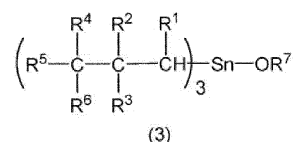


где каждый из R<sup>1</sup>, R<sup>2</sup>, R<sup>3</sup>, R<sup>4</sup>, R<sup>5</sup> и R<sup>6</sup> независимо представляет собой водород или C<sub>1-15</sub>алкильную группу и R<sup>7</sup> представляет собой C<sub>1-8</sub>алкильную группу при условии, что не все из R<sup>1</sup>, R<sup>2</sup>, R<sup>3</sup>, R<sup>4</sup>, R<sup>5</sup> и R<sup>6</sup> являются водородом, по меньшей мере один из R<sup>1</sup>, R<sup>2</sup> и R<sup>3</sup> является алкильной группой или все из R<sup>1</sup>, R<sup>2</sup> и R<sup>3</sup> являются водородом и по меньшей мере два из R<sup>4</sup>, R<sup>5</sup> и R<sup>6</sup> являются алкильными группами, общее число атомов углерода R<sup>1</sup>, R<sup>2</sup>, R<sup>3</sup>, R<sup>4</sup>, R<sup>5</sup> и R<sup>6</sup> составляет от 2 до 15.

По одному из вариантов осуществления изобретения соединением алкилолова может быть соединение триалкилолова.

По одному из вариантов осуществления изобретения соединением алкилолова может быть соединение, представленное формулой (3):

[Химическая формула 15]



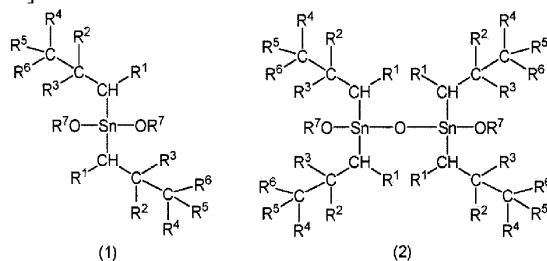
где каждый из R<sup>1</sup>, R<sup>2</sup>, R<sup>3</sup>, R<sup>4</sup>, R<sup>5</sup> и R<sup>6</sup> независимо представляет собой водород или C<sub>1-15</sub>алкильную группу, и R<sup>7</sup> представляет собой C<sub>1-8</sub>алкильную группу при условии, что не все из R<sup>1</sup>, R<sup>2</sup>, R<sup>3</sup>, R<sup>4</sup>, R<sup>5</sup> и R<sup>6</sup> являются водородом, по меньшей мере один из R<sup>1</sup>, R<sup>2</sup> и R<sup>3</sup> является алкильной группой или все из R<sup>1</sup>, R<sup>2</sup> и R<sup>3</sup> являются водородом и по меньшей мере два из R<sup>4</sup>, R<sup>5</sup> и R<sup>6</sup> являются алкильными группами, общее число атомов углерода R<sup>1</sup>, R<sup>2</sup>, R<sup>3</sup>, R<sup>4</sup>, R<sup>5</sup> и R<sup>6</sup> составляет от 2 до 15.

По одному из вариантов осуществления изобретения атом олова может также иметь C<sub>1-8</sub>алкоксигруппу, связанную с ним. В этом случае алкоксигруппой может быть алкоксигруппа, выбранная из числа n-бутилокси, изобутилокси, втор-бутилокси и C<sub>5-8</sub>алкоксигрупп. Алкоксигруппой также может быть разветвленная алкоксигруппа.

По одному из вариантов осуществления изобретения соединением алкилолова может быть алкоксид алкилолова, полученный из карбоксилата алкилолова, оксида алкилолова, полимера оксида алкилолова или галогенида алкилолова.

По одному из вариантов осуществления изобретения соединением алкилолова может быть алкоксид алкилолова с C<sub>5-18</sub>разветвленной алкильной группой и C<sub>4-8</sub>разветвленной алкоксигруппой, и им может быть соединение, представленное формулой (1), или соединение, представленное формулой (2):

[Химическая формула 16]



где каждый из  $R^1, R^2, R^3, R^4, R^5$  и  $R^6$  независимо представляет собой водород или  $C_{1-15}$ алкильную группу и  $R^7$  представляет собой  $C_{4-8}$ разветвленную алкильную группу при условии, что не все из  $R^1, R^2, R^3, R^4, R^5$  и  $R^6$  являются водородом, по меньшей мере один из  $R^1, R^2$  и  $R^3$  является алкильной группой или все из  $R^1, R^2$  и  $R^3$  являются водородом и по меньшей мере два из  $R^4, R^5$  и  $R^6$  являются алкильными группами, общее число атомов углерода  $R^1, R^2, R^3, R^4, R^5$  и  $R^6$  составляет от 2 до 15.

По одному из вариантов осуществления изобретения соединением алкилолова может быть соединение алкилолова с алкильной группой, замещенной циклической группой, соединенной с атомом олова, алкильной группой, замещенной циклической группой, является алкильная группа с циклической группой, выбранной из числа алициклических углеводородных групп и ароматических углеводородных групп, связанных по меньшей мере с одним атомом углерода из числа атомов углерода с первого по третий с началом отсчета от атома олова, и атом олова является четырехвалентным.

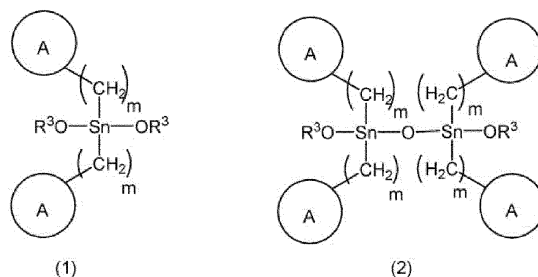
По одному из вариантов осуществления изобретения соединение алкилолова может иметь также  $C_{1-8}$ алкоксигруппу.

По одному из вариантов осуществления изобретения циклической группой может быть  $C_{4-18}$ циклическая группа.

По одному из вариантов осуществления соединением алкилолова может быть диалкоксид ди(алкил(замещенный циклической группой)олова или тетра(алкил(замещенный циклической группой)диалкоксидистанноксан.

По одному из вариантов осуществления изобретения соединением алкилолова может быть соединение, представленное формулой (1), или соединение, представленное формулой (2):

[Химическая формула 17]

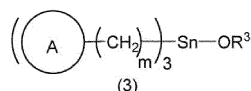


где кольцо А представляет собой  $C_{3-16}$ алициклическую углеводородную группу или  $C_{6-16}$ ароматическую углеводородную группу,  $m$  является целым числом от 1 до 3 и  $R^3$  представляет собой  $C_{1-8}$ алкильную группу.

По одному из вариантов осуществления изобретения соединением алкилолова может быть соединение три(алкил(замещенный циклической группой)олова.

По одному из вариантов осуществления изобретения соединением алкилолова может быть соединение, представленное формулой (3):

[Химическая формула 18]



где кольцо А представляет собой  $C_{3-16}$ алициклическую углеводородную группу или  $C_{6-16}$ ароматическую углеводородную группу,  $m$  является целым числом от 1 до 3 и  $R^3$  представляет собой  $C_{1-8}$ алкильную группу.

По одному из вариантов осуществления изобретения соединением алкилолова может также иметь  $C_{1-8}$ алкоксигруппу, связанную с атомом олова. Алкоксигруппой может быть  $C_{4-8}$ алкоксигруппа. Спиртом, соответствующим алкоксигруппе, является предпочтительно спирт с температурой кипения  $100^\circ\text{C}$  или выше при обычном давлении.

По одному из вариантов осуществления изобретения спиртом является предпочтительно спирт, образующий азеотропную смесь с водой.

По одному из вариантов осуществления изобретения алкоксигруппой может быть разветвленная

алкоксигруппа.

По одному из вариантов осуществления изобретения соединением алкилолова может быть алкоксид алкилолова, полученный из карбоксилата алкил(замещенный циклической группой)олова, оксида алкил(замещенный циклической группой)олова, полимера оксида алкил алкил(замещенный циклической группой)олова или галогенированного соединения алкил алкил(замещенный циклической группой)олова.

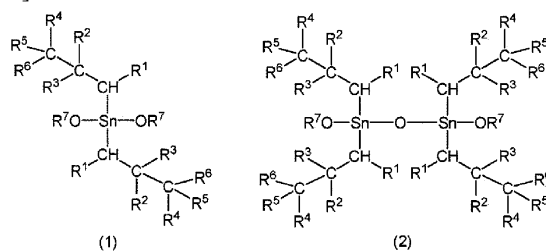
По другому аспекту изобретение относится к композиции, содержащей соединение алкилолова.

По одному из вариантов осуществления изобретения композицией может быть композиция, содержащая один или несколько из вышеуказанных соединений алкилолова.

По одному из вариантов осуществления изобретения композицией может быть та, которая содержит по меньшей мере один вид первого соединения алкилолова, выбранного из числа алкоксидов диалкилолова и тетраалкилдиалкоксидистанноксанов, и по меньшей мере один вид второго соединения алкилолова, выбранного из числа соединений триалкилолова.

По одному из вариантов осуществления изобретения первым соединением алкилолова может быть соединение, представленное формулой (1), или соединение, представленное формулой (2):

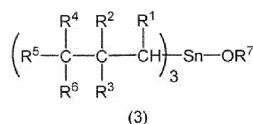
[Химическая формула 19]



где каждый из  $R^1$ ,  $R^2$ ,  $R^3$ ,  $R^4$ ,  $R^5$  и  $R^6$  независимо представляет собой водород или  $C_{1-15}$ алкильную группу и  $R^7$  представляет собой  $C_{1-8}$ алкильную группу при условии, что не все из  $R^1$ ,  $R^2$ ,  $R^3$ ,  $R^4$ ,  $R^5$  и  $R^6$  являются водородом, по меньшей мере один из  $R^1$ ,  $R^2$  и  $R^3$  является алкильной группой или все из  $R^1$ ,  $R^2$  и  $R^3$  являются водородом и по меньшей мере два из  $R^4$ ,  $R^5$  и  $R^6$  являются алкильными группами, общее число атомов углерода  $R^1$ ,  $R^2$ ,  $R^3$ ,  $R^4$ ,  $R^5$  и  $R^6$  составляет от 2 до 15.

По одному из вариантов осуществления изобретения вторым соединением алкилолова может быть соединение, представленное формулой (3):

[Химическая формула 20]

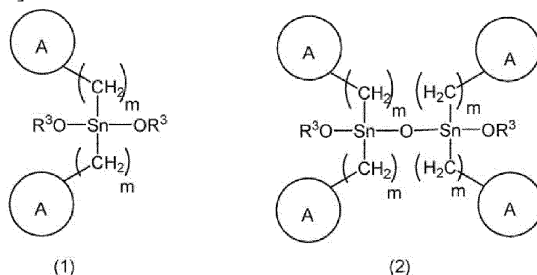


где каждый из  $R^1$ ,  $R^2$ ,  $R^3$ ,  $R^4$ ,  $R^5$  и  $R^6$  независимо представляет собой водород или  $C_{1-15}$ алкильную группу и  $R^7$  представляет собой  $C_{1-8}$ алкильную группу при условии, что не все из  $R^1$ ,  $R^2$ ,  $R^3$ ,  $R^4$ ,  $R^5$  и  $R^6$  являются водородом, по меньшей мере один из  $R^1$ ,  $R^2$  и  $R^3$  является алкильной группой или все из  $R^1$ ,  $R^2$  и  $R^3$  являются водородом и по меньшей мере два из  $R^4$ ,  $R^5$  и  $R^6$  являются алкильными группами, общее число атомов углерода  $R^1$ ,  $R^2$ ,  $R^3$ ,  $R^4$ ,  $R^5$  и  $R^6$  составляет от 2 до 15.

По одному из вариантов осуществления изобретения композиция может содержать по меньшей мере один вид третьего соединения алкилолова, выбранного из числа диалкоксидов ди(алкил алкил(замещенный циклической группой)олова и тетра(алкил(замещенный циклической группой))диалкоксидистанноксанов, и по меньшей мере один вид четвертого соединения алкилолова, выбранного из числа соединений три(алкил(замещенный циклической группой)олова).

По одному из вариантов осуществления изобретения третьим соединением алкилолова может быть соединение, представленное формулой (1), или соединение, представленное формулой (2):

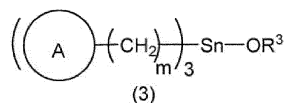
[Химическая формула 21]



где кольцо А представляет собой  $C_{3-16}$ алициклическую углеводородную группу или  $C_{6-16}$ ароматическую углеводородную группу,  $m$  является целым числом от 1 до 3, и  $R^3$  представляет собой  $C_{1-8}$ алкильную группу.

По одному из вариантов осуществления изобретения четвертым соединением алкилолова может быть соединение, представленное формулой (3):

[Химическая формула 22]



где кольцо А представляет собой C<sub>3-16</sub>алициклическую углеводородную группу или C<sub>6-16</sub>ароматическую углеводородную группу, m является целым числом от 1 до 3 и R<sup>3</sup> представляет собой C<sub>1-8</sub>алкильную группу.

В соответствии с еще одним аспектом изобретение относится к катализатору для способа получения сложного эфира угольной кислоты из диоксида углерода и спирта. Катализатор содержит вышеуказанное соединение алкилолова.

В соответствии с еще одним аспектом изобретение относится к способу получения сложного эфира угольной кислоты с использованием соединения алкилолова. Способ получения имеет следующие стадии с (1) по (3).

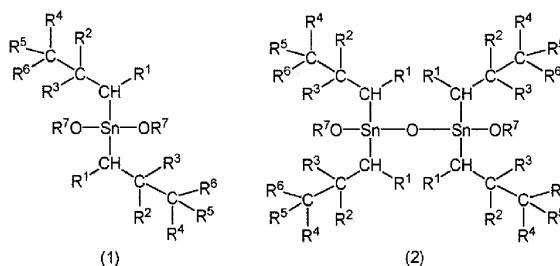
Стадия (1): стадия реакции соединения алкилолова с диоксидом углерода для получения реакционной смеси, содержащей сложный эфир угольной кислоты.

Стадия (2): стадия отделения сложного эфира угольной кислоты от реакционной смеси для получения остаточного раствора.

Стадия (3): стадия реакции остаточного раствора со спиртом и удаления воды, полученной посредством реакции, для получения алкоксида алкилолова и повторного использования его на стадии (1).

По одному из вариантов осуществления изобретения соединение алкилолова в способе получения может включать или любое из или одновременно соединение, представленное формулой (1), и/или соединение, представленное формулой (2)

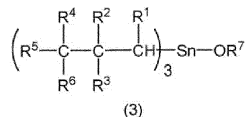
[Химическая формула 23]



где каждый из R<sup>1</sup>, R<sup>2</sup>, R<sup>3</sup>, R<sup>4</sup>, R<sup>5</sup> и R<sup>6</sup> независимо представляет собой водород или C<sub>1-15</sub>алкильную группу и R<sup>7</sup> представляет собой C<sub>1-8</sub>алкильную группу при условии, что не все из R<sup>1</sup>, R<sup>2</sup>, R<sup>3</sup>, R<sup>4</sup>, R<sup>5</sup> и R<sup>6</sup> являются водородом, по меньшей мере один из R<sup>1</sup>, R<sup>2</sup> и R<sup>3</sup> является алкильной группой или все из R<sup>1</sup>, R<sup>2</sup> и R<sup>3</sup> являются водородом и по меньшей мере два из R<sup>4</sup>, R<sup>5</sup> и R<sup>6</sup> являются алкильными группами, общее число атомов углерода R<sup>1</sup>, R<sup>2</sup>, R<sup>3</sup>, R<sup>4</sup>, R<sup>5</sup> и R<sup>6</sup> составляет от 2 до 15.

Соединение алкилолова, используемое в способе получения, может дополнительно содержать соединение, представленное формулой (3):

[Химическая формула 24]



где каждый из R<sup>1</sup>, R<sup>2</sup>, R<sup>3</sup>, R<sup>4</sup>, R<sup>5</sup> и R<sup>6</sup> независимо представляет собой водород или C<sub>1-15</sub>алкильную группу и R<sup>7</sup> представляет собой C<sub>1-8</sub>алкильную группу при условии, что не все из R<sup>1</sup>, R<sup>2</sup>, R<sup>3</sup>, R<sup>4</sup>, R<sup>5</sup> и R<sup>6</sup> являются водородом, по меньшей мере один из R<sup>1</sup>, R<sup>2</sup> и R<sup>3</sup> является алкильной группой или все из R<sup>1</sup>, R<sup>2</sup> и R<sup>3</sup> являются водородом и по меньшей мере два из R<sup>4</sup>, R<sup>5</sup> и R<sup>6</sup> являются алкильными группами, общее число атомов углерода R<sup>1</sup>, R<sup>2</sup>, R<sup>3</sup>, R<sup>4</sup>, R<sup>5</sup> и R<sup>6</sup> составляет от 2 до 15.

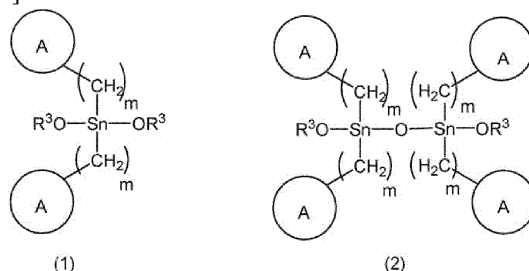
По этому варианту осуществления изобретения алкоксигруппу соединения алкилолова, используемого в способе получения, можно выбирать из числа n-бутилокси, изобутилокси, втор-бутилокси и C<sub>5-8</sub>алкоксигрупп.

По одному из вариантов осуществления изобретения спиртом, используемым в способе получения, может быть спирт, выбранный из числа n-бутилового спирта, изобутилового спирта, втор-бутилового спирта и C<sub>5-8</sub>алкиловых спиртов.

По одному из вариантов осуществления изобретения алкоксигруппой соединения алкилолова, используемого в способе получения, может быть разветвленная алкоксигруппа, в этом случае спиртом может быть разветвленный спирт, соответствующий разветвленной алкоксигруппе.

По одному из вариантов осуществления изобретения соединение алкилолова, используемое в способе получения, может включать или любое из или одновременно соединение, представленное формулой (1), и/или соединение, представленное формулой (2):

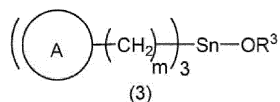
[Химическая формула 25]



где кольцо А представляет собой С<sub>3-16</sub>алициклическую углеводородную группу или С<sub>6-16</sub>ароматическую углеводородную группу, m является целым числом от 1 до 3 и R<sup>3</sup> представляет собой С<sub>1-8</sub>алкильную группу.

Соединение алкилолова, используемое в способе получения, может дополнительно содержать соединение, представленное формулой (3):

[Химическая формула 26]



где кольцо А представляет собой С<sub>3-16</sub>алициклическую углеводородную группу или С<sub>6-16</sub>ароматическую углеводородную группу, m является целым числом от 1 до 3 и R<sup>3</sup> представляет собой С<sub>1-8</sub>алкильную группу.

В вышеописанном способе получения алкоксигруппами соединений, представленных формулой (1), и соединений, представленных формулой (2), могут быть С<sub>4-8</sub>алкоксигруппы, и спиртами, соответствующие алкоксигруппам, могут быть спирты с температурой кипения 100°C или выше при обычном давлении, в то время как спиртом, используемым на стадии (3), может быть спирт, соответствующий алкоксигруппе.

Кроме того, спиртом в способе получения является С<sub>4-8</sub>спирт с температурой кипения 100°C или выше при обычном давлении.

В способ получения спиртом может быть спирт, выбранный из числа n-бутилового спирта, изобутилового спирта, втор-бутилового спирта и С<sub>5-8</sub>алкиловых спиртов.

Кроме того, алкоксигруппой соединения алкилолова, используемого в способе получения, может быть разветвленная алкоксигруппа, и спиртом может быть разветвленный спирт.

Первый вариант осуществления изобретения.

Далее описан первый вариант осуществления изобретения в качестве предпочтительного вариант осуществления изобретения.

Соединением алкилолова по этому варианту осуществления изобретения является соединение алкилолова для синтеза сложного эфира, и в особенности соединение алкилолова с одной-тремя разветвленными алкильными группами, связанными с атомом олова, разветвленными алкильными группами являются алкильные группы, разветвленные по меньшей мере на одном атоме углерода из числа атомов углерода с первого по третий с началом отсчета от атома олова, и атом олова является четырехвалентным. Кроме того, соединением алкилолова является соединение алкилолова, выступающее в качестве катализатора в ходе синтеза сложного эфира.

Как правило, в реакциях синтеза используют катализаторы. Их используют для повышения скорости конкретных реакций. Сами катализаторы остаются неизменными до и после реакции, или даже при расходе их можно восстановить для повторного использования в реакции. В идеале, таким образом, первоначально катализатор добавляют и используют постоянно и неоднократно в реакции для получения химического продукта.

Однако часто обнаруживаемым феноменом является разложение и инактивация катализатора, и с целью сохранения скорости реакции необходимы процессы для добавления и замещения свежего катализатора. При непрерывном добавлении катализатора неактивированный катализатор накапливается в реакционной системе, и замещение также приводит к удалению и утилизации катализатора, который по-прежнему сохраняет свою активность, вместе с неактивированным катализатором. Продуктивность также снижается посредством проведения вышеуказанного процесса.

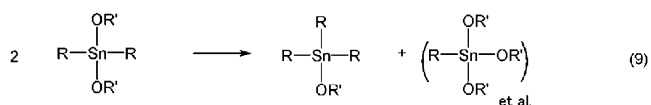
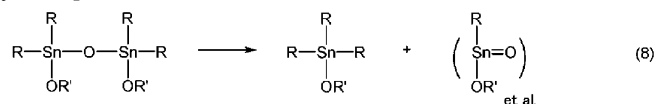
Инактивация катализатора отличается в зависимости от реакции и вида (гомогенной системы или негетогенной системы) и структуры катализатора, и, таким образом, невозможно определить способ решения этой задачи для всех случаев.

Из числа таких реакций синтеза соединения алкилолова по этому варианту осуществления изобре-

тения является гомогенным катализатором для синтеза сложного эфира, атом олова соединения алкилолова является четырехвалентным, и он в большой степени применим в промышленности. В целях осуществления этого варианта осуществления изобретения "реакция синтеза сложного эфира" относится к реакции переэтерификации, реакции этерификации, реакции синтеза сложного эфира угольной кислоты или реакции синтеза сложного эфира карбаминовой кислоты, и это синтез нейтрального сложного эфира карбоновой кислоты или карбаминовой кислоты или реакция переэтерификации.

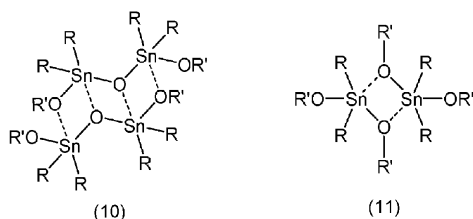
Несмотря на то, что существует очень мало примеров подробного исследования реакций инактивирования действия катализатора соединений алкилолова, результаты исследования показали, что очень легко возникают реакции диспропорционирования алкильных групп, представленные химическими уравнениями (8) и (9).

[Химическая формула 27]



Выявлено, что в этих реакциях инактивации количество алкильных групп, связанных с атомом олова в соединении алкилолова, изменяется таким образом, что становится невозможным достижение первоначальной каталитической активности. Несмотря на отсутствие четкого понимания причины снижения каталитической активности, возникающего в реакции инактивации, возможно, что, например, дианоксидный вид соединения алкилолова, представленный в химическом уравнении (8), структурно стабилизирован посредством внедрения лестничной структуры, показанной в формуле (10) (или, как также было отмечено, посредством образования циклической структуры двух или более молекул при присутствии в качестве мономера), и соединение алкилолова в уравнении (9) проявляет каталитическое действие посредством образования структуры, содержащей агрегат, такой как основная структура, показанная в формуле (11). Предположительно, когда имеет место эта реакция диспропорционирования, образование таких структур представляет сложности или эта каталитическая активность изменяется посредством электронных эффектов, обусловленных изменениями в количестве алкильных групп, связывающихся с оловом или посредством взаимодействия этих эффектов.

[Химическая формула 28]



Настоящее изобретение осуществлено в свете данной ситуации посредством конкретных соединений алкилолова, ингибирующих эти реакции диспропорционирования и выступающих в качестве гомогенных катализаторов в синтезе сложного эфира.

Далее описаны соединения для использования по этому варианту осуществления изобретения.

Названия соединений, используемые в настоящем документе, в большинстве случаев являются названиями, основанными на номенклатурных правилах (Номенклатуре ИЮПАК по органической химии), установленных ИЮПАК (Международным союзом теоретической и прикладной химии). Термин "органическое" относится к группе соединений, являющейся объектом изобретения в соответствии с вышеуказанными номенклатурными правилами. Этим объектом изобретения может быть объект изобретения, описанный в рекомендациях 1993 года. Однако "органические" соединения, являющиеся объектом изобретения вышеуказанной Номенклатуры, включают металлоорганические соединения и комплексные соединения с металлами. Для вариантов осуществления изобретения, описываемых в настоящем документе, "органическое", "органическая группа" и/или "заместитель", а также другие соединения, используемые для вариантов осуществления изобретения, состоят из атомов, не включающих атомы металла и/или металлоиды, если не указано иначе. Более предпочтительно "органическое соединение", "органическая группа" или "заместитель" при использовании для вариантов осуществления изобретения состоят из атомов, выбранных из числа H (водорода), C (углерода), N (азота), O (кислорода), S (серы), Cl (хлора), Br (брома) и I (йода).

Термины "алифатическое" и "ароматическое" часто используются на всем протяжении следующего пояснения. В соответствии с правилами ИЮПАК органические соединения классифицируются как алифатические соединения и ароматические соединения. Алифатическими соединениями, согласно определению, являются алифатические соединения на основе рекомендаций ИЮПАК 1995 года. Рекомендации

определяют алифатические соединения как "ациклические или циклические, насыщенные или ненасыщенные углеродные соединения, за исключением ароматических соединений". Кроме того, термин "алифатические соединения", используемый для вариантов осуществления изобретения, включает насыщенные алифатические соединения и ненасыщенные алифатические соединения, а также алифатические соединения с неразветвленной цепью и циклические алифатические соединения, он также относится к "органическим соединениям", "органическим группам" или "заместителям", состоящим из атомов, выбранных из числа атомов Н (водорода), С (углерода), N (азота), О (кислорода), S (серы), Si (кремния) и галогена, такого как Cl (хлор), Br (бром) и I (йод).

Кроме того, когда ароматическая группа связана с алифатической группой, как в "аралкильной группе", это часто обозначается как "алифатическая группа, замещенная ароматической группой", "ароматическая алифатическая группа" или "группа, содержащая алифатическую группу, с которой связана ароматическая группа". Основой этому является реактивность в вариантах осуществления, так как свойство, относящееся к реакции групп, таких как аралкильные группы, очень схоже с алифатической реактивностью взамен содержащую ароматических углеводородов. Кроме того, неароматические реакционноспособные группы, включающие аралкильные и алкильные группы, часто обозначаются как "алифатические группы, необязательно замещенные ароматическими группами", "алифатические группы, замещенные ароматическими группами", или "алифатические группы, связанные с ароматической группой", и они также включены в число "алифатических групп".

При пояснении общей формулы соединения, используемого в настоящем документе, используют определение в соответствии с правилами Номенклатуры, установленными ИЮПАК, но часто используются общепринятые названия для названий конкретных групп и названий иллюстративных соединений. Кроме того, в настоящем документе часто упоминается число атомов и количество заместителей, и все они являются целыми числами.

Когда заместители или соединения, указанные в настоящем документе, имеют структурные изомеры, они включают структурные изомеры, если не указано иначе.

Сначала будут описаны соединения алкилолова по изобретению.

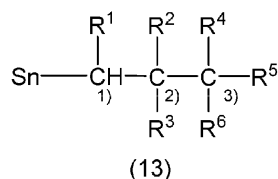
Соединением алкилолова по одному из вариантов осуществления изобретения является соединение алкилолова с одной-тремя разветвленными алкильными группами, связанными с атомом олова, разветвленными алкильными группами являются алкильные группы, разветвленные по меньшей мере на одном атоме углерода из числа атомов углерода с первого по третий с началом отсчета от атома олова, и атом олова является четырехвалентным. Несмотря на то, что иногда эффект проявляется, даже если разветвленная алкильная группа включает гетероатом (например, кислород), как в случае с эфирной связью, соединения алкилолова или соединения алкилолова являются предпочтительными, в числе которых соединения алкилолова с разветвленными алкильными группами, состоящими из углерода и водорода, являются более предпочтительными.

В результате тщательного проведенного исследования, посвященного проблемам известного уровня техники, удивительным образом было обнаружено, что расположение атома углерода рядом с атомом олова соединения алкилолова оказывает заметное воздействие на образование инактивированной формы. Остается неясным, является этот эффект электронным эффектом или стерическим эффектом, но предположительно он слабее, чем эффект стерического препятствия. Независимо от механизма воздействия, заметный эффект проявляют алкильные группы с определенным специфическим разветвлением. Эффект обнаружен при использовании соединений алкилолова, в которых алкильные группы являются разветвленными на атоме углерода соединения алкилолова, расположенного рядом с атомом олова (в пределах атомов углерода с первого по третий с отсчетом от атома олова). С другой стороны, в структуре, где ароматическая группа непосредственно замещена на атоме олова, снижается первоначальное каталитическое действие и реактивность. Для получения эффекта как предотвращения инактивации, так и сохранения активности алкильная группа со специфическим разветвлением является предпочтительной.

С точки зрения активности, в алкильной группе с вышеуказанным специфическим разветвлением, предпочтительно первый атом углерода с началом отсчета от атома олова является вторичным или третичным атомом углерода, связанным по меньшей мере с одним атомом водорода.

Конкретный пример, где одна разветвленная алкильная группа связана с атомом олова, показан в формуле (13) (где атом олова является четырехвалентным и другие группы не включены).

[Химическая формула 29]



где каждый из R<sup>1</sup>, R<sup>2</sup>, R<sup>3</sup>, R<sup>4</sup>, R<sup>5</sup> и R<sup>6</sup> независимо представляет собой водород или C<sub>1-15</sub>алкильную группу и R<sup>7</sup> представляет собой C<sub>1-8</sub>алкильную группу при условии, что не все из R<sup>1</sup>, R<sup>2</sup>, R<sup>3</sup>, R<sup>4</sup>, R<sup>5</sup> и R<sup>6</sup> являются водородом, по меньшей мере один из R<sup>1</sup>, R<sup>2</sup> и R<sup>3</sup> является алкильной группой или все из R<sup>1</sup>, R<sup>2</sup>

и  $R^3$  являются водородом и по меньшей мере два из  $R^4$ ,  $R^5$  и  $R^6$  являются алкильными группами, общее число атомов углерода  $R^1$ ,  $R^2$ ,  $R^3$ ,  $R^4$ ,  $R^5$  и  $R^6$  составляет от 2 до 15; числа 1), 2) и 3) представляют собой порядок атомов углерода, начиная от атома олова, обозначая первичный, вторичный и третичный атомы углерода соответственно.

Из их числа  $C_{4-18}$  соединения алкилолова с разветвленными алкильными группами являются предпочтительными с точки зрения реологических свойств и растворимости в растворителях при использовании в качестве гомогенных катализаторов.

Примеры таких разветвленных алкильных групп включают 1-метилпропил, 1-метилбутил, 1,2-диметилбутил, 1,3-диметилбутил, 1-этилбутил, 1-пропилбутил, 1,3-диметилпентил, 1-метил-2,2-диметилбутил, 1-этилпентил, 1,2-диметилгексил, 1-метилгексил, 1-этилгексил, 1-пропилгексил, 1-бутилгексил, 1,2-диэтилгексил, 1,2-диметилгептил, 1-этилгептил, 1-пропилгексил, 1-бутилгексил, 1,2-диметилоктил, 1-этилоктил, 1-пропилгексил, 1-бутилгексил, 1,2-диметилнонил, 1-этилнонил, 1,2-диметилдецил, 1-этилдецил, 1,2-диметилундецил, 1-этилундецил, 1,2-диметилдодецил, 1-этилдодецил, 1,2-диметилтридецил, 1-этилтридецил, 1,2-диметилтетрадецил, 1-этилтетрадецил, 1,2-диметилпентадецил, 2-этилпентадецил, 2-метилпропил, 2-метилбутил, 3-метилбутил, 2,3-диметилбутил, 3,3-диметилбутил, 2-этилбутил, 2-пропилбутил, 2-метилбутил, 2,3-диметилпентил, 2-метил-3,3-диметилбутил, 2-этилпентил, 3-этилпентил, 2,2-диметилгексил, 2-метилгексил, 2-этилгексил, 3-этилгексил, 2-пропилгексил, 2-бутилгексил, 2,2-диэтилгексил, 2,2-диметилгептил, 2-этилгептил, 2-пропилгексил, 2-бутилгексил, 2,2-диметилоктил, 2-этилоктил, 2-пропилгексил, 2-бутилгексил, 2,2-диметилнонил, 2-этилнонил, 2,2-диметилдецил, 2-этилдецил, 2,2-диметилундецил, 2-этилундецил, 2,2-диметилдодецил, 2-этилдодецил, 2,2-диметилтридецил, 2-этилтридецил, 2,2-диметилтетрадецил, 2-этилтетрадецил, 2,2-диметилпентадецил и 2-этилпентадецил.

Более эффективными разветвленными алкильными группами, являющимися предпочтительными для сохранения каталитической активности, являются разветвленные алкильные группы, где атом углерода в первом положении (рядом с атомом олова) является вторичным или третичным атомом углерода по меньшей мере с одним атомом водорода, связанным с ним. Более предпочтительно это разветвленная алкильная группа, в которой  $C_{1-4}$  алкильная группа замещена во втором или третьем положении с началом отсчета от атома олова. Примеры таких разветвленных алкильных групп включают 2,2-диметилбутил, 2,2-диметилгексил, 2,2-диметилоктил, 2-пропилбутил, 2-этилбутил, 2-метилпентил, 2-этилпентил, 2-пропилпентил, 2-бутилпентил, 2-метилгексил, 2-пропилгексил, 2-бутилгексил, 2-этилгептил, 2-этилоктил, 2-этилдецил, 2-этилдодецил, 2,3-диметилбутил, 2,3-диметилгексил, 2,3-диметилоктил, 3-пропилбутил, 3-этилбутил, 3-метилпентил, 3-этилпентил, 3-пропилпентил, 3-бутилпентил, 3-метилгексил, 3-пропилгексил, 3-бутилгексил, 3-этилгептил, 3-этилоктил, 3-этилдецил и 3-этилдодецил.

Как указано выше, степень инактивации выше, когда соединением алкилолова является алкоксид алкилолова. Таким образом, эффект изобретения более значителен, когда соединениями алкилолова в вариантах осуществления изобретения являются алкоксиды алкилолова. Кроме того, алкоксигруппой более предпочтительно является  $C_{1-8}$ , учитывая каталитическое действие и реактивность.

Примеры предпочтительных алкоксигрупп включают метилокси, этилокси, пропилокси (все изомеры), бутилокси (все изомеры), пентилокси (все изомеры), гексилокси (все изомеры), гептилокси (все изомеры) и октилокси (все изомеры).

Несмотря на зависимость от цели использования соединения алкилолова, учитывая восстановление соединения алкилолова, более предпочтительное число атомов углерода алкоксигруппы составляет от 4 до 8, и спиртом, соответствующим алкоксигруппе, является спирт с температурой кипения  $100^\circ\text{C}$  или выше при обычном давлении при использовании его в качестве катализатора для синтеза сложного эфира угольной кислоты.

Примеры таких алкоксигрупп включают *n*-бутилокси, изобутилокси, втор-бутилокси и  $C_{5-8}$  алкоксигруппы.

Для использования при высокой температуре разветвленные алкоксигруппы являются предпочтительными в качестве алкоксигрупп, обладающих эффектом дополнительного ингибирования реакции диспропорционирования алкильных групп. Более предпочтительно, это группа, в которой  $C_{1-3}$  алкильная группа замещена во вторичном или третичном положении (положении атома углерода в алкоксигруппе, являющемся положением от атома кислорода, связанного с атомом олова). Примеры таких алкильных групп включают 2-метилпропилокси, 2-метилбутилокси, 2-этилбутилокси, 2-пропилбутилокси, 2-метилпентилокси, 2-этилпентилокси, 2-пропилпентилокси, 2-метилгексилокси, 2-этилгексилокси, 3-метилбутилокси, 3-этилбутилокси, 3-пропилбутилокси, 3-метилпентилокси, 3-этилпентилокси, 3-пропилпентилокси, 3-метилгексилокси и 3-этилгексилокси.

В свете вышеизложенного алкоксигруппой алкоксида алкилолова наиболее предпочтительно является алкоксигруппа, выбранная из группы, состоящей из изобутилокси и  $C_{5-8}$  алкоксигрупп, и алкоксигруппа, в которой  $C_{1-3}$  алкильная группа замещена во вторичном или третичном положении (как в положении углерода в алкоксигруппе, являющемся положением от атома кислорода, связанного с атомом олова).

Предпочтительными для использования в качестве соединений алкилолова являются композиции,

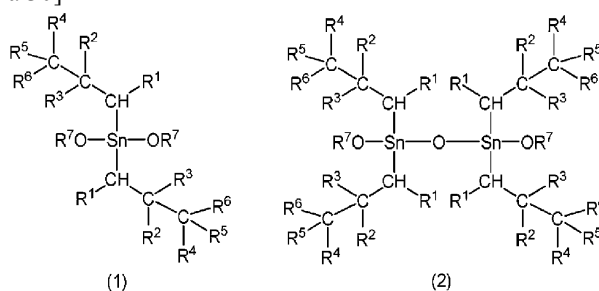


содержащие или любой из, или одновременно диалкоксид диалкилолова и/или тетраалкилдиалкоксидистанноксан (далее также обозначаемый в настоящем документе как "композиция диалкоксида диалкилолова"), которые пригодны в качестве катализаторов. Выражение "активный компонент" в рамках изобретения относится к соединениям алкилолова, нежели к соединениям алкилолова в целом, с двумя алкильными группами, связанными с атомом олова, и в особенности они включают алкоксиды диалкилолова, тетраалкилалкоксидистанноксаны и/или оксиды диалкилолова. При использовании композиции молярное соотношение атомов олова, содержащих диалкоксид диалкилолова и тетраалкилдиалкоксидистанноксан в композиции, в частности, не ограничено, но, как правило, предпочтительным является диапазон от 1:99 до 99:1 (от 1:49,5 до 99:0,5, представленный как молярное соотношение молекул диалкоксида диалкилолова и молекул тетраалкилдиалкоксидистанноксана). При использовании при высокой температуре (например, 100°C или выше) предпочтительным является большее количественное соотношение более стабильного диалкоксида диалкилолова с введением в реактор количественного соотношения от 99:1 до 50:50 (от 99:0,5 до 50:25 в отношении молярного соотношения).

Диалкоксид диалкилолова предпочтительно является соединением, представленным формулой (1).

Тetraалкилдиалкоксидистанноксан предпочтительно является соединением, представленным формулой (2):

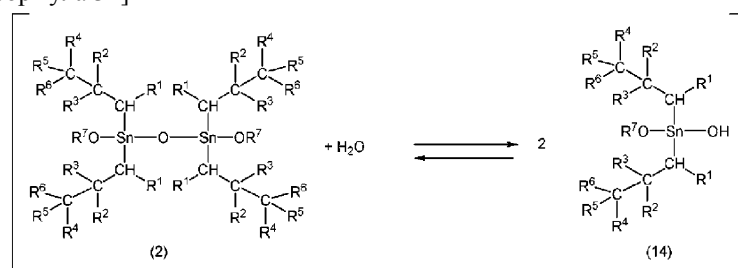
[Химическая формула 30]



где каждый из  $R^1$ ,  $R^2$ ,  $R^3$ ,  $R^4$ ,  $R^5$  и  $R^6$  независимо представляет собой водород или  $C_{1-15}$ алкильную группу и  $R^7$  представляет собой  $C_{1-8}$ алкильную группу при условии, что не все из  $R^1$ ,  $R^2$ ,  $R^3$ ,  $R^4$ ,  $R^5$  и  $R^6$  являются водородом, по меньшей мере один из  $R^1$ ,  $R^2$  и  $R^3$  является алкильной группой или все из  $R^1$ ,  $R^2$  и  $R^3$  являются водородом и по меньшей мере два из  $R^4$ ,  $R^5$  и  $R^6$  являются алкильными группами, общее число атомов углерода  $R^1$ ,  $R^2$ ,  $R^3$ ,  $R^4$ ,  $R^5$  и  $R^6$  составляет от 2 до 15.

В рамках изобретения структурой тетраалкилдиалкоксидистанноксана является структура, представленная формулой (2) в виде канонической структуры. Однако, как в случае с оксидами диалкилолова, описанным ниже, она может присутствовать в качестве гидрокси-структуры, представленной формулой (14). Так как в настоящее время не представляется невозможным определить присутствие и содержание структур гидрокси посредством анализа, структуры, представленные формулами (2) и (14), указанные в настоящем документе, включены в число тетраалкилдиалкоксидистанноксанов.

[Химическая формула 31]



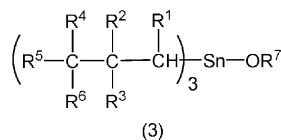
где  $R^1$ ,  $R^2$ ,  $R^3$ ,  $R^4$ ,  $R^5$ ,  $R^6$  и  $R^7$  имеют такие же определения, как указано выше.

С целью повышения точности анализа для контроля получения предпочтительно алкильными группами диалкоксида диалкилолова и тетраалкилдиалкоксидистанноксана являются такие же алкильные группы и алкоксигруппами также являются аналогичные алкоксигруппы.

По одному из вариантов осуществления изобретения соединением алкилолова может быть соединение триалкилолова, таким образом, композиция содержит соединение триалкилолова.

Когда композиция, содержащая диалкоксид диалкилолова и/или тетраалкилдиалкоксидистанноксан, также включает соединение триалкилолова, число моль атомов олова, содержащих соединение триалкилолова, предпочтительно находится в диапазоне от 1 до 50 мол.% по отношению к числу моль атомов олова во всей композиции (общее число моль атомов олова, содержащих диалкоксид диалкилолова, тетраалкилдиалкоксидистанноксан и соединение триалкилолова в композиции). Иногда термостабильность может увеличиться, если соединение триалкилолова присутствует в этом диапазоне. Несмотря на неполное понимание химической причины этого явления, предполагают, что равновесие перераспределения алкильных групп может быть сдвинуто в необходимом направлении с помощью нагревания. Ката-

литическая активность и реактивность соединения триалкилолова низкая по сравнению с диалкоксидом диалкилолова и тетраалкилдиалкоксидистанноксаном, и, если содержание соединения триалкилолова составляет более чем 50 мол.%, возникает необходимость в увеличении количества композиции для получения необходимых результатов реакции. Более предпочтительно содержание соединения триалкилолова составляет от 1 до 30 мол.%.  
 Примеры таких соединений триалкилолова включают соединения, представленные формулой (3):  
 [Химическая формула 32]



где каждый из  $\text{R}^1$ ,  $\text{R}^2$ ,  $\text{R}^3$ ,  $\text{R}^4$ ,  $\text{R}^5$  и  $\text{R}^6$  независимо представляет собой водород или  $\text{C}_{1-15}$ алкильную группу и  $\text{R}^7$  представляет собой  $\text{C}_{1-8}$ алкильную группу при условии, что не все из  $\text{R}^1$ ,  $\text{R}^2$ ,  $\text{R}^3$ ,  $\text{R}^4$ ,  $\text{R}^5$  и  $\text{R}^6$  являются водородом, по меньшей мере один из  $\text{R}^1$ ,  $\text{R}^2$  и  $\text{R}^3$  является алкильной группой или все из  $\text{R}^1$ ,  $\text{R}^2$  и  $\text{R}^3$  являются водородом и по меньшей мере два из  $\text{R}^4$ ,  $\text{R}^5$  и  $\text{R}^6$  являются алкильными группами, общее число атомов углерода  $\text{R}^1$ ,  $\text{R}^2$ ,  $\text{R}^3$ ,  $\text{R}^4$ ,  $\text{R}^5$  и  $\text{R}^6$  составляет от 2 до 15.

Алкоксиды алкилолова (диалкоксид диалкилолова, тетраалкилдиалкоксидистанноксан и/или алкоксид триалкилолова) можно получать известными способами. Предпочтительными исходными веществами являются карбоксилаты алкилолова, оксиды алкилолова, полимеры оксидов алкилолова или галогениды алкилолова. Предпочтительно использовать общеизвестные способы синтеза для этих исходных веществ. Условия получения можно изменять для достижения оптимальных результатов (например, Wilhelm P. Neumann et al., Justus Liebigs Annalen der Chemie, Vol. 663, p. 11-21 (1963), Egmond, J.C. van et al., Journal of Applied Chemistry (London), vol. 12, p. 17-27 (1962), Seyferth et al., Journal of Organic Chemistry, vol. 26, p. 2934 (1961), Kerk, G.J. van der; Luijten et al., Journal of Applied Chemistry (Лондон), vol. 7, p. 369-374(1957), P. Fostein et al., Journal of Organometallic Chemistry, vol. 114, p. 7-10 (1976)). Способами получения алкоксидов алкилолова из исходных веществ могут быть любые общеизвестные способы. Композиция, содержащая алкоксид алкилолова, также может включать оксид алкилолова и/или полимер оксида алкилолова, но содержание карбоксилата алкилолова и галогенида алкилолова предпочтительно является как можно более низким. Например, их предпочтительно использовать со степенью очистки до не более чем 20 мол.%, как выражено в моль-процентах атомов олова. Общеизвестный способ предпочтительно используют для очистки. Алкоксид триалкилолова можно также получать посредством тепловой деструкции диалкоксида диалкилолова или тетраалкилдиалкоксидистанноксана. Способом получения оксида алкилолова или полимера оксида алкилолова в качестве исходного вещества также предпочтительно является известный способ.

С целью повышения точности анализа для контроля получения предпочтительными алкильными группами диалкоксида диалкилолова, тетраалкилдиалкоксидистанноксана и алкоксида триалкилолова являются такие же алкильные группы и алкоксигруппами также являются аналогичные алкоксигруппы.

Соединение алкилолова предпочтительно используют в качестве гомогенного катализатора для синтеза сложного эфира из числа других реакций синтеза. В целях описания настоящего изобретения "реакция синтеза сложного эфира" относится к реакции переэтерификации, реакции этерификации, реакции синтеза сложного эфира угольной кислоты или реакции синтеза сложного эфира карбаминовой кислоты, и это синтез нейтрального сложного эфира карбоновой кислоты или карбаминовой кислоты или реакция переэтерификации.

Не существует каких-либо особых ограничений в отношении температуры реакции, но диапазон предпочтительно составляет от 0 до 250°C. Нет ограничений по использованию реакционных растворителей, но предпочтительными примерами являются гидроксиды углеводов, такие как спирты и фенолы; углеводороды; и простые эфиры, такие как ТГФ, и при необходимости можно выбрать любые растворители, в частности, не нарушающие структуру соединения алкилолова посредством реакции окисления, реакции восстановления или реакции диссоциации алкильной группы. Часто возникают нежелательные вторичные реакции с сильнокислотными растворителями или сильнощелочными растворителями, и предпочтительно реакционный растворитель и температура реакции выбраны с учетом необходимой скорости вторичной реакции.

Реакцию синтеза сложного эфира предпочтительно проводят с соединением алкилолова в растворенном или расплавленном состоянии, и предпочтительно для этого выбирают температуру и растворитель.

Для реакции синтеза сложного эфира можно использовать инертный газ. Примеры инертных газов включают азот, аргон и гелий. Можно использовать диоксид углерода, так как он не оказывает неблагоприятного воздействия. Кислород, водород, сульфид водорода, монооксид углерода и т.п. могут быть включены в пределах, не нарушающих, в частности, структуры соединения алкилолова или результатов реакции, и их очищают и контролируют известными способами для получения необходимых постоянных результатов реакции.

Далее описан способ получения сложного эфира угольной кислоты в качестве предпочтительного способа для осуществления изобретения.

По одному из вариантов осуществления соединение алкилолова является катализатором для процесса получения сложного эфира угольной кислоты посредством реакции с диоксидом углерода. Соединением алкилолова предпочтительно является алкоксид алкилолова.

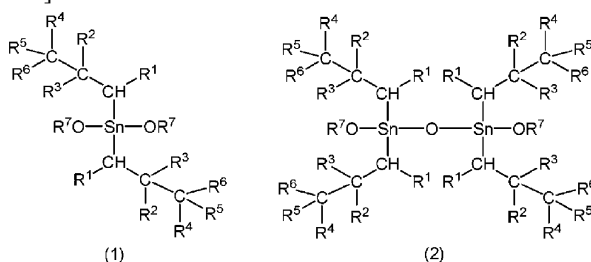
Способ получения для этого варианта осуществления изобретения представляет собой способ получения сложного эфира угольной кислоты с использованием алкоксида алкилолова, где алкоксид алкилолова включает или любое из или одновременно соединение, представленное формулой (1), и/или соединение, представленное формулой (2), и способ получения сложного эфира угольной кислоты включает следующие стадии с (1) по (3).

Стадия (1): стадия реакции соединения алкилолова с диоксидом углерода для получения реакционной смеси, содержащей сложный эфир угольной кислоты.

Стадия (2): стадия отделения сложного эфира угольной кислоты от реакционной смеси для получения остаточного раствора.

Стадия (3): стадия реакции остаточного раствора со спиртом и удаления воды, полученной посредством реакции, для получения алкоксида алкилолова и повторного использования его на стадии (1).

[Химическая формула 33]



где каждый из  $R^1$ ,  $R^2$ ,  $R^3$ ,  $R^4$ ,  $R^5$  и  $R^6$  независимо представляет собой водород или  $C_{1-15}$ алкильную группу и  $R^7$  представляет собой  $C_{1-8}$ алкильную группу при условии, что не все из  $R^1$ ,  $R^2$ ,  $R^3$ ,  $R^4$ ,  $R^5$  и  $R^6$  являются водородом, по меньшей мере один из  $R^1$ ,  $R^2$  и  $R^3$  является алкильной группой или все из  $R^1$ ,  $R^2$  и  $R^3$  являются водородом и по меньшей мере два из  $R^4$ ,  $R^5$  и  $R^6$  являются алкильными группами, общее число атомов углерода  $R^1$ ,  $R^2$ ,  $R^3$ ,  $R^4$ ,  $R^5$  и  $R^6$  составляет от 2 до 15.

Диалкоксидом диалкилолова и тетраалкилдиалкоксидистанноксаном для использования в способе получения сложного эфира угольной кислоты может быть вышеуказанный диалкоксид диалкилолова и тетраалкилдиалкоксидистанноксан, предпочтительно в виде композиции, содержащей или любой из, или одновременно диалкоксид диалкилолова и/или тетраалкилдиалкоксидистанноксан. В случае композиции молярное соотношение атомов олова, содержащих диалкоксид диалкилолова и тетраалкилдиалкоксидистанноксан в композиции в особенности не ограничено, но предпочтительным является диапазон от 1:99 до 99:1 (от 1:49,5 до 99:0,5, представленный как молярное соотношение молекул диалкоксида диалкилолова и молекул тетраалкилдиалкоксидистанноксана). При использовании при высокой температуре (например,  $100^\circ\text{C}$  или выше), предпочтительным является большее количественное соотношение более стабильного диалкоксида диалкилолова с введением в реактор количественного соотношения от 99:1 до 50:50 (от 99:0,5 до 50:25 в отношении молярного соотношения).

С целью осуществления стадии (3) необходимым образом, учитывая повторное использование соединения алкилолова, более предпочтительной алкоксигруппой алкоксида алкилолова является  $C_{4-8}$ алкоксигруппа, и спирт, соответствующий алкоксигруппе, имеет температуру кипения  $100^\circ\text{C}$  или выше при обычном давлении.

Примеры таких алкоксигрупп включают *n*-бутилокси, изобутилокси, втор-бутилокси и  $C_{5-8}$ алкоксигруппы.

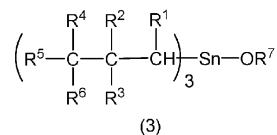
С целью повышения точности анализа для контроля получения, предпочтительными алкильными группами диалкоксида диалкилолова и тетраалкилдиалкоксидистанноксана являются такие же алкильные группы и алкоксигруппами также являются аналогичные алкоксигруппы.

В способе получения для этого варианта осуществления изобретения композиция предпочтительно включает соединение триалкилолова в качестве соединения алкилолова. Иногда термостабильность повышается, если композиция содержит соединение триалкилолова в таком диапазоне, что число моль атомов олова в соединении триалкилолова по отношению к числу моль атомов олова в композиции составляет от 1 до 50 мол.%. Несмотря на неполное понимание химической причины этого явления, предполагают, что равновесие перераспределения алкильных групп может быть сдвинуто в необходимом направлении с помощью нагревания. Каталитическая активность и реактивность соединения триалкилолова низкая по сравнению с диалкоксидом диалкилолова и тетраалкилдиалкоксидистанноксаном. Если содержание соединения триалкилолова составляет более чем 50 мол.% по отношению к числу моль атомов олова в композиции, возникает необходимость в увеличении количества композиции для получения необходимых результатов реакции, и, таким образом, более предпочтительное содержание композиции

находится в диапазоне от 1 до 30 мол. %.

Предпочтительные примеры соединений триалкилолова включают соединения, представленные формулой (3):

[Химическая формула 34]



где каждый из  $R^1$ ,  $R^2$ ,  $R^3$ ,  $R^4$ ,  $R^5$  и  $R^6$  независимо представляет собой водород или  $C_{1-15}$ алкильную группу и  $R^7$  представляет собой  $C_{1-8}$ алкильную группу при условии, что не все из  $R^1$ ,  $R^2$ ,  $R^3$ ,  $R^4$ ,  $R^5$  и  $R^6$  являются водородом, по меньшей мере один из  $R^1$ ,  $R^2$  и  $R^3$  является алкильной группой или все из  $R^1$ ,  $R^2$  и  $R^3$  являются водородом и по меньшей мере два из  $R^4$ ,  $R^5$  и  $R^6$  являются алкильными группами, общее число атомов углерода  $R^1$ ,  $R^2$ ,  $R^3$ ,  $R^4$ ,  $R^5$  и  $R^6$  составляет от 2 до 15.

С целью повышения точности анализа для контроля получения предпочтительными алкильными группами диалкоксида диалкилолова, тетраалкилдиалкоксидистанноксана и алкоксида триалкилолова являются такие же алкильные группы, и алкоксигруппами также являются аналогичные алкоксигруппы.

Далее описан спирт, используемый на стадии (3).

Спиртом для использования на стадии (3) предпочтительно является  $C_{4-8}$ спирт и спирт с температурой кипения  $100^\circ C$  или выше при обычном давлении, учитывая повторное использование соединения алкилолова.

Примеры таких спиртов включают *n*-бутиловый спирт, изобутиловый спирт, втор-бутиловый спирт и  $C_{5-8}$ алкиловые спирты.

Посредством стадии (3) спирт входит в состав в качестве алкоксигруппы алкоксида алкилолова. Для использования при высокой температуре спиртом, используемым на стадии (3), предпочтительно является спирт с  $C_{1-3}$ алкильной группой, присоединенной на 2- или 3-м атоме углерода от гидроксильной группы, с точки зрения предотвращения реакции диспропорционирования алкильной группы. Примеры таких спиртов включают 2-метилпропиловый спирт, 2-метилбутиловый спирт, 2-этилбутиловый спирт, 2-пропилбутиловый спирт, 2-метилпентиловый спирт, 2-этилпентиловый спирт, 2-пропилпентиловый спирт, 2-метилгексильный спирт, 2-этилгексильный спирт, 3-метилбутиловый спирт, 3-этилбутиловый спирт, 3-пропилбутиловый спирт, 3-метилпентиловый спирт, 3-этилпентиловый спирт, 3-пропилпентиловый спирт, 3-метилгексильный спирт и 3-этилгексильный спирт.

С целью повышения точности анализа для контроля получения и повышения степени чистоты получаемого сложного эфира угольной кислоты алкоксигруппами диалкоксида диалкилолова, тетраалкилдиалкоксидистанноксана и алкоксида триалкилолова предпочтительно являются такие же алкоксигруппы и спиртом, используемым на стадии (3), предпочтительно является спирт, соответствующий алкоксигруппам.

Способ получения сложного эфира угольной кислоты.

Далее представлено подробное пояснение способа получения сложных эфиров угольной кислоты с использованием алкоксидов алкилолова.

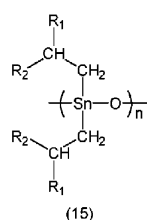
Предпочтительно использовать способы, ранее описанные авторами настоящего изобретения (например, международные публикации патентов № WO 03/055840, WO 2004/014840, WO 2005/000783, WO 2005/111049 и WO 2007/114130).

(i) Стадия синтеза алкоксида алкилолова (стадия начала непрерывного процесса).

Алкоксидом алкилолова для использования в этом варианте осуществления изобретения может быть алкоксид алкилолова, полученный известным способом, как описано выше. Алкоксид алкилолова можно получать, например, из карбоксилата алкилолова, оксида алкилолова, полимера оксида алкилолова или галогенида алкилолова. Предпочтительным является использование ранее описанного способа получения алкоксидов алкилолова (международная публикация патента № WO 2005/111049 и др.). В этом процессе алкоксид алкилолова предпочтительно получают из оксида диалкилолова и спирта. Используемым спиртом может быть любой из вышеуказанных спиртов.

Оксидом алкилолова, используемым в этом процессе, может быть соединение, представленное формулой (15):

[Химическая формула 35]

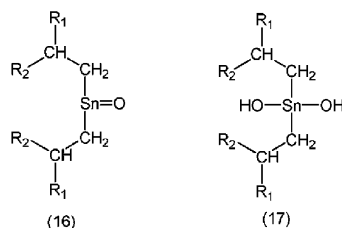


где каждый из  $R^1$  и  $R^2$  независимо представляет собой водород или  $C_{1-15}$ алкильную группу и  $R^3$

представляет собой  $C_{1-n}$ алкильную группу при условии, что  $R^1$  и  $R^2$  не являются одновременно водородом и общее число атомов углерода  $R^1$  и  $R^2$  составляет от 2 до 16, где  $n$  представляет собой положительное целое число.

Структуры оксидов диалкилолова не могут быть полностью выявлены посредством существующих в настоящее время способов анализа. В этом процессе оксид диалкилолова может иметь структуру мономера, представленную формулой (16), или структуру гидрокси, представленную формулой (17), вместо структуры полимера, представленной формулой (15). Структура гидрокси, представленная формулой (17), как правило, не обозначается как диалкилоловодиоксид, но в связи с тем, что сложно подтвердить ее присутствие и содержание с помощью существующих в настоящее время аналитических способов, и изобретение можно проводить в условиях для этого процесса с любой структурой, для удобства в описании настоящего документа она имеет такое же определение как оксид диалкилолова.

[Химическая формула 36]



где каждый из  $R^1$  и  $R^2$  независимо представляет собой водород или  $C_{1-15}$ алкильную группу и  $R^3$  представляет собой  $C_{1-n}$ алкильную группу при условии, что  $R^1$  и  $R^2$  не являются одновременно водородом и общее число атомов углерода  $R^1$  и  $R^2$  составляет от 2 до 16.

Спирт и оксид диалкилолова используют для реакции дегидрирования с целью получения тетраалкилдиалкоксидистанноксана и/или диалкоксида диалкилолова с одновременным удалением образовавшейся воды из реакционной системы. В течение этого времени используемый спирт преобразуют в алкоксигруппу для образования алкоксида алкилолова. Температура для проведения реакции может быть в диапазоне от 80 до 180°C, например, и с точки зрения упрощения процесса удаления дистилляцией собравшейся воды из реакционной системы более предпочтительным является диапазон от 60 до 180°C, хотя это зависит от давления реакции, в то же время с точки зрения повышения скорости реакции даже более предпочтительной является высокая температура реакции. С другой стороны, так как нежелательные вторичные реакции, такие как разложение, возникают при высокой температуре, таким образом снижая выход, более предпочтительная температура находится в диапазоне от 80 до 160°C. Давлением в реакторе для проведения реакции является давление, позволяющее удалять из системы собравшуюся воду, и, хотя оно зависит от температуры реакции, оно может составлять от 20 до  $1 \times 10^6$  Па. Время реакции, в частности, не ограничено, но, как правило, должно составлять от 0,001 до 50 ч, предпочтительно от 0,01 до 10 ч и более предпочтительно от 0,1 до 2 ч. Реакция может быть завершена при получении необходимого алкоксида алкилолова. Течение реакции можно подтверждать посредством способа измерения количества воды, удаленной из реакционной системы, или способа отбора пробы реакционной смеси для измерения спектра  $^{119}Sn$ -ЯМР. Для получения алкоксида алкилолова на стадии (1) реакцию завершают при подтверждении получения алкоксида алкилолова с молярным соотношением в диапазоне от 0:100 до 80:20 и предпочтительно от 1:99 до 70:30 для тетраалкилдиалкоксидистанноксана и диалкоксида диалкилолова в алкоксиде алкилолова, полученном посредством реакции. Использованный спирт можно продолжать использовать при сопричастии или в некоторых случаях спирт можно отогнать, а затем использовать. Предпочтительно удалить как можно большее количество спирта, так как это позволит уменьшить объем реактора для других стадий. Способом удаления предпочтительно является известный дистилляционный процесс, и дистиллятором, используемым для дистилляции, может быть известное дистилляционное устройство. Тонкопленочное дистилляционное устройство можно использовать в качестве предпочтительного дистилляционного устройства, так как оно обеспечивает удаление в пределах короткого периода времени. Не существует каких-либо конкретных ограничений в отношении формы реактора, и можно использовать любой известный бак или башенный реактор. Реакционная смесь с низкой температурой кипения, содержащая воду, является газообразной, и ее можно удалить из реактора посредством дистилляции, и реакционную смесь с высокой температурой кипения, содержащую алкоксид алкилолова, можно экстрагировать в виде жидкости со дна реактора. Примеры такого реактора включают реакторы, содержащие смесительный бак, многоступенчатый смесительный бак, дистилляционную колонку, многоступенчатую дистилляционную колонку, многотрубчатый реактор, многоступенчатую дистилляционную колонку непрерывного действия, башню с насадкой, тонкопленочный испаритель, реактор, оснащенный внутренней опорой, реактор принудительной циркуляции, испаритель с падающей пленкой, испаритель падающих капель, фазный реактор струйного типа или колпачковую колонку, и можно использовать известные способы, при которых применяются комбинации этих систем. Способ с использованием реактора башенного типа является предпочтительным с точки зрения эффективного смещения равновесия реакции дегидрирования в сторону алкоксида алкилолова (продукта) или

способ с использованием реактора с большой площадью поверхности газожидкостного контакта используют, чтобы образовавшаяся вода быстро переходила в газовую фазу. Эту стадию можно осуществлять посредством непрерывного способа с использованием многотрубчатого реактора, многоступенчатой дистилляционной колонки или башни, заполненной наполнителем, но при использовании твердого оксида диалкилолова более предпочтительно использовать способ проведения реакции в корпусном реакторе, а затем повышать содержание диалкоксида диалкилолова с помощью башенного реактора. Материалами реактора и линии могут быть общеизвестные материалы, не оказывающие отрицательного воздействия на реакцию, и предпочтительно использовать SUS304, SUS316, SUS316L и т.п. ввиду их небольшой стоимости. При необходимости, можно также включать измерительные устройства, такие как измеритель расхода жидкости и термометр, и известное обрабатывающее оборудование, такое как ребойлер, насос, конденсатор, средства нагревания, средства охлаждения и т.п., при этом средствами нагревания могут быть известные средства нагревания, такие как пар или нагреватель, и средствами охлаждения могут быть известные средства охлаждения, такие как естественное охлаждение, охлаждающая вода или насыщенный солевой раствор.

Стадия (1): стадия реакции соединения алкилолова с диоксидом углерода для получения реакционной смеси, содержащей сложный эфир угольной кислоты.

На этой стадии алкоксид алкилолова вступает в реакцию с газообразным диоксидом углерода для получения сложного эфира угольной кислоты. Стадию предпочтительно проводят с использованием ранее описанного способа получения сложных эфиров угольной кислоты (международные публикации патентов № WO 03/055840, WO 04/014840 или др.).

Алкоксид алкилолова, используемый для этой стадии, иногда может быть получен на стадии синтеза алкоксида алкилолова в начале процесса или иногда может быть получен на стадии получения (3) алкоксида алкилолова во время непрерывного процесса получения.

Для этой стадии сначала алкоксид алкилолова и газообразный диоксид углерода вступают в реакцию для получения смеси, содержащей конъюгат диоксида углерода алкоксида алкилолова.

В ходе химической реакции предпочтительно либо нагревание алкоксида алкилолова до расплавления, либо его смешивание с растворителем в качестве раствора для проведения реакции в виде жидкости. Давление в реакторе для проведения этой реакции зависит от температуры реакции, но предпочтительно находится в диапазоне от обычного давления до 1 мПа, и более предпочтительно в диапазоне от обычного давления до 0,6 мПа. Температура реакции зависит от давления реакции, но предпочтительно составляет от -40 до 80°C, и, учитывая реологическое свойство при транспортировке, более предпочтительно составляет от 0 до 80°C, и наиболее предпочтительно находится в диапазоне от обычной температуры (например, 20°C) до 80°C. Термин "обычная температура" в рамках изобретения означает диапазон от 1 до 30°C. Время реакции может находиться в диапазоне от нескольких секунд до 100 ч и предпочтительно составляет от нескольких секунд до 10 ч, учитывая продуктивность. Используемым реактором может быть известный корпусной реактор или башенный реактор. Также можно использовать комбинации нескольких различных реакторов. Так как реакцию проводят между диоксидом углерода (газом) и раствором, содержащим алкоксид алкилолова или алкоксид алкилолова(жидкостью), для эффективности реакции предпочтительно увеличить площадь поверхности газожидкостного контакта с целью увеличения площади контакта диоксида углерода с алкоксидом алкилолова. Способ проведения реакции с увеличенной площадью поверхности газожидкостного контакта может иметь преимущества известных наблюдений, и предпочтительными способами являются те, которые включают повышение скорости перемешивания в корпусном реакторе или скопление пузырьков воздуха в жидкости или для башенного реактора использование башни с насадкой или использование тарельчатой колонны. Примеры таких башенных реакторов включают системы тарельчатых колонн с использованием тарелок, таких как колпачковая тарелка, пористая тарелка, клапанная тарелка или противоточная тарелка; и системы башен с насадкой, заполненные различными видами уплотнительных материалов, таких как кольца Рашига, кольца Лессинга, кольца Полла, седла Берля, седлообразные насадки Инталокс, насадка Dixon, насадка McMahon, насадки Heli-Pak, Sulzer или Mellapak. Материалами реактора и линии могут быть общеизвестные материалы, не оказывающие отрицательного воздействия на реакцию, и предпочтительно использовать SUS304, SUS316, SUS316L и т.п. ввиду их небольшой стоимости. При необходимости, можно также включать измерительные устройства, такие как измеритель расхода жидкости и термометр, и известное обрабатывающее оборудование, такое как ребойлер, насос, конденсатор, средства нагревания, средства охлаждения и т.п., при этом средствами нагревания могут быть известные средства нагревания, такие как пар или нагреватель, и средствами охлаждения могут быть известные средства охлаждения, такие как естественное охлаждение, охлаждающая вода или насыщенный солевой раствор. Реакцией, как правило, является экзотермическая реакция, и охлаждение можно осуществлять с помощью теплоизлучения от реактора, например. Нагревание можно проводить, когда необходимо одномоментно получить сложный эфир угольной кислоты. При охлаждении или нагревании реактора можно использовать общеизвестный способ, такой как способ с использованием рубашки или способ с использованием внутренней батареи. Диоксид углерода и алкоксид алкилолова, загруженные в реактор, могут быть загружены по отдельности

или их можно сочетать до введения в реактор. Диоксид углерода и алкоксид алкилолова можно также вводить в реактор из нескольких отделов реактора. Завершение реакции можно подтверждать, например, с помощью спектроскопии  $^{119}\text{Sn}$ -ЯМР. Стадия получения конъюгата диоксида углерода алкоксида алкилолова не имеет критически важного значения, и в некоторых случаях, в зависимости от работы оборудования и т.п., алкоксид алкилолова можно переносить непосредственно на следующую стадию для получения реакционной смеси, содержащей сложный эфир угольной кислоты.

Следующий способ можно использовать для получения реакционной смеси, содержащей сложный эфир угольной кислоты, из конъюгата диоксида углерода алкоксида алкилолова.

Условиями реакции предпочтительно являются высокая температура реакции в диапазоне от 40 до 200°C для повышения скорости реакции, но, так как вторичные реакции нежелательны, например, при высокой температуре может иметь место разложение, потенциально снижающее выход, предпочтительный диапазон составляет от 60 до 180°C, для времени реакции от 0,05 до 10 ч, и давление реакции предпочтительно находится в диапазоне от обычного давления до 20 мПа и более предпочтительно в диапазоне от 2,0 до 10 мПа. Реакция может быть завершена после получения в реакторе необходимого сложного эфира угольной кислоты. Течение реакции можно подтверждать с помощью взятия образца реакционной смеси в реакторе и анализа собранного сложного эфира угольной кислоты посредством спектроскопии  $^1\text{H}$ -ЯМР или газовой хроматографии. Например, реакцию можно завершить после получения по меньшей мере 10 мол.% по отношению к числу молей конъюгата диоксида углерода алкоксида алкилолова и/или алкоксида алкилолова в конъюгате диоксида углерода алкоксида алкилолова и/или алкоксида алкилолова, и, если необходим более высокий выход сложного эфира угольной кислоты, реакцию можно продолжить до достижения выхода реакции 90% или выше, а затем завершить. Используемым реактором может быть известный тип реактора и предпочтительно башенный реактор или корпусной реактор. Материалами реактора и линии могут быть общеизвестные материалы, не оказывающие отрицательного воздействия на реакцию, и предпочтительно использовать SUS304, SUS316, SUS316L и т.п. ввиду их небольшой стоимости. При необходимости, можно также включать измерительные устройства, такие как измеритель расхода жидкости и термометр, и известное обрабатываемое оборудование, такое как ребойлер, насос, конденсатор, средства нагревания, средства охлаждения и т.п., при этом средствами нагревания могут быть известные средства нагревания, такие как пар или нагреватель, и средствами охлаждения могут быть известные средства охлаждения, такие как естественное охлаждение, охлаждающая вода или насыщенный солевой раствор.

Стадия (2): стадия отделения сложного эфира угольной кислоты от реакционной смеси для получения остаточного раствора.

На этой стадии сложный эфир угольной кислоты отделяют от реакционной смеси, содержащей сложный эфир угольной кислоты, полученный на стадии (1), и получают остаточный раствор. При процессе отделения можно использовать любой известный способ или устройство, но предпочтительным является дистилляция.

Реакционную смесь, перенесенную из стадии (1), подвергают периодическому или полупериодическому процессу или непрерывной дистилляции для получения сложного эфира угольной кислоты и остаточного раствора. Предпочтительным способом дистилляции является такой, при котором реакционную смесь вводят в дистиллятор и сложный эфир угольной кислоты отделяют от системы сверху дистиллятора в качестве компонента газообразной фазы, при этом остаточный раствор удаляют снизу дистиллятора в качестве жидкого компонента. Температура для этой стадии зависит от температуры кипения или давления сложного эфира угольной кислоты, но стадию можно проводить в диапазоне от обычной температуры (например, 20°C) до 200°C, и, так как соединение олова в остаточном растворе иногда разрушается при высокой температуре или количество сложного эфира угольной кислоты может уменьшиться ввиду обратной реакции, реакцию предпочтительно проводят при температурном диапазоне от обычной температуры (например, 20°C) до 150°C. Давление в реакторе для реакции зависит от вида сложного эфира угольной кислоты и температуры, при которой ее проводят, но, как правило, ее осуществляют при условиях от обычного до сниженного давления, и, учитывая продуктивность, давление предпочтительно находится в диапазоне от 100 Па до 80 кПа и более предпочтительно от 100 Па до 50 кПа. Время реакции может быть в диапазоне от 0,01 до 10 ч, но, так как компонент олова в реакционной смеси может разрушаться в течение длительного периода времени при высокой температуре или количество сложного эфира угольной кислоты может уменьшиться ввиду обратной реакции, время предпочтительно находится в диапазоне от 0,01 до 0,5 ч и более предпочтительно от 0,01 до 0,3 ч. Используемым дистиллятором может быть известный дистиллятор, и предпочтительно им является башенный дистиллятор или реакторный дистиллятор, которые также можно использовать в комбинации. Тонкоплочный испаритель или тонкоплочный дистиллятор является еще более предпочтительным, и тонкоплочный испаритель или тонкоплочный дистиллятор, оснащенный дистилляционной колонкой, является наиболее предпочтительным. Материалами дистиллятора и линии могут быть общеизвестные материалы, не оказывающие отрицательного воздействия на реакцию, и предпочтительно использовать SUS304, SUS316, SUS316L и т.п. ввиду их небольшой стоимости. При необходимости, можно также включать измерительные устрой-

ства, такие как измеритель расхода жидкости и термометр, и известное обрабатывающее оборудование, такое как ребойлер, насос, конденсатор, средства нагревания, средства охлаждения и т.п., при этом средствами нагревания могут быть известные средства нагревания, такие как пар или нагреватель, и средствами охлаждения могут быть известные средства охлаждения, такие как естественное охлаждение, охлаждающая вода или насыщенный солевой раствор. На стадии (2), когда не вступивший в реакцию диоксид углерода присутствует в реакционной смеси, перенесенной из стадии (1), или когда диоксид углерода входит в состав молекулы алкоксида алкилолова, предпочтительно отделять сложный эфир угольной кислоты после удаления диоксида углерода из реакционной смеси. Способ удаления диоксида углерода может соответствовать способу отделения сложного эфира угольной кислоты. Предпочтительно его проведение при более низкой температуре и более высоком давлении, чем для отделения сложного эфира угольной кислоты. Выбранные условия находятся в зависимости от физических свойств получаемого сложного эфира угольной кислоты - низкое удельное давление паров сложного эфира угольной кислоты и обеспечение удаления диоксида углерода. Удаляемый диоксид углерода предпочтительно повторно используют на стадии (1). Для повторного использования его предпочтительно возвращают после создания повышенного давления с помощью компрессора или т.п. При использовании компрессора включение алкоксида алкилолова может потенциально закупорить компрессор или реактор, поэтому, таким образом, предпочтительно его заранее отделяют. В этом случае отделение можно проводить известным способом с помощью дистилляционной колонки и т.п.

Стадия (3): стадия реакции остаточного раствора со спиртом и удаления воды, полученной посредством реакции, для получения алкоксида алкилолова и повторного использования его на стадии (1).

Эту стадию проводят после получения остаточного раствора на стадии (2), но она схожа со стадией синтеза алкоксида алкилолова, описанной выше. На этой стадии осуществляют реакцию дегидрирования остаточного раствора и спирта, полученного на стадии (2), для повторного использования алкоксида алкилолова. Остаточный раствор также содержит алкоксид алкилолова, но на этой стадии повторное использование (восстановление) проводят при соотношении алкоксида алкилолова для проведения стадии (1). Другими словами, так как на стадии (2) сложный эфир угольной кислоты предпочтительно получают из алкоксида диалкилолова и количественное соотношение тетраалкилдиалкоксидистанноксана увеличивается, целью этой стадии является восстановление алкоксида алкилолова с увеличенным количественным соотношением диалкоксида диалкилолова.

Используемым спиртом может быть любой из вышеуказанных спиртов. Условия реакции дегидрирования также предпочтительно являются такими же, как для стадии синтеза алкоксида алкилолова, описанной выше. Реакцию можно завершать при получении необходимого алкоксида алкилолова. Течение реакции можно подтверждать посредством способа измерения количества воды, удаленной из реакционной системы, или способа взятия образца реакционной смеси для измерения спектра  $^{119}\text{Sn}$ -ЯМР. Для получения алкоксида алкилолова этого варианта осуществления изобретения на стадии (1) реакцию завершают при подтверждении нахождения молярного соотношения тетраалкилдиалкоксидистанноксана и диалкоксида диалкилолова в алкоксиде алкилолова, полученном посредством предыдущей реакции, в диапазоне от 0:100 до 80:20 и более предпочтительно от 1:99 до 70:30. Спирт можно использовать непосредственно в качестве присутствующего компонента или, в зависимости от случая, спирт можно использовать после отгонки. Предпочтительно удалять как можно большее количество спирта, так как это позволит уменьшить объем реактора для других стадий. Способом удаления предпочтительно является известный дистилляционный процесс, и дистиллятором, используемым для дистилляции, может быть известное дистилляционное устройство. Тонкоплочное дистилляционное устройство можно использовать в качестве предпочтительного дистилляционного устройства, так как оно обеспечивает удаление в пределах короткого периода времени. Ввиду того, что твердый оксид диалкилолова в основном не используют на этой стадии, в отличие от стадии синтеза алкоксида алкилолова, не существует каких-либо конкретных ограничений в отношении формы реактора, используемого для проведения реакции дегидрирования, и можно использовать любой известный бак или башенный реактор. Реакционная смесь с низкой температурой кипения, содержащая воду, является газообразной, и ее можно удалить из реактора посредством дистилляции, и реакционную смесь с высокой температурой кипения, содержащую алкоксид алкилолова, можно экстрагировать в виде жидкости со дна реактора. Примеры такого реактора включают реакторы, содержащие смесительный бак, многоступенчатый смесительный бак, дистилляционную колонку, многоступенчатую дистилляционную колонку, много трубчатый реактор, многоступенчатую дистилляционную колонку непрерывного действия, башню с насадкой, тонкоплочный испаритель, реактор, оснащенный внутренней опорой, реактор принудительной циркуляции, испаритель с падающей пленкой, испаритель падающих капель, фазный реактор струйного типа или колпачковую колонку, и можно использовать известные способы, при которых применяются комбинации этих систем. Способ с использованием реактора башенного типа является предпочтительным с точки зрения эффективного смещения равновесия реакции дегидрирования в сторону алкоксида алкилолова или способ с использованием реактора с большой площадью поверхности газожидкостного контакта используют, чтобы образовавшаяся вода быстро переходила в газовую фазу. Для этой стадии особенно предпочтительно использовать непрерывный способ с помощью многотрубчатого реактора, многоступенчатой дистилля-



ционной колонки или башни с насадкой, заполненной наполнителем. Материалами дистиллятора и линии могут быть общеизвестные материалы, не оказывающие отрицательного воздействия на реакцию, и предпочтительно использовать SUS304, SUS316, SUS316L и т.п. ввиду их небольшой стоимости. При необходимости, можно включать измерительные устройства, такие как измеритель расхода жидкости и термометр, и известное обрабатывающее оборудование, такое как ребойлер, насос, конденсатор, средства нагревания, средства охлаждения и т.п., при этом средствами нагревания могут быть известные средства нагревания, такие как пар или нагреватель, и средствами охлаждения могут быть известные средства охлаждения, такие как естественное охлаждение, охлаждающая вода или насыщенный солевой раствор.

Выше приведен пример получения сложного эфира угольной кислоты с использованием алкоксида алкилолова.

Посредством использования соединения алкилолова для этого варианта осуществления изобретения возможно значительное увеличение накопления неактивированных форм алкоксидов алкилолова, возникающего во время способов получения сложного эфира угольной кислоты в известном уровне техники, и достижение высокоэффективного получения сложных эфиров угольной кислоты.

Сложный эфир угольной кислоты, полученный на этой стадии, можно соответствующим образом использовать в качестве исходного вещества поликарбоната, исходного вещества изоцианата или исходного вещества другого химического продукта, или в качестве аккумуляторного электролита для литий-ионного аккумулятора. С использованием этого способа возможно решение проблемы стоимости и утилизации при производстве сложного эфира угольной кислоты. Таким образом, изобретение имеет чрезвычайно важное значение в промышленности.

### Примеры

Далее следует более подробное пояснение первого варианта осуществления изобретения посредством примеров и сравнительных примеров, с пониманием того, что изобретение не ограничено этими примерами.

Сначала будут описаны способы анализа, приведенные в примерах и сравнительных примерах.

Способы анализа.

1) Спектроскопия ЯМР.

Прибор: система JNM-A400 FT-ЯМР от JEOL Corp.

(1) Получение образцов спектроскопии  $^1\text{H}$ -ЯМР,  $^{13}\text{C}$ -ЯМР и  $^{119}\text{Sn}$ -ЯМР.

После взвешивания 0,3 г жидкости, содержащей алкоксид алкилолова или алкоксид алкилолова, добавляли приблизительно 0,7 г тяжелого хлороформа (со степенью чистоты 99,8%, Aldrich Co.) и 0,08 г тетраметилолова (класса A Wako, Wako Pure Chemical Industries, Ltd.) в качестве внутреннего стандарта для спектроскопии  $^{119}\text{Sn}$ -ЯМР и однородно перемешанный раствор использовали в качестве образца для спектроскопии ЯМР.

(2) Количественный анализ.

Анализировали алкоксиды алкилолова (диалкоксиды диалкилолова, тетраалкилдиалкоксидистанноксаны и/или алкоксиды триалкилолова) и составляли калибровочную кривую на основании внутреннего стандарта. Количественный анализ проводили для анализа образца раствор, исходя из полученной в результате калибровочной кривой.

2) Анализ воды.

Прибор: анализатор микровлажности CA-05, продукт Mitsubishi Chemical Corp.

Образец для анализа брали с использованием шприца и взвешивали, а затем непосредственно вводили в анализатор влажности для количественной оценки влаги. Массу шприца снова измеряли и использовали разницу для подсчета массы введенного образца для определения содержания влаги в образце.

3) Анализ с помощью газовой хроматографии соединений сложного эфира угольной кислоты и сложноэфирных соединений/

Устройство: система GC-2010 от Shimadzu Corp.

(1) Получение образца раствора для анализа.

После взвешивания 0,2 г реакционной смеси добавляли приблизительно 1,5 г дегидратированного ацетона (продукт Wako Pure Chemical Industries, с содержанием воды: <50 м.д.). После дополнительного добавления приблизительно 0,05 г дегидратированного толуола (продукт Wako Pure Chemical Industries, с содержанием воды: <50 м.д.) или простого дифенилового эфира (высокой степени чистоты, продукт Wako Pure Chemical Industries) в качестве внутреннего стандарта смесь использовали в качестве образца раствора для проведения анализа посредством газовой хроматографии.

(2) Условия анализа посредством газовой хроматографии.

Колонка: DB-1 (продукт J&W Scientific).

Жидкая фаза: 100% диметилполисилоксан.

Длина: 30 м.

Внутренний диаметр: 0,25 мм.

Толщина пленки: 1 мкм.

Температура колонки: после удерживания 50°C, в течение 5 мин температуру повышали до 300°C

со скоростью повышения температуры 10°C/мин.

Температура ввода пробы: 300°C.

Температура детектора: 300°C.

Детектор: FID.

(3) Количественный анализ.

Анализировали сложноэфирное соединение или соединение сложного эфира угольной кислоты, составляли калибровочную кривую на основании внутреннего стандарта. Количественный анализ проводили для анализа образца раствора, исходя из полученной в результате калибровочной кривой.

4) Анализ соединений оксида диалкилолова.

Прибор: система ИК-Фурье спектрометра Spectrum One/100 (метод НПВО), продукт Perkin Elmer.

Помещая приблизительно 5 мг оксида диалкилолова на планшет НПВО и применяя давление с помощью прижимного рычага, измеряли ИК-спектр.

Расчет концентрации атомов олова (в активном компоненте).

Активным компонентом для этого варианта осуществления изобретения являлся алкоксид алкилолова, эффективно функционирующий в реакции, и, в частности, им является диалкоксид диалкилолова и/или тетраалкилдиалкоксидистанноксан. Далее следует определение концентрации атомов олова (в активном компоненте) для выражения изменения количества активного компонента.

Концентрацию атомов олова (в активном компоненте) для диалкоксидов диалкилолова рассчитывали с помощью следующего уравнения (1). Например, концентрацию атомов олова (в активном компоненте) композиции диалкоксида диалкилолова, полученную в приведенном ниже примере синтеза 1, рассчитывали с помощью следующей математической формулы (1):

[Математическая формула 1]

$$\text{Концентрация атомов олова (в активном компоненте)} = C_1 \quad (1)$$

где "концентрация атомов олова (в активном компоненте)" представляет собой концентрацию [моль/кг] атомов олова в диалкоксиде диалкилолова в композиции диалкоксида диалкилолова и  $C_1$  представляет собой концентрацию [моль/кг] диалкоксида диалкилолова в композиции диалкоксида диалкилолова;  $C_1$  можно определять посредством спектроскопии  $^{119}\text{Sn}$ -ЯМР композиции.

Концентрацию атомов олова (в активном компоненте) для композиций тетраалкилдиалкоксидистанноксана рассчитывали с помощью математической формулы (2). Например, концентрацию атомов олова (в активном компоненте) композиции тетраалкилдиалкоксидистанноксана, полученной с помощью приведенного ниже примера синтеза 2, рассчитывали с помощью математической формулы (2):

[Математическая формула 2]

$$\text{Концентрация атомов олова (в активном компоненте)} = 2 \cdot C_2 \quad (2)$$

где "концентрация атомов олова (в активном компоненте)" представляет собой концентрацию [моль/кг] атомов олова в тетраалкилдиалкоксидистанноксане в композиции тетраалкилдиалкоксидистанноксана и  $C_2$  представляет собой концентрацию [моль/кг] тетраалкилдиалкоксидистанноксана в композиции тетраалкилдиалкоксидистанноксана;  $C_2$  можно определять с помощью спектроскопии  $^{119}\text{Sn}$ -ЯМР композиции тетраалкилдиалкоксидистанноксана.

Концентрацию атомов олова (в активном компоненте) в композициях, содержащих диалкоксид диалкилолова и/или тетраалкилдиалкоксидистанноксан, или композициях, также содержащих алкоксид диалкилолова, рассчитывали с помощью формулы (3):

[Математическая формула 3]

$$\text{Концентрация атомов олова (в активном компоненте)} = C_1 + 2 \cdot (3)$$

где "концентрация атомов олова (в активном компоненте)" представляет собой концентрацию [моль/кг] атомов олова, составляющих диалкоксид диалкилолова и/или тетраалкилдиалкоксидистанноксан в композиции;  $C_1$  представляет собой концентрацию [моль/кг] диалкоксида диалкилолова в композиции и  $C_2$  представляет собой концентрацию [моль/кг] тетраалкилдиалкоксидистанноксана композиции тетраалкилдиалкоксидистанноксана;  $C_1$  и  $C_2$  можно определять с помощью спектроскопии  $^{119}\text{Sn}$ -ЯМР композиции.

Пример синтеза 1. Синтез композиции бис-(3-метилбутил)диэтоксидола.

Синтез бис-(3-метилбутил)дихлорола.

После помещения 26,52 г (0,1 моль) тетрахлоорола (со степенью чистоты 99,995%, продукт Aldrich) и 150 мл простого эфира циклопентилметила (со степенью дегидрирования, продукт Aldrich) в четырехгорлую круглодонную колбу объемом 500 мл, соединенную с термометром, трехходовым краном и конденсатором Dimroth, в азотный шкаф под азотной атмосферой добавляли магнитную вертушку и использовали магнитную мешалку для перемешивания при комнатной температуре для образования гомогенного раствора. Затем после помещения 200 мл 2 М раствора бромиди изопентилмагния в простом диэтиловом эфире (продукт Aldrich) в 300 мл капельную воронку соединяли с четырехгорлой колбой. Колбу удаляли из азотного шкафа, погружали в ванну со льдом при одновременном оставлении под азотной атмосферой и начинали перемешивание. Затем начинали капельное пропускание раствора из капельной воронки, корректируя скорость капельного пропускания таким образом, чтобы

температура жидкой смеси в колбе не превышала 30°C. По мере капельного пропускания в колбе образовалось белое твердое вещество. По завершении капельного пропускания перемешивание смеси в колбе продолжали в течение приблизительно 3 ч. Затем колбу переносили в азотный шкаф и использовали всасывающий фильтр для фильтрации белого твердого вещества под азотной атмосферой. Дистилляционное разделение простого диэтилового эфира и простого циклопентилметилового эфира проводили из собранного фильтрата. После дистилляционного разделения проводили дополнительную дистилляцию компонентов с высокой температурой кипения и 38,7 г тетракис-(3-метилбутил)олова получали из собранной фракции.

Затем тетракис-(3-метилбутил)олова помещали в трехгорлую круглодонную колбу объемом 100 мл, оснащенную термометром, трехходовым краном и соединительной трубкой ответвительной трубы (соединительная трубка ответвительной трубы соединена с прибором с конденсатором Liebig, соединительной трубкой со сниженным давлением и двумя взаимосвязанными сосудами для сбора дистиллята), и добавляли 25,19 г (0,095 моль) тетрахлоролова (со степенью чистоты 99,995%, продукт Aldrich). Колбу погружали в масляную ванну и начинали перемешивание и нагревание жидкой смеси. Температуру масляной ванны корректировали таким образом, чтобы температура жидкой смеси составляла 120°C и после непрерывного перемешивания и нагревания в течение приблизительно 2 ч температуру масляной ванны корректировали таким образом, чтобы температура жидкой смеси составляла 200°C, и перемешивание и нагревание продолжали в течение приблизительно 4 ч. Затем в колбе постепенно снижали давление и отгоняли компоненты с низкой температурой кипения и при снижении давления в колбе для дистилляционного разделения бис-(3-метилбутил)дихлоролова получали 56,4 г бис-(3-метилбутил)дихлоролова.

Синтез композиции бис-(3-метилбутил)диэтоксиолова.

После помещения 53,1 г (0,16 моль) бис-(3-метилбутил)дихлоролова и 50 мл простого циклопентилметилового эфира (со степенью дегидрирования, продукт Aldrich) в четырехгорлую круглодонную колбу объемом 500 мл, соединенную с термометром, трехходовым краном и конденсатором Dimroth, под азотной атмосферой, добавляли магнитную вертушку и для перемешивания использовали магнитную мешалку при комнатной температуре для образования гомогенного раствора. Затем 160 мл 2 М раствора этоксида натрия в этаноле (полученного из раствора этанола с 21% по массе этоксида натрия, продукт Aldrich) помещали в 200 мл капельную воронку и капельную воронку соединяли с четырехгорлой колбой. Колбу удаляли из азотного шкафа, погружали в масляную ванну при одновременном оставлении под азотной атмосферой и начинали перемешивание. Затем начинали капельное пропускание раствора из капельной воронки, корректируя скорость капельного пропускания таким образом, чтобы температура жидкой смеси в колбе не превышала 40°C. По мере капельного пропускания в колбе образовалось белое твердое вещество. По завершении капельного пропускания перемешивание смеси в колбе продолжали в течение приблизительно 3 ч и колбу переносили в азотный шкаф. Использовали всасывающий фильтр для фильтрации белого твердого вещества под азотной атмосферой. Собранный фильтрат подвергали вакуумной дистилляции и после дистилляции собирали 54,1 г компонента (композиции) с высокой температурой кипения, содержащего бис-(3-метилбутил)диэтоксиолова.

Определенное посредством спектроскопии  $^{119}\text{Sn}$ -ЯМР количество бис-(3-метилбутил)диэтоксиолова в композиции составляло 53,3 г. Другими словами, концентрация бис-(3-метилбутил)диэтоксиолова в композиции составила 2,81 моль/кг, и концентрация атомов олова (в активном компоненте) композиции составила 2,81 моль/кг.

Пример синтеза 2. Синтез композиции 1,1,3,3-тетракис-(3-метилбутил)-1,3-диэтоксидистанноксана.

После помещения 17,5 г (0,05 моль) бис-(3-метилбутил)диэтоксиолова, полученного в примере синтеза 1, четырехгорлую круглодонную колбу объемом 300 мл, оснащенную термометром, трехходовым краном, капельной воронкой и соединительной трубкой ответвительной трубы (соединительная трубка ответвительной трубы соединена с прибором с конденсатором Liebig, соединительной трубкой со сниженным давлением и двумя взаимосвязанными сосудами для сбора дистиллята), добавляли 80 г этанола (со степенью дегидрирования, продукт Wako Pure Chemical Industries). Затем 85 г этанола и 0,45 г (0,025 моль) ионообменной воды смешивали в 200 мл лабораторном стакане и при образовании гомогенного раствора его помещали в капельную воронку. Колбу погружали в масляную ванну и начинали перемешивание и нагревание. Капельное пропускание начинали после корректировки температуры масляной ванны таким образом, чтобы температура жидкой смеси составляла приблизительно 40°C. По завершении капельного пропускания жидкую смесь оставляли при 40°C и перемешивание продолжали в течение 2 ч. Затем в колбе постепенно снижали давление и отгоняли этанол, после этого собирали 15,9 г компонента (композиции) с высокой температурой кипения, содержащего 1,1,3,3-тетракис-(3-метилбутил)-1,3-диэтоксидистанноксана. Количество 1,1,3,3-тетракис-(3-метилбутил)-1,3-диэтоксидистанноксана в композиции, определенное с помощью спектроскопии  $^{119}\text{Sn}$ -ЯМР, составляло 15,6 г. Другими словами, концентрация 1,1,3,3-тетракис-(3-метилбутил)-1,3-диэтоксидистанноксана в композиции составила 1,56 моль/кг, и концентрация атомов олова (в активном компоненте) композиции составила 3,12 моль/кг.

.Пример синтеза 3. Синтез композиции, содержащей алкоксид триалкилолова.

После помещения 15 г 1,1,3,3-тетраakis-(3-метилбутил)-1,3-диэтоксидистанноксана, полученного посредством способа примера синтеза 2, в трехгорлую колбу объемом 50 мл, оснащенную конденсатором Dimroth, соединенным с трехходовым краном, кремнийорганическим колпачком и термометром, с использованием газонепроницаемого шприца (1050TLL от Hamilton) аналогичным образом добавляли 10 г бис-(3-метилбутил)диэтоксиолова, полученного посредством способа примера синтеза 1, для получения композиции, содержащей 1,1,3,3-тетраakis-(3-метилбутил)-1,3-диэтоксидистанноксана и бис-(3-метилбутил)диэтоксиолова. Колбу погружали в масляную ванну, нагретую до 186°C. После перемешивания и нагревания в течение приблизительно 15 мин температура композиции в колбе достигала 180°C. Перемешивание и нагревание продолжали при периодическом взятии пробы и проводили спектроскопию <sup>119</sup>Sn-ЯМР, при подтверждении получения 0,0053 моль трис-(3-метилбутил)этоксиолова в композиции нагревание прекращали. Соотношение компонента после нагрева выражали по отношению атомов олова. Концентрация атомов олова (в активном компоненте) композиции, содержащей бис-(3-метилбутил)диэтоксиолова и 1,1,3,3-тетраakis-(3-метилбутил)-1,3-диэтоксидистанноксан, перед нагреванием, рассчитанная с помощью математической формулы (3), составляла 3,05 моль/кг, в то время как концентрация атомов олова, полученная из исходных веществ в композиции после нагревания (концентрация атомов олова, определенная из содержания бис-(3-метилбутил)диэтоксиолова и 1,1,3,3-тетраakis-(3-метилбутил)-1,3-диэтоксидистанноксана), изменилась до 2,62 моль/кг (снизилась приблизительно на 14% по сравнению с моментом до нагревания), и концентрация атомов олова, полученных из трис-(3-метилбутил)этоксиолова, составила 0,21 моль/кг. Другими словами, получили композицию, содержащую алкоксид триалкилолова, из которой приблизительно 7% было преобразовано в трис-(3-метилбутил)этоксиолова, по отношению к концентрации атомов олова (в активном компоненте) композиции до нагревания.

Пример синтеза 4. Синтез композиции бис-(3-метилбутил)-бис-(3-метилбутокс)олова/

После помещения 48,0 г (0,13 моль) бис-(3-метилбутил)дихлоролова, полученного посредством способа примера синтеза 1, и 50 мл простого циклопентилметилового эфира (со степенью дегидрирования, продукт Aldrich) в четырехгорлую круглодонную колбу объемом 500 мл, соединенную с термометром, трехходовым краном и конденсатором Dimroth, в азотный шкаф добавляли магнитную вертушку и для перемешивания использовали магнитную мешалку при комнатной температуре для образования гомогенного раствора. Затем 130 мл 2 М раствора гидроксида калия в этаноле (продукт Wako Pure Chemical Industries) помещали в 200 мл капельную воронку и капельную воронку соединяли с четырехгорлой колбой. Колбу удаляли из азотного шкафа и погружали в масляную ванну при одновременном оставлении под азотной атмосферой и начинали перемешивание. Затем начинали капельное пропускание раствора из капельной воронки, корректируя скорость капельного пропускания таким образом, чтобы температура жидкой смеси в колбе не превышала 40°C. По мере капельного пропускания в колбе образовалось белое твердое вещество. По завершении капельного пропускания перемешивание смеси в колбе продолжали в течение приблизительно 3 ч и для фильтрации белого твердого вещества использовали всасывающий фильтр в азотном шкафу. Собранное твердое вещество промывали 3 раза ионообменной водой и два раза ацетоном, а затем сушили в вакууме. При сушке собирали 32,5 г твердого вещества. Согласно измерению ИК-спектра твердого вещества содержание оксида бис-(3-метилбутил)олова в твердом веществе составило приблизительно 99%.

Синтез композиции бис-(3-метилбутил)-бис-(3-метилбутокс)олова.

В круглодонную колбу объемом 1 л помещали 30,5 г (0,1 моль) оксида бис-(3-метилбутил)олова и 881,5 г (10 моль) 3-метил-1-бутилового спирта (продукт Aldrich). Колбу, содержащую белую шламоподобную смесь, помещали на испаритель, соединенный с масляной ванной с регулятором температуры, вакуумным насосом и регулятором вакуума. Температуру масляной ванны установили на уровне 140°C, колбу погрузили в масляную ванну и начали вращение испарителя. После вращательного перемешивания и нагревания в течение приблизительно 20 мин при обычном давлении с оставленным открытым воздуховыпускным клапаном испарителя начали собирать дистиллят, содержащий в основном 3-метил-1-бутиловый спирт. Это состояние поддерживали в течение 5 ч, а затем колбу вынимали из масляной ванны. В это время реакционная смесь представляла собой прозрачную жидкость. Общее количество полученного дистиллята составляло 620,5 г, и анализ дистиллята с помощью анализатора микровлажности выявил содержание влаги 1,8 г (0,1 моль). Затем температуру масляной ванны устанавливали на уровне 120°C, колбу снова погружали в масляную ванну и перемешивали при вращении в течение приблизительно 20 мин при обычном давлении, а затем с целью удаления избытка 3-метил-1-бутилового спирта, воздуховыпускной клапан закрывали и вакуумный насос и регулятор вакуума использовали для постепенного снижения давления в реакторе с 1,8 до 2,5 кПа. Это состояние поддерживали в течение 3 ч, а затем колбу вынимали из масляной ванны, воздуховыпускной клапан медленно открывали и сухой газообразный азот вводили внутрь реактора для восстановления в нем обычного давления.

После дистилляции собирали 46,5 г компонента (композиции) с высокой температурой кипения, содержащего бис-(3-метилбутил)-бис-(3-метилбутокс)олова. В результате спектроскопии <sup>119</sup>Sn-ЯМР

композиции было определено содержание в нем 45,8 г бис-(3-метилбутил)-бис-(3-метилбутокси)олова. Другими словами, концентрация бис-(3-метилбутил)-бис-(3-метилбутокси)олова в композиции составляла 2,26 моль/кг, и концентрация атомов олова (в активном компоненте) композиции составляла 2,26 моль/кг.

Пример синтеза 5. Синтез композиции 1,1,3,3-тетраakis-(3-метилбутил)-1,3-бис-(3-метилбутокси)дистанноксана.

После помещения 21,8 г (0,05 моль) бис-(3-метилбутил)-бис-(3-метилбутокси)олова, полученного в примере синтеза 4, в четырехгорлую круглодонную колбу объемом 300 мл, оснащенную термометром, трехходовым краном, капельной воронкой и соединительной трубкой ответвительной трубы (соединительная трубка ответвительной трубы соединена с прибором с конденсатором Liebig, соединительной трубкой со сниженным давлением и двумя взаимосвязанными сосудами для сбора дистиллята), добавляли 80 г 3-метил-1-бутилового спирта (продукт Wako Pure Chemical Industries). Затем 85 г 3-метил-1-бутилового спирта и 0,45 г (0,025 моль) ионообменной воды смешивали в 200 мл лабораторном стакане, при образовании гомогенного раствора его помещали в капельную воронку. Колбу погружали в масляную ванну и начинали перемешивание и нагревание. Начинали капельное пропускание после корректировки температуры масляной ванны таким образом, чтобы температура жидкой смеси составляла приблизительно 60°C. По завершении капельного пропускания жидкую смесь оставляли при 60°C и перемешивание продолжали в течение 2 ч. Затем в колбе постепенно снижали давление и проводили дистилляционное разделение 3-метил-1-бутилового спирта. После дистилляции собирали 17,9 г компонента с высокой температурой кипения (композиции), содержащего 1,1,3,3-тетраakis-(3-метилбутил)-1,3-бис-(3-метилбутокси)дистанноксан. В результате проведения спектроскопии  $^{119}\text{Sn}$ -ЯМР выявили содержание 17,6 г 1,1,3,3-тетраakis-(3-метилбутил)-1,3-бис-(3-метилбутокси)дистанноксана в композиции. Другими словами, концентрация 1,1,3,3-тетраakis-(3-метилбутил)-1,3-бис-(3-метилбутокси)дистанноксана в композиции составляла 1,38 моль/кг, и концентрация атомов олова (в активном компоненте) композиции составляла 2,76 моль/кг.

Пример синтеза 6. Синтез композиции, содержащей алкоксид триалкилолова.

После помещения 15 г 1,1,3,3-тетраakis-(3-метилбутил)-1,3-бис-(3-метилбутокси)дистанноксана, полученного посредством способа примера синтеза 5, в трехгорлую колбу объемом 50 мл, оснащенную конденсатором Dimroth, соединенным с трехходовым краном, кремнийорганическим колпачком и термометром, с использованием газонепроницаемого шприца (1050TLL от Hamilton), затем аналогичным образом добавляли 10 г бис-(3-метилбутил)-бис-(3-метилбутокси)олова, полученного посредством способа примера синтеза 4, для получения композиции, содержащей 1,1,3,3-тетраakis-(3-метилбутил)-1,3-бис-(3-метилбутокси)дистанноксан и бис-(3-метилбутил)-бис-(3-метилбутокси)олова. Колбу погружали в масляную ванну, нагретую до 186°C. После перемешивания и нагревания в течение приблизительно 15 мин температура композиции в колбе достигла 180°C. Перемешивание и нагревание продолжали при периодическом взятии пробы и при одновременном периодическом взятии пробы, проводили анализ  $^{119}\text{Sn}$ -ЯМР и при подтверждении получения 0,0023 моль трис-(3-метилбутил)-(3-метилбутокси)олова в композиции нагревание прекращали.

Соотношение компонента после нагревания выражали по отношению к атомам олова. Концентрация атомов олова (в активном компоненте) композиции, содержащей бис-(3-метилбутил)-бис-(3-метилбутокси)олова и 1,1,3,3-тетраakis-(3-метилбутил)-1,3-бис-(3-метилбутокси)дистанноксан, рассчитанная до нагревания с помощью математической формулы (3), составила 2,60 моль/кг, в то время как концентрация атомов олова, полученная из исходных веществ в композиции после нагревания (концентрация атомов олова, рассчитанная, исходя из содержания бис-(3-метилбутил)-бис-(3-метилбутокси)олова и 1,1,3,3-тетраakis-(3-метилбутил)-1,3-бис-(3-метилбутокси)дистанноксана с использованием математической формулы (7)), изменилась до 2,24 моль/кг (снизилась приблизительно на 14% по сравнению с моментом до нагрева), и концентрация атомов олова, полученных из трис-(3-метилбутил)-(3-метилбутокси)олова, составила 0,18 моль/кг. Другими словами, получали композицию, содержащую алкоксид триалкилолова, в которой приблизительно 7% было преобразовано в трис-(3-метилбутил)-(3-метилбутокси)олова, по отношению к концентрации атомов олова (в активном компоненте) композиции алкоксида алкилолова до нагревания.

Пример синтеза 7. Синтез композиции диизопропил-бис-(2-этилбутокси)олова.

Синтез диизопропидийодоола.

После помещения 17,81 г (0,15 моль) порошка олова (99,9% со степенью чистоты, продукт Wako Pure Chemical Industries), 51,0 г (0,3 моль) 2-йодопропана (продукт Aldrich) и 0,75 г йодида магния (продукт Wako Pure Chemical Industries) в трехгорлую круглодонную колбу объемом 200 мл, оснащенную термометром, трехходовым краном и соединительной трубкой ответвительной трубы (соединительная трубка ответвительной трубы соединена с прибором с конденсатором Liebig, соединительной трубкой со сниженным давлением и двумя взаимосвязанными сосудами для сбора дистиллята), добавляли магнитную вертушку и для перемешивания использовали магнитную мешалку. Колбу погружали в масляную ванну, и начинали перемешивание и нагревание реакционной смеси. Температуру масляной ванны кор-

ректировали таким образом, чтобы температура реакционной смеси составляла 140°C, и после непрерывного перемешивания и нагревания в течение приблизительно 3 ч реакционная смесь преобразовалась в гомогенный раствор. Затем в колбе постепенно снижали давление и проводили дистилляционную очистку продукта диизопропилдийодоолова. Количество собранного диизопропилдийодоолова составило 31,3 г.

Синтез оксида диизопропилолова.

После помещения 45,9 г (0,1 моль) диизопропилдийодоолова и 50 мл простого циклопентилметилового эфира (со степенью дегидрирования, продукт Aldrich) в четырехгорлую круглодонную колбу объемом 500 мл, соединенную с термометром, трехходовым краном и конденсатором Dimroth, в азотный шкаф добавляли магнитную вертушку и для перемешивания использовали магнитную мешалку при комнатной температуре для образования гомогенного раствора. Затем 130 мл 2 М раствора гидроксида калия в этаноле (продукт Wako Pure Chemical Industries) помещали в 200 мл капельную воронку и капельную воронку соединяли с четырехгорлой колбой. Колбу удаляли из азотного шкафа и погружали в масляную ванну при одновременном оставлении под азотной атмосферой и начинали перемешивание. Затем начинали капельное пропускание раствора из капельной воронки, корректируя скорость капельного пропускания таким образом, чтобы температура жидкой смеси в колбе не превышала 40°C. По мере капельного пропускания в колбе образовалось белое твердое вещество. По завершении капельного пропускания перемешивание смеси в колбе продолжали в течение приблизительно 3 ч и всасывающий фильтр использовали в азотном шкафу для фильтрации белого твердого вещества. Собранное твердое вещество промывали 3 раза ионообменной водой и два раза ацетоном, а затем сушили в вакууме. При сушке собирали 19,5 г твердого вещества. Согласно измерению ИК-спектра твердого вещества содержание оксида диизопропилолова составило приблизительно 99%.

Синтез композиции диизопропил-бис-(2-этилбутокс)олова.

После помещения 17,7 г (0,08 моль) оксида диизопропилолова в трехгорлую круглодонную колбу объемом 1 л, оснащенную термометром, трехходовым краном и соединительной трубкой ответвительной трубы (соединительная трубка ответвительной трубы соединена с прибором с конденсатором Liebig, соединительной трубкой со сниженным давлением и двумя взаимосвязанными сосудами для сбора дистиллята), добавляли 552,8 г (2,4 моль) карбоната бис-(2-этилбутил) (продукт Tosco). Колбу погружали в масляную ванну и начинали перемешивание и нагревание жидкой смеси. Температуру масляной ванны корректировали таким образом, чтобы температура жидкой смеси составляла приблизительно 130°C и перемешивание и нагревание продолжали в течение приблизительно 3 ч. Затем в колбе постепенно снижали давление и проводили дистилляционное разделение избытка карбоната бис-(2-этилбутил). После дистилляции собирали 14,0 г компонента (композиции) с высокой температурой кипения, содержащего диизопропил-бис-(2-этилбутокс)олова. Согласно результатам проведенной спектроскопии <sup>119</sup>Sn-ЯМР композиции, содержание диизопропил-бис-(2-этилбутокс)олова составило 13,5 г. Другими словами, концентрация диизопропил-бис-(2-этилбутокс)олова композиции составила 2,37 моль/кг, и концентрация атомов олова (в активном компоненте) композиции составила 2,37 моль/кг.

Пример синтеза 8. Синтез композиции 1,1,3,3-тетраизопропил-1,3-бис-(2-этилбутокс)дистанноксана.

После помещения 32,6 г (0,08 моль) диизопропил-бис-(2-этилбутокс)олова, полученного в примере синтеза 7, четырехгорлую круглодонную колбу объемом 300 мл, оснащенную термометром, трехходовым краном, капельной воронкой и соединительной трубкой ответвительной трубы (соединительная трубка ответвительной трубы соединена с прибором с конденсатором Liebig, соединительной трубкой со сниженным давлением и двумя взаимосвязанными сосудами для сбора дистиллята), добавляли 100 г 2-этил-1-бутилового спирта (продукт Aldrich), ранее очищенного посредством дистилляции. Затем 100 г 2-этил-1-бутилового спирта и 0,72 г (0,04 моль) ионообменной воды смешивали в 200 мл лабораторном стакане и при образовании гомогенного раствора помещали в капельную воронку. Колбу погружали в масляную ванну и начинали перемешивание и нагревание. Начинали капельное пропускание после корректировки температуры масляной ванны таким образом, чтобы температура жидкой смеси составляла приблизительно 45°C. По завершении капельного пропускания жидкую смесь оставляли при 45°C и перемешивание продолжали в течение 2 ч. Затем в колбе постепенно снижали давление и проводили дистилляционное разделение 2-этил-1-бутилового спирта. После дистилляции собирали 23,5 г компонента (композиции) с высокой температурой кипения, содержащего 1,1,3,3-тетраизопропил-1,3-бис-(2-этилбутокс)дистанноксана. Согласно результатам проведенной спектроскопии <sup>119</sup>Sn-ЯМР содержание 1,1,3,3-тетраизопропил-1,3-бис-(2-этилбутокс)дистанноксана составило 22,9 г. Другими словами, концентрация 1,1,3,3-тетраизопропил-1,3-бис-(2-этилбутокс)дистанноксана в композиции составила 1,55 моль/кг, и концентрация атомов олова (в активном компоненте) композиции составила 3,10 моль/кг.

Пример синтеза 9. Синтез композиции 1,1,3,3-тетрабутил-1,3-бис-(2-этилбутил)дистанноксана.

В трехгорлую колбу объемом 2 л, оснащенную термометром, трехходовым краном и водомерным устройством, соединенным с конденсатором Dimroth, помещали 199,8 г (0,80 моль) оксида дибутилолова (продукт Aldrich), 1045 г (8,0 моль) 2-этил-1-бутилового спирта (продукт Aldrich) и 500 г толуола (для

органического синтеза, продукт Wako Pure Chemical Industries). Колбу, содержащую белую шламopodobную смесь, погружали в масляную ванну с температурой, установленной на уровне 130°C. После перемешивания и нагревания в течение приблизительно 30 мин смесь закипела и, таким образом, начинали сбор воды и толуола в водомерном устройстве.

После поддержания такого состояния в течение приблизительно 3 ч в водомерном устройстве собрали приблизительно 7,2 мл воды. Затем температуру масляной ванны снизили до 90°C и после снижения температуры смеси водомерное устройство удаляли и колбу соединяли с соединительной трубкой ответвительной трубы, конденсатором Liebig, соединительной трубкой со сниженным давлением и двумя взаимосвязанными сосудами для сбора дистиллята. Давление внутри реактора снизили до 29 кПа и толуол дистиллировали из колбы, после чего давление внутри реактора снизили для отгонки избытка 2-этил-1-бутилового спирта. После дистилляции из колбы собрали 300 г компонента (композиции) с высокой температурой кипения. Согласно результатам проведенной спектроскопии <sup>119</sup>Sn-ЯМР композиции композиция содержала 295 г 1,1,3,3-тетрабутил-1,3-бис-(2-этилбутилокси)дистанноксана.

Пример синтеза 10. Синтез композиции дибутил-бис-(2-этилбутокси)олова.

В круглодонную колбу объемом 1 л помещали 20,1 г (0,081 моль) оксида дибутилолова (продукт Aldrich) и 835 г (8,2 моль) 2-этил-1-бутилового спирта (продукт Aldrich). Колбу, содержащую белую шламopodobную смесь, помещали на испаритель, соединенный с масляной ванной с регулятором температуры, вакуумным насосом и регулятором вакуума. Температуру масляной ванны устанавливали на уровне 150°C, колбу погружали в масляную ванну и начинали вращение испарителя. После вращательного перемешивания и нагревания в течение приблизительно 20 мин при обычном давлении с оставленным открытым воздуховыпускным клапаном испарителя воздуховыпускной клапан испарителя закрывали и давление внутри реактора постепенно снижали с 54 до 75 кПа с использованием вакуумного насоса и регулятора вакуума. Это состояние поддерживали в течение 1,5 ч, а затем колбу вынимали из масляной ванны. В это время реакционная смесь представляла собой прозрачную жидкость. Воздуховыпускной клапан постепенно открывали для введения в реактор сухого газообразного азота, восстанавливая давление в реакторе до обычного давления. Количество дистиллированной жидкости составило 99,2 г, и она была прозрачной, и ее разделили на 2 слоя. Согласно проведенному анализу дистиллированной жидкости с помощью анализатора микровлажности содержание влаги составило 1,5 г (0,083 моль). Затем температуру масляной ванны снизили до 100°C, колбу снова погрузили в масляную ванну с вращательным перемешиванием и обычным перемешиванием в течение приблизительно 20 мин при обычном давлении, а затем с целью удаления избытка 2-этил-1-бутилового спирта воздуховыпускной клапан закрывали и вакуумный насос и регулятор вакуума использовали для постепенного снижения давления в реакторе с 1,8 до 2,5 кПа. Это состояние поддерживали в течение 3 ч, а затем колбу вынимали из масляной ванны и воздуховыпускной клапан медленно открывали для восстановления давления внутри реактора до обычного давления. После дистилляции из колбы собирали 36 г компонента (композиции) с высокой температурой кипения. Согласно результатам проведенной спектроскопии <sup>119</sup>Sn-ЯМР композиции содержание дибутил-бис-(2-этилбутокси)олова композиции составило 35,5 г.

Пример 1.

На фиг. 1 представлен циркуляционный реактор непрерывного действия, включающий корпусной реактор, трубчатый реактор и башенный реактор для проведения реакции переэтерификации. Композицию тетраалкилдиалкоксидистанноксана вводили в циркуляционный реактор непрерывного действия и осуществляли циркуляцию для проведения пробного испытания. Приблизительно 50 кг композиции 1,1,3,3-тетраakis-(3-метилбутил)-1,3-бис-(3-метилбутокси)дистанноксана, полученной посредством способа примера синтеза 5 (с концентрацией атомов олова (в активном компоненте) композиции 2,76 моль/кг), вводили в бак с катализатором SUS316 130, оснащенный нагревательной рубашкой и насосом для перемещения жидкости через линию поставки 15. Осуществляли циркуляцию композиции в баке с катализатором 130 в течение приблизительно 10 ч. Затем с использованием химического шестереночного насоса композицию переносили из бака с катализатором 130 в корпусной реактор 140 при 12 кг/ч через линию транспортировки 14, поточный смеситель 141, оснащенный нагревательной рубашкой, и линию транспортировки 5. Корпусной реактор 140 объемом 15 л, включающий мешалку, нагревательную рубашку и насос для перемещения жидкости, и нагревательную рубашку нагревали паром приблизительно при 155°C. Трубчатый реактор 150 с внешним диаметром 200 мм и длиной 1000 мм, также включающий нагревательную рубашку, и нагревательную рубашку нагревали паром приблизительно при 160°C. Башенный реактор SUS316 160 с внутренним диаметром 75 мм и расчетной длиной 4500 мм, оснащенный 30 ситчатыми тарелками, нагревали и теплоизолировали с помощью обогревателя по всей площади башенного реактора для предотвращения потери излучаемого тепла, обогреватель установили на уровне приблизительно 150°C. Насос для перемещения жидкости и ребойлер 163 помещали на дно башенного реактора 160 и ребойлер 163 нагревали паром приблизительно при 160°C. Тонкопленочный испаритель 170 с теплопередающей поверхностью 0,1 м<sup>2</sup> был оснащен нагревательной рубашкой и химическим шестереночным насосом для переноса жидкости компонента с высокой температурой кипения, нагревательную рубашку нагревали паром при 160°C и давление тонкопленочного испарителя 170 уста-

новили на уровне 115 кПа абс. Бак и трубы обогревали паром для сохранения реологического свойства. Композицию переносили в корпусной реактор 140, затем переносили в трубчатый реактор 150 через линию транспортировки 6, затем переносили в башенный реактор 160 через линию транспортировки 7, а затем переносили в тонкоплочный испаритель 170 через линию транспортировки 9, после этого переносили в бак с катализатором 130 через линию транспортировки 11. Таким образом, осуществляли непрерывную циркуляцию композиции через корпусной реактор 140, трубчатый реактор 150, башенный реактор 160, тонкоплочный испаритель 170 и бак с катализатором 130 через линию транспортировки 14, поточный смеситель 141, линию транспортировки 5, линию транспортировки 6, линию транспортировки 7, линию транспортировки 9 и линию транспортировки 11 и этот процесс продолжали в течение приблизительно 5 суток. Затем из трубопровода отбора пара 16 брали образец раствора в баке с катализатором 130, и согласно анализу спектроскопии  $^{119}\text{Sn}$ -ЯМР подтвердилось присутствие 1,1,3,3-тетраakis-(3-метилбутил)-1, 3-бис-(3-метилбутоксидистанноксана и трис-(3-метилбутил)(3-метилбутоксидистанноксана)олова после пробного испытания. При циркуляции концентрация атомов олова (в активном компоненте), исходя из концентрации 1,1,3,3-тетраakis-(3-метилбутил)-1,3-бис-(3-метилбутоксидистанноксана композиции в баке с катализатором 130 после пробного испытания согласно результатам анализа, составляла 2,55 моль/кг, что является снижением на 7,6% по сравнению с моментом до начала пробного испытания. С другой стороны, получали 5,1 моль трис-(3-метилбутил)(3-метилбутоксидистанноксана)олова, что соответствует 3,7% по отношению к числу моль атомов олова (в активном компоненте) композиции, введенной в бак с катализатором до начала пробного испытания.

#### Пример 2.

На фиг. 2 представлен циркуляционный реактор непрерывного действия, включающий трубчатый реактор и башенный реактор для проведения реакции переэтерификации. Композицию диалкоксида диалкилолова вводили в циркуляционный реактор непрерывного действия и осуществляли циркуляцию для проведения пробного испытания. После помещения приблизительно 45 кг композиции бис-(3-метилбутил)-бис-(3-метилбутоксидистанноксана)олова, полученной посредством способа примера синтеза 4 (с концентрацией атомов олова (в активном компоненте) композиции: 2,26 моль/кг), в бак с катализатором SUS316 230, оснащенный нагревательной рубашкой и насосом для перемещения жидкости через линию поставки 33, осуществляли циркуляцию композиции в баке с катализатором 230 в течение приблизительно 10 ч. Затем с использованием химического шестереночного насоса композицию переносили из бака с катализатором 230 в трубчатый реактор 240 при 8 кг/ч через линию транспортировки 34, поточный смеситель 241, оснащенный нагревательной рубашкой, и линию транспортировки 25. Трубчатый реактор 240 с внешним диаметром 250 мм и длиной 1500 мм также включал нагревательную рубашку, которую нагревали паром приблизительно при 140°C. Башенный реактор SUS316 250 с внутренним диаметром 75 мм и расчетной длиной 4500 мм, оснащенный 30 ситчатыми тарелками, нагревали и теплоизолировали с помощью обогревателя по всей площади башенного реактора для предотвращения потери излучаемого тепла, обогреватель установили на уровне приблизительно 150°C. Насос для перемещения жидкости и ребойлер 253 помещали на дно башенного реактора 250 и ребойлер 253 нагревали паром приблизительно при 160°C. Кроме того, тонкоплочный испаритель 260 (с теплопередающей поверхностью 0,1 м<sup>2</sup>), оснащенный нагревательной рубашкой и химическим шестереночным насосом для перемещения жидкости компонента с высокой температурой кипения, нагревали до 170°C и давление установили на уровне 115 кПа абс. Бак и трубы обогревали паром для сохранения реологического свойства. Композицию переносили в трубчатый реактор 240, затем переносили в башенный реактор 250 через линию транспортировки 26, затем переносили в тонкоплочный испаритель 260 через линию транспортировки 28, а затем переносили в бак с катализатором 230 через линию транспортировки 30. Таким образом, осуществляли непрерывную циркуляцию композиции через трубчатый реактор 240, башенный реактор 250, тонкоплочный испаритель 260 и бак с катализатором 230 через линию транспортировки 34, поточный смеситель 241, линию транспортировки 25, линию транспортировки 26, линию транспортировки 28 и линию транспортировки 30 и этот процесс продолжали в течение приблизительно 6 суток. Затем из трубопровода отбора пара 35 брали образец жидкости в баке с катализатором 230, и согласно результатам спектроскопии  $^{119}\text{Sn}$ -ЯМР подтвердилось присутствие бис-(3-метилбутил)-бис-(3-метилбутоксидистанноксана)олова и трис-(3-метилбутил)(3-метилбутоксидистанноксана)олова после пробного испытания. При циркуляции концентрация атомов олова, исходя из концентрации бис-(3-метилбутил)-бис-(3-метилбутоксидистанноксана)олова композиции в баке с катализатором 230 после пробного испытания, согласно результатам проведенного анализа, составила 2,11 моль/кг, что является снижением на 6,6% по сравнению с моментом до начала пробного испытания. С другой стороны, получали 3,3 моль трис-(3-метилбутил)(3-метилбутоксидистанноксана)олова, что составляет 3,2% по отношению к числу моль атомов олова (в активном компоненте) композиции, введенной в бак с катализатором до начала пробного испытания.

#### Пример 3.

На фиг. 3 представлен циркуляционный реактор непрерывного действия, включающий корпусной реактор и башенный реактор для проведения реакции переэтерификации. Композицию алкоксида алкилолова вводили в циркуляционный реактор непрерывного действия и осуществляли циркуляцию для



проведения пробного испытания. Композицию получали посредством смешивания бис-(3-метилбутил)-бис-(3-метилбутоксидистанноксана) и 1,1,3,3-тетраakis-(3-метилбутил)-1,3-бис-(3-метилбутоксидистанноксана), полученного способами примера синтеза 4 и примера синтеза 5. Смесь получали таким образом, чтобы молярное соотношение атомов олова бис-(3-метилбутил)-бис-(3-метилбутоксидистанноксана) и 1,1,3,3-тетраakis-(3-метилбутил)-1,3-бис-(3-метилбутоксидистанноксана) по отношению к числу моль атомов олова в композиции составляло 65:35. Концентрация атомов олова (в активном компоненте) композиции алкоксида алкилолова, рассчитанная с помощью математической формулы (3), составила 2,44 моль/кг. Приблизительно 60 кг композиции вводили в бак с катализатором SUS316 330, оснащенный нагревательной рубашкой и насосом для перемещения жидкости, через линию поставки 53. Сначала осуществляли циркуляцию композиции в баке с катализатором 330 в течение приблизительно 10 ч. Затем с использованием химического шестереночного насоса композицию переносили из бака с катализатором 330 в корпусной реактор 340 при 10 кг/ч через линию транспортировки 54, поточный смеситель 341 и линию транспортировки 45. Корпусной реактор 340 представлял собой реактор объемом 15 л, включающий мешалку, нагревательную рубашку и насос для перемещения жидкости, и нагревательную рубашку нагревали паром приблизительно при 150°C. Башенный реактор SUS316 350 с внутренним диаметром 76 мм и расчетной длиной 3500 мм, оснащенный 25 ситчатыми тарелками, нагревали и теплоизолировали с помощью обогревателя по всей площади башенного реактора для предотвращения потери излучаемого тепла, обогреватель установили на уровне приблизительно 150°C. Насос для перемещения жидкости и ребойлер 353 помещали на дно башенного реактора 350, и ребойлер 353 нагревали паром приблизительно при 160°C. Кроме того, тонкопленочный испаритель 360 (с теплопередающей поверхностью: 0,1 м<sup>2</sup>), оснащенный нагревательной рубашкой и насосом для перемещения жидкости компонента с высокой температурой кипения, нагревали до 165°C и давление установили на уровне 115 кПа абс. Бак и трубы обогревали паром для сохранения реологического свойства. Композицию переносили в корпусной реактор 340, затем переносили в башенный реактор 350 через линию транспортировки 46, затем переносили в тонкопленочный испаритель 360 через линию транспортировки 48, а затем переносили в бак с катализатором 330 через линию транспортировки 50. Таким образом, осуществляли непрерывную циркуляцию композиции алкоксида алкилолова через корпусной реактор 340, башенный реактор 350, тонкопленочный испаритель 360 и бак с катализатором 330 через линию транспортировки 54, поточный смеситель 341, линию транспортировки 45, линию транспортировки 46, линию транспортировки 48 и линию транспортировки 50 и этот процесс продолжали в течение приблизительно 5 суток. Затем из трубопровода отбора пара 55 брали образец раствора в баке с катализатором 330, и согласно результатам спектроскопии <sup>119</sup>Sn-ЯМР, подтвердилось присутствие бис-(3-метилбутил)-бис-(3-метилбутоксидистанноксана) и трис-(3-метилбутил)(3-метилбутоксидистанноксана) после пробного испытания. При определении концентрации бис-(3-метилбутил)-бис-(3-метилбутоксидистанноксана) и концентрации 1,1,3,3-тетраakis-(3-метилбутил)-1,3-бис-(3-метилбутоксидистанноксана) в баке с катализатором 330 после пробного испытания, исходя из результатов проведенного анализа, и расчете концентрации атомов олова композиции, она составила 2,29 моль/кг, что является снижением на 6,1% по сравнению с моментом до начала пробного испытания. С другой стороны, получали 4,4 моль трис-(3-метилбутил)(3-метилбутоксидистанноксана), что составляет 3,0% по отношению к числу моль атомов олова (в активном компоненте) композиции алкоксида алкилолова до начала пробного испытания.

#### Пример 4.

На фиг. 4 представлен циркуляционный реактор непрерывного действия для синтеза сложного эфира угольной кислоты с использованием композиции алкоксида алкилолова. Композицию алкоксида алкилолова вводили в циркуляционный реактор непрерывного действия и осуществляли циркуляцию для проведения пробного испытания. Композицию, содержащую алкоксид триалкилолова (композицию алкоксида алкилолова, содержащую 1,1,3,3-тетраakis-(3-метилбутил)-1,3-бис-(3-метилбутоксидистанноксана), бис-(3-метилбутил)-бис-(3-метилбутоксидистанноксана) и трис-(3-метилбутил)(3-метилбутоксидистанноксана)), получали посредством способа примера синтеза 6. Согласно расчету концентрации атомов олова (в активном компоненте) в композиции, исходя из концентрации 1,1,3,3-тетраakis-(3-метилбутил)-1,3-бис-(3-метилбутоксидистанноксана) и концентрации бис-(3-метилбутил)-бис-(3-метилбутоксидистанноксана), определенной на основании результатов проведенного анализа, она составила 2,24 моль/кг. Концентрация трис-(3-метилбутил)(3-метилбутоксидистанноксана) составила 0,17 моль/кг. Приблизительно 60 кг композиции вводили в бак с катализатором SUS316 660, оснащенный нагревательной рубашкой и насосом для перемещения жидкости, через линию поставки 78. Сначала осуществляли циркуляцию композиции в баке с катализатором 660 в течение приблизительно 12 ч. Затем с использованием химического шестереночного насоса композицию переносили из бака с катализатором 660 в башенный реактор 620 при 10 кг/ч через линию транспортировки 74, поточный смеситель 621, оснащенный нагревательной рубашкой, и линию транспортировки 65. Башенный реактор SUS316 620 с внутренним диаметром 76 мм и расчетной длиной 4500 мм, оснащенный 30 ситчатыми тарелками, нагревали и теплоизолировали с помощью обогревателя по всей площади башенного реактора для предотвращения потери излучаемого тепла,

температуру обогревателя установили на уровне приблизительно  $150^{\circ}\text{C}$ . Насос для перемещения жидкости и ребойлер 622 помещали на дно башенного реактора 620 и ребойлер 622 нагревали паром приблизительно при  $155^{\circ}\text{C}$ . Использованный автоклав 630 представлял собой реактор объемом 15 л, включающий мешалку, нагревательную рубашку и насос для перемещения жидкости, и нагревательную рубашку нагревали паром приблизительно при  $150^{\circ}\text{C}$ . Тонкопленочный испаритель 640 (с теплопередающей поверхностью  $0,1\text{ м}^2$ ) и тонкопленочный испаритель 650 (с теплопередающей поверхностью:  $0,2\text{ м}^2$ ) с установленным давлением 115 кПа абс. были оснащены нагревательной рубашкой и насосом для перемещения жидкости компонента с высокой температурой кипения и для нагревания использовали пар приблизительно при  $160^{\circ}\text{C}$ . Бак и трубы обогревали паром для сохранения реологического свойства. Композицию алкоксида алкилолова, ранее перенесенную в башенный реактор 620, переносили в автоклав 630 через линию транспортировки 67, а затем переносили в тонкопленочный испаритель 640 через линию транспортировки 69 и также переносили в тонкопленочный испаритель 650 через линию транспортировки 71, после этого ее переносили в бак с катализатором 660 через линию транспортировки 73. Таким образом, осуществляли непрерывную циркуляцию композиции алкоксида алкилолова через башенный реактор 620, автоклав 630, тонкопленочный испаритель 640, тонкопленочный испаритель 650 и бак с катализатором 660 через линию транспортировки 74, поточный смеситель 621, линию транспортировки 65, линию транспортировки 67, линию транспортировки 69, линию транспортировки 71 и линию транспортировки 73 и этот процесс продолжали в течение приблизительно 5 суток. Затем из трубопровода отбора пара 79 брали образец жидкости в баке с катализатором 660 и проводили спектроскопию  $^{119}\text{Sn}$ -ЯМР. Согласно расчету концентрации атомов олова в композиции, исходя из концентрации 1,1,3,3-тетраakis-(3-метилбутил)-1,3-бис-(3-метилбутоксидистанноксана и концентрации бис-(3-метилбутил)-бис-(3-метилбутоксидилова в баке с катализатором 660 после пробного испытания на основании результатов проведенного анализа, она составляла 2,11 моль/кг, что является снижением на 5,8% по сравнению с моментом до начала пробного испытания. С другой стороны, получали 3,8 моль трис-(3-метилбутил)-(3-метилбутоксидилова, что составляет 2,8% по отношению к числу моль атомов олова (в активном компоненте), согласно расчету, исходя из количества, добавленного в бак с катализатором до начала пробного испытания и исходя из концентрации 1,1,3,3-тетраakis-(3-метилбутил)-1,3-бис-(3-метилбутоксидистанноксана и концентрации бис-(3-метилбутил)-бис-(3-метилбутоксидилова в композиции.

#### Пример 5.

На фиг. 5 представлен циркуляционный реактор непрерывного действия для синтеза сложного эфира угольной кислоты с использованием композиции алкоксида алкилолова. Композицию диалкоксида диалкилолова вводили в циркуляционный реактор непрерывного действия и осуществляли циркуляцию для проведения пробного испытания. Приблизительно 60 кг композиции бис-(3-метилбутил)-дибутоксидилова, полученной аналогичным способом, как в примере синтеза 1 (с концентрацией атомов олова (в активном компоненте) композиции: 2,42 моль/кг), вводили в бак с катализатором SUS316 770, оснащенный нагревательной рубашкой и насосом для перемещения жидкости через линию поставки 107. Сначала осуществляли циркуляцию композиции в баке с катализатором 770 в течение приблизительно 12 ч. Затем композицию переносили из бака с катализатором 770 в корпусной реактор 710 при 10 кг/ч через линию транспортировки 109, поточный смеситель 711, оснащенный нагревательной рубашкой, и линию транспортировки 110. Корпусной реактор 710 представлял собой реактор объемом 10 л, включающий мешалку, нагревательную рубашку и насос для перемещения жидкости, и нагревательную рубашку нагревали паром приблизительно при  $150^{\circ}\text{C}$ . Башенный реактор SUS316 730 с внутренним диаметром 76 мм и расчетной длиной 3500 мм, оснащенный 25 ситчатыми тарелками, нагревали и теплоизолировали с помощью обогревателя по всей площади башенного реактора для предотвращения потери излучаемого тепла, обогреватель установили на уровне приблизительно  $150^{\circ}\text{C}$ . Насос для перемещения жидкости и ребойлер 733 помещали на дно башенного реактора 730 и ребойлер 733 нагревали паром приблизительно при  $160^{\circ}\text{C}$ . Использованный автоклав 740 представлял собой реактор объемом 15 л, включающий мешалку, нагревательную рубашку и насос для перемещения жидкости, и нагревательную рубашку нагревали паром приблизительно при  $140^{\circ}\text{C}$ . Тонкопленочный испаритель 750 (с теплопередающей поверхностью  $0,1\text{ м}^2$ ) и тонкопленочный испаритель 760 (с теплопередающей поверхностью  $0,2\text{ м}^2$ ) с установленным давлением на уровне 85 кПа абс. были оснащены нагревательной рубашкой и насосом для перемещения жидкости компонента с высокой температурой кипения, и для нагревания использовали пар при  $160^{\circ}\text{C}$ . Композицию переносили в корпусной реактор 710, затем переносили в башенный реактор 730 через линию транспортировки 95, затем переносили в автоклав 740 через линию транспортировки 97, затем переносили в тонкопленочный испаритель 750 через линию транспортировки 99 и также переносили в тонкопленочный испаритель 760 через линию транспортировки 101, после этого ее переносили в бак с катализатором 770 через линию транспортировки 103. Таким образом, осуществляли непрерывную циркуляцию композиции через корпусной реактор 710, башенный реактор 730, автоклав 740, тонкопленочный испаритель 750, тонкопленочный испаритель 760 и бак с катализатором 770 через линию транспортировки 109, поточный смеситель 711, линию транспортировки 110, линию транспортировки 95, линию транспортировки 97, линию транспортировки 99, линию транспортировки 101 и линию

транспортировки 103 и этот процесс продолжали в течение приблизительно 5 суток. Затем из трубопровода отбора пара 108 брали образец жидкости в баке с катализатором 770, и согласно результатам спектроскопии  $^{119}\text{Sn}$ -ЯМР подтвердилось присутствие бис-(3-метилбутил)дибутоксиолова и трис-(3-метилбутил)бутоксиолова после пробного испытания. При расчете концентрации атомов олова в композиции, исходя из концентрации композиции бис-(3-метилбутил)дибутоксиолова в баке с катализатором после пробного испытания, согласно результатам проведенного анализа, она составила 2,23 моль/кг, что является снижением на 7,8% по сравнению с моментом до начала пробного испытания. С другой стороны, получали 5,7 моль трис-(3-метилбутил)бутоксиолова, что составляет 3,9% по отношению к числу моль атомов олова (в активном компоненте) композиции до начала пробного испытания.

Примеры 6-80.

Тетраалкилдиалкоксидистанноксаны, перечисленные в табл. 1 и 2, получали аналогичными способами, как в примерах синтеза 2, 5 и 8, и пробное испытание циркуляционного реактора непрерывного действия проводили аналогичным способом, как в примере 1, с подтверждением реакции модификации во время термоциркуляции. Из числа этих тетраалкилдиалкоксидистанноксанов некоторые имеют низкое реологическое свойство при температуре окружающей среды в момент начала реакции (приблизительно от 15 до 35°C), и в этих случаях добавляли тетралин (продукт Wako Pure Chemical Industries), простой дифениловый эфир (продукт Wako Pure Chemical Industries) или ундекан (продукт Wako Pure Chemical Industries) в качестве разбавителя для получения жидкой смеси с концентрацией разбавителя, составляющей от 10 до 35% по массе, и вводили в бак с катализатором перед проведением пробного испытания (циркуляционного процесса) с использованием циркуляционного реактора непрерывного действия, как показано на фиг. 1, аналогичным образом, как в примере 1. Масса композиции тетраалкилдиалкоксидистанноксана, введенной в бак с катализатором, составляла приблизительно 50 кг, аналогично примеру 1, независимо от использования разбавителя. Концентрацию тетраалкилдиалкоксидистанноксана в композиции определяли с помощью спектроскопии  $^{119}\text{Sn}$ -ЯМР и рассчитывали концентрацию атомов олова (в активном компоненте) композиции перед циркуляционным процессом. Из бака с катализатором брали образец раствора после циркуляционного процесса и подвергали спектроскопии  $^{119}\text{Sn}$ -ЯМР. Концентрацию атомов олова (в активном компоненте) композиции рассчитывали, исходя из концентрации тетраалкилдиалкоксидистанноксана после пробного испытания в соответствии с результатами анализа, и рассчитывали процент снижения от момента, предшествующего началу пробного испытания. Число моль алкоксида триалкилолова также определяли, исходя из результатов анализа, и рассчитывали полученное количество по отношению к числу моль атомов олова (в активном компоненте) композиции до начала пробного испытания. Процент снижения концентрации атомов олова (в активном компоненте) композиции и полученное количество алкоксида триалкилолова показаны в табл. 1 и 2.

Таблица 1

Пример	Тетраалкилдиалкоксидистанноксан		Длительность непрерывного процесса [в сутках]	Процент снижения концентрации атомов олова(в активном компоненте) [%] *1)	Полученное количество алкоксида триалкилолова [%] *2)
	R' (алкильная группа)	OR" (алкокси-группа)			
6	Изопентил	Этокси	5	8,2	4,3
7	Нонан-3-ил	2-этилгексилокси	6	11,0	5,4
8	3-пропилгексил	N-октилокси	5	7,3	3,8
9	Нонан-3-ил	2-метилпропилокси	5	11,0	5,4
10	3-пропилгексил	2-метилпропилокси	6	7,0	3,6
11	Пентан-3-ил	N-пентокси	5	10,7	5,2
12	Пентан-3-ил	метокси	6	11,2	5,8
13	3-этилгептил	2-этилгексилокси	6	6,7	3,5
14	Пентан-3-ил	Этокси	5	11,4	5,6
15	Изобутил	N-бутокси	5	6,2	3,2
16	3-пропилгексил	Этокси	5	7,6	3,6
17	Пентан-3-ил	2-метилпропилокси	5	11,3	5,5
18	2-бутилоктил	N-октилокси	6	5,0	2,4
19	3-этилгептил	Метокси	6	7,6	3,8
20	2-бутилоктил	N-пентокси	5	5,1	2,5
21	3-этилгептил	N-пентокси	6	7,4	3,7
22	Нонан-3-ил	3-метилбутилокси	6	10,4	5,4
23	3-бутилгептил	N-пентокси	6	7,4	3,8
24	3-этилгептил	N-бутокси	5	7,4	4,0
25	3-этилгептил	2-этилбутилокси	6	6,6	3,3
26	Пентан-3-ил	3-метилбутилокси	6	10,6	5,1
27	изобутил	Этокси	5	6,5	3,3
28	3-бутилнонил	3-метилбутилокси	6	7,0	3,6

29	Нонан-3-ил	Этоксид	6	11,0	5,5
30	3-пропилгексил	3-метилбутилоксид	5	7,0	3,7
31	Нонан-3-ил	N-пентоксид	6	10,6	5,6
32	Изопропил	3-метилбутилоксид	5	11,5	5,8
33	Изопентил	N-октилоксид	5	7,4	3,8
34	3-пропилгексил	2-этилбутилоксид	5	6,5	3,3
35	Изопентил	Метоксид	6	8,2	4,4
36	Изопропил	N-бутоксид	6	12,2	6,1
37	3-этилпентил	2-этилбутилоксид	6	7,2	3,5
38	Изопентил	N-бутоксид	6	7,8	4,2
39	3-пропилгексил	N-пентоксид	6	7,2	3,5
40	3-этилпентил	2-метилпропилоксид	5	7,9	3,8
41	Пентан-3-ил	N-бутоксид	5	11,3	6,0
42	3-бутилнонил	N-пентоксид	5	7,0	3,4

\*1) Процент снижения концентрации атомов олова (в активном компоненте) композиции тетраалкилдиалкоксидистанноксана определяли с помощью следующей математической формулы (4).

\*2) Полученное количество алкоксида триалкилолова определяли с помощью математической формулы (5).

[Математическая формула 4]

$$\text{(Процент снижения концентрации атомов олова (в активном компоненте))} = (S_2^0 - S_2^t) / S_2^0 \times 100\% \quad (4)$$

где "процент снижения концентрации атомов олова (в активном компоненте)" представляет собой процент снижения [%] концентрации атомов олова (в активном компоненте) композиции после циркуляционного процесса;

$S_2^0$  представляет собой концентрацию атомов олова (в активном компоненте) [моль/кг] композиции перед циркуляционным процессом;

$S_2^t$  представляет собой концентрацию атомов олова (в активном компоненте) [моль/кг] композиции после циркуляционного процесса;

$S_2^0$  и  $S_2^t$  рассчитывали, исходя из концентрации тетраалкилдиалкоксидистанноксана композиции в соответствии с определением спектроскопии  $^{119}\text{Sn}$ -ЯМР.

[Математическая формула 5]

$$\text{Полученное количество алкоксида триалкилолова} = (T/W_2^0 \times S_2^0) \times 100\% \quad (5)$$

где "полученное количество алкоксида триалкилолова" представляет собой количество алкоксида триалкилолова, полученное [%] после циркуляционного процесса;

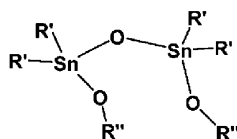
T представляет собой число моль [моль] алкоксида триалкилолова, полученного после циркуляционного процесса;

$W_2^0$  представляет собой массу [кг] композиции, введенную в бак с катализатором перед циркуляционным процессом; и

$S_2^0$  представляет собой концентрацию атомов олова (в активном компоненте) [моль/кг] композиции перед циркуляционным процессом,  $S_2^0$  рассчитывали, исходя из концентрации тетраалкилдиалкоксидистанноксана композиции в соответствии с определением спектроскопии  $^{119}\text{Sn}$ -ЯМР.

Структурная формула тетраалкилдиалкоксидистанноксана.

[Химическая формула 37]



где R' представляет собой  $\text{C}_{1-15}$ алкильную группу и R'' представляет собой  $\text{C}_{1-8}$ алкильную группу.

Таблица 2

Пример	Тетраалкилдиалкоксидистанноксан		Длительность непрерывного процесса [в сутках]	Процент снижения концентрации атомов олова(в активном компоненте) [%] *1)	Полученное количество алкоксида триалкилолова [%] *2)
	R' (алкильная группа)	OR" (алкокси-группа)			
43	Нонан-3-ил	N-октилокси	5	11,1	5,8
44	2-бутилоктил	3-метилбутилокси	5	4,7	2,4
45	3-пропилгексил	2-этилгексилокси	6	6,5	3,2
46	3-бутилнонил	N-октилокси	6	7,0	3,6
47	3-пропилгексил	N-бутокси	5	7,3	3,9
48	3-этилгептил	Этокси	6	7,8	4,2
49	Пентан-3-ил	N-октилокси	6	11,8	6,3
50	3-этилгептил	3-метилбутилокси	5	7,1	3,8
51	3-этилпентил	Этокси	5	8,5	4,5
52	3-этилпентил	3-метилбутилокси	5	7,9	4,2
53	3-бутилнонил	2-метилпропилокси	5	6,9	3,6
54	Изопентил	2-этилгексилокси	5	7,0	3,6
55	Пентан-3-ил	2-этилгексилокси	5	11,2	5,7
56	2-бутилоктил	2-этилбутилокси	5	4,4	2,3
57	Изопентил	2-метилпропилокси	5	7,5	4,0
58	3-бутилнонил	2-этилбутилокси	6	6,5	3,5
59	3-бутилгептил	Метокси	5	8,2	4,0
60	Изопентил	2-этилбутилокси	5	7,0	3,6
61	2-этилгексил	2-этилбутилокси	6	4,3	2,2
62	Изопропил	N-пентокси	5	11,7	6,1
63	Нонан-3-ил	N-бутокси	6	11,0	5,5
64	2-бутилоктил	2-этилгексилокси	6	4,4	2,2
65	3-бутилнонил	2-этилгексилокси	6	6,5	3,4
66	Пентан-3-ил	2-этилбутилокси	6	11,3	6,0
67	Нонан-3-ил	2-этилбутилокси	6	11,0	5,9
68	3-бутилгептил	3-метилбутилокси	5	7,4	3,7
69	3-этилпентил	2-этилгексилокси	5	7,2	3,9
70	Изопропил	Этокси	6	12,3	6,6
71	Изобутил	Метокси	6	6,3	3,3
72	3-этилпентил	N-октилокси	6	7,8	4,1
73	2-бутилоктил	N-бутокси	6	4,9	2,4
74	3-этилпентил	N-бутокси	5	8,2	4,3

75	2,2- диметилпропил	Этокси	6	5,8	2,9
76	3-этилгептил	N-октилокси	6	7,6	3,8
77	Изобутил	2- метилпропилокси	6	5,9	3,1
78	Нонан-3-ил	Метокси	5	11,2	5,7
79	3-этилпентил	Метокси	5	8,6	4,4
80	3-этилпентил	N-пентокси	6	8,2	4,3

\*1) Процент снижения концентрации атомов олова (в активном компоненте) композиции тетраалкилдиалкоксидистанноксана определяли с помощью следующей математической формулы (4).

\*2) Полученное количество алкоксида триалкилолова определяли с помощью математической формулы (5).

[Математическая формула 6]

$$\text{Процент снижения концентрации атомов олова (в активном компоненте)} = (S_2^0 - S_2^1) / S_2^0 \times 100\% \quad (4)$$

где "процент снижения концентрации атомов олова (в активном компоненте)" представляет собой процент снижения [%] концентрации атомов олова (в активном компоненте) композиции после циркуляционного процесса;

$S_2^0$  представляет собой концентрацию атомов олова (в активном компоненте) [моль/кг] композиции перед циркуляционным процессом;

$S_2^1$  представляет собой концентрацию атомов олова (в активном компоненте) [моль/кг] композиции после циркуляционного процесса;

$S_2^0$  и  $S_2^1$  рассчитывали, исходя из концентрации тетраалкилдиалкоксидистанноксана композиции в соответствии с определением спектроскопии  $^{119}\text{Sn}$ -ЯМР.

[Математическая формула 7]

$$\text{Полученное количество алкоксида триалкилолова} = T / (W_2^0 \times S_2^0) \times 100\% \quad (5)$$

где "полученное количество алкоксида триалкилолова" представляет собой количество алкоксида триалкилолова, полученное [%] после циркуляционного процесса;

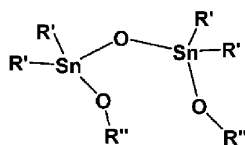
T представляет собой число моль [моль] алкоксида триалкилолова, полученного после циркуляционного процесса;

$W_2^0$  представляет собой массу [кг] композиции, введенную в бак с катализатором перед циркуляционным процессом; и

$S_2^0$  представляет собой концентрацию атомов олова (в активном компоненте) [моль/кг] композиции перед циркуляционным процессом,  $S_2^0$  рассчитывали, исходя из концентрации тетраалкилдиалкоксидистанноксана композиции в соответствии с определением спектроскопии  $^{119}\text{Sn}$ -ЯМР.

Структурная формула тетраалкилдиалкоксидистанноксана.

[Химическая формула 38]



где R' представляет собой  $C_{1-15}$ алкильную группу и R'' представляет собой  $C_{1-8}$ алкильную группу.

Примеры 81-142.

Диалкоксиды диалкилолова, перечисленные в табл. 3 и 4, получали аналогичными способами, как в примерах синтеза 1, 4 и 7, и пробное испытание циркуляционного реактора непрерывного действия проводили аналогичным способом, как в примере 2, с подтверждением реакции модификации во время термоциркуляции. После введения приблизительно 45 кг диалкоксида диалкилолова в бак с катализатором для пробного испытания (циркуляционного процесса) использовали циркуляционный реактор непрерывного действия, как показано на фиг. 2, аналогичным образом, как в примере 2. После циркуляционного процесса из бака с катализатором брали образец раствора и подвергали его спектроскопии  $^{119}\text{Sn}$ -ЯМР. Концентрацию атомов олова (в активном компоненте) композиции рассчитывали, исходя из концентрации диалкоксида диалкилолова после пробного испытания в соответствии с результатами анализа, и рассчитывали процент снижения от момента, предшествующего началу пробного испытания. Число моль алкоксида триалкилолова также определяли, исходя из результатов анализа, и рассчитывали полученное количество по отношению к числу моль атомов олова (в активном компоненте) композиции до начала пробного испытания. Процент снижения концентрации атомов олова (в активном компоненте) компози-

ций и полученное количество алкоксида триалкилолова показаны в табл. 3 и 4.

Таблица 3

Пример	Диалкоксид диалкилолова		Длительность непрерывного процесса [в сутках]	Процент снижения концентрации атомов олова(в активном компоненте) [%] *3)	Полученное количество алкоксида триалкилолова [%] *4)
	R' (алкильная группа)	OR'' (алкокси-группа)			
81	3-этилпентил	3-метилбутилокси	5	6,5	3,3
82	3-этилгептил	3-метилбутилокси	5	6,1	3,0
83	2-бутилоктил	Этокси	5	4,2	2,2
84	3-пропилгексил	2-этилбутилокси	5	5,7	2,8
85	3-бутилнонил	Метокси	5	7,2	3,5
86	3-этилгептил	N-пентокси	5	6,8	3,6
87	Пентан-3-ил	2-этилбутилокси	6	11,1	6,0
88	3-Пропилгексил	N-гексилокси	5	6,4	3,3
89	Пентан-3-ил	3-метилбутилокси	6	10,5	5,1
90	3-бутилнонил	N-пентокси	5	6,7	3,4
91	Изопропил	Этокси	5	12,0	6,4
92	3-этилпентил	Метокси	5	7,2	3,8
93	Изобутил	N-бутокси	5	5,0	2,6
94	3-этилпентил	Этокси	6	7,4	3,7
95	Пентан-3-ил	N-бутокси	6	11,0	5,8
96	3-бутилнонил	N-гексилокси	5	6,2	3,0
97	2-Бутилоктил	N-пентокси	6	4,1	2,1
98	Нонан-3-ил	2-этилбутилокси	5	11,0	5,8
99	2-гексилдецил	2-этилгексилокси	5	3,9	2,0



100	Нонан-3-ил	2-этилгексилокси	6	11,0	5,8
101	3-этилгептил	Метокси	6	7,0	3,4
102	Изобутил	N-пентокси	5	5,1	2,5
103	3-бутилнонил	2-этилгексилокси	6	6,2	3,2
104	Пентан-3-ил	Метокси	6	11,2	5,4
105	Пентан-3-ил	N-пентокси	6	11,1	5,8
106	3-этилгептил	2-этилгексилокси	5	6,2	3,2
107	2-гексилдецил	N-гексилокси	6	4,1	2,0
108	Изопропил	N-гексилокси	5	12,9	6,4
109	Нонан-3-ил	N-бутокси	6	10,7	5,7
110	2-бутилоктил	3-метилбутилокси	5	3,7	1,9
111	Изопентил	2-этилгексилокси	6	6,3	3,2
112	3-бутилгептил	N-бутокси	5	6,7	3,5

\*3) Процент снижения концентрации атомов олова (в активном компоненте) композиции диалкоксида диалкилолова определяли с помощью следующей математической формулы (6).

\*4) Полученное количество алкоксида триалкилолова определяли с помощью математической формулы (7).

[Математическая формула 8]

Процент снижения концентрации атомов олова (в активном компоненте) =  $(S_1^0 - S_1^t) / S_1^0 \times 100\%$  (6)

где "процент снижения концентрации атомов олова (в активном компоненте)" представляет собой процент снижения [%] концентрации атомов олова (в активном компоненте) композиции после циркуляционного процесса;

$S_1^0$  представляет собой концентрацию атомов олова (в активном компоненте) [моль/кг] композиции перед циркуляционным процессом;

$S_1^t$  представляет собой концентрацию атомов олова (в активном компоненте) [моль/кг] композиции после циркуляционного процесса;

$S_1^0$  и  $S_1^t$  рассчитывали, исходя из концентрации диалкоксида диалкилолова композиции в соответствии с определением спектроскопии  $^{119}\text{Sn}$ -ЯМР.

[Математическая формула 9]

Полученное количество алкоксида триалкилолова =  $T / (W_1^0 \times S_1^0) \times 100\%$  (7)

где "полученное количество алкоксида триалкилолова" представляет собой количество алкоксида триалкилолова, полученное [%] после циркуляционного процесса;

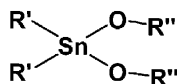
T представляет собой число моль [моль] алкоксида триалкилолова, полученного после циркуляционного процесса;

$W_1^0$  представляет собой массу [кг] композиции, введенную в бак с катализатором перед циркуляционным процессом; и

$S_1^0$  представляет собой концентрацию атомов олова (в активном компоненте) [моль/кг] композиции перед циркуляционным процессом,  $S_1^0$  рассчитывали, исходя из концентрации диалкоксида диалкилолова композиции в соответствии с определением спектроскопии  $^{119}\text{Sn}$ -ЯМР.

Структурная формула диалкоксида диалкилолова.

[Химическая формула 39]



где R' представляет собой C<sub>1-15</sub>алкильную группу и R'' представляет собой C<sub>1-8</sub>алкильную группу.

Таблица 4

Пример	Диалкоксид диалкилолова		Длительность непрерывного процесса [в сутках]	Процент снижения концентрации атомов олова (в активном компоненте) [%] *3)	Полученное количество алкоксида триалкилолова [%] *4)
	R' (алкильная группа)	OR'' (алкокси-группа)			
113	3-этилпентил	N-бутоксид	5	6,9	3,6
114	3-пропилгексил	N-бутоксид	5	6,5	3,4
115	3-	2-этилгексилокси	6	6,0	2,9
	пропилгексил				
116	Пентан-3-ил	Этоксид	5	11,1	6,0
117	3-пропилгексил	Метоксид	5	6,7	3,5
118	3-этилгептил	2-этилбутилокси	5	5,7	2,8
119	3-бутилнонил	2-этилбутилокси	5	5,7	3,1
120	Изопентил	2-этилбутилокси	6	6,0	3,0
121	2-гексилдецил	N-бутоксид	5	4,2	2,1
122	Нонан-3-ил	3-метилбутилокси	6	10,1	5,2
123	Изобутил	3-метилбутилокси	6	4,8	2,4
124	3-пропилгексил	N-пентоксид	6	6,8	3,4
125	3-пропилгексил	3-метилбутилокси	5	6,1	3,2
126	3-этилпентил	N-пентоксид	5	7,2	3,7
127	Изопентил	N-гексилокси	5	6,4	3,4
128	Нонан-3-ил	N-пентоксид	5	11,0	5,4
129	3-пропилгексил	Этоксид	5	6,9	3,7
130	2-бутилоктил	Метоксид	5	4,3	2,2
131	изопентил	Этоксид	6	7,3	3,8
132	3-этилгептил	Этоксид	5	7,0	3,6
133	Нонан-3-ил	Этоксид	6	10,8	5,6
134	изопропил	Метоксид	5	12,0	6,5
135	Нонан-3-ил	N-гексилокси	5	11,3	5,7
136	3-этилгептил	N-гексилокси	5	6,3	3,2
137	2-гексилдецил	2-этилбутилокси	5	3,7	1,8
138	3-бутилнонил	N-бутоксид	6	6,6	3,3
139	3-бутилнонил	3-метилбутилокси	6	6,2	3,2
140	Пентан-3-ил	2-этилгексилокси	5	11,3	5,8
141	Изопентил	Метоксид	6	7,5	3,8
142	Изопропил	2-этилбутилокси	6	12,0	6,1

\*3) Процент снижения концентрации атомов олова (в активном компоненте) композиции диалкоксида диалкилолова определяли с помощью следующей математической формулы (6).

\*4) Полученное количество алкоксида триалкилолова определяли с помощью математической формулы (7).

[Математическая формула 10]

Процент снижения концентрации атомов олова (в активном компоненте) =  $(S_1^0 - S_1^t) / S_1^0 \times 100\%$  (6)

где "процент снижения концентрации атомов олова (в активном компоненте)" представляет собой процент снижения [%] концентрации атомов олова (в активном компоненте) композиции после циркуляционного процесса;

$S_1^0$  представляет собой концентрацию атомов олова (в активном компоненте) [моль/кг] композиции перед циркуляционным процессом;

$S_1^t$  представляет собой концентрацию атомов олова (в активном компоненте) [моль/кг] композиции после циркуляционного процесса;

$S_1^0$  и  $S_1^t$  рассчитывали, исходя из концентрации диалкоксида диалкилолова композиции в соответствии с определением спектроскопии  $^{119}\text{Sn}$ -ЯМР.

[Математическая формула 11]

$$\text{Полученное количество алкоксида триалкилолова} = T / (W_1^0 \times S_1^0) \times 100\% \quad (7)$$

где "полученное количество алкоксида триалкилолова" представляет собой количество алкоксида триалкилолова, полученное [%] после циркуляционного процесса;

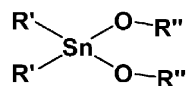
T представляет собой число моль [моль] алкоксида триалкилолова, полученного после циркуляционного процесса;

$W_1^0$  представляет собой массу [кг] композиции, введенную в бак с катализатором перед циркуляционным процессом; и

$S_1^0$  представляет собой концентрацию атомов олова (в активном компоненте) [моль/кг] композиции перед циркуляционным процессом,  $S_1^0$  рассчитывали, исходя из концентрации диалкоксида диалкилолова композиции в соответствии с определением спектроскопии  $^{119}\text{Sn}$ -ЯМР.

Структурная формула диалкоксида диалкилолова.

[Химическая формула 40]



где R' представляет собой  $\text{C}_{1-15}$ алкильную группу и R'' представляет собой  $\text{C}_{1-8}$ алкильную группу.

Примеры 143-194.

Получали композиции, содержащие диалкоксиды диалкилолова и тетраалкилдиалкоксидистанноксаны, перечисленные в табл. 5 и 6, полученные аналогичными способами, как в примерах синтеза 1, 2, 4, 5, 7 и 8, и пробное испытание циркуляционного реактора непрерывного действия проводили аналогичным способом, как в примере 3, с подтверждением реакции модификации во время термоциркуляции. Их получали таким образом, чтобы молярное соотношение атомов олова диалкоксида диалкилолова и тетраалкилдиалкоксидистанноксана по отношению к числу моль атомов олова (в активном компоненте) композиций, содержащих диалкоксиды диалкилолова и тетраалкилдиалкоксидистанноксаны со структурами, перечисленными в табл. 5 и 6, составило 65:35, и приблизительно 60 кг вводили в бак с катализатором. Концентрация атомов олова (в активном компоненте) каждой композиции определяли с помощью математической формулы (3). Пробное испытание (циркуляционный процесс) композиции проводили аналогичным образом, как в примере 3, с использованием циркуляционного реактора непрерывного действия, как показано на фиг. 3. Из бака с катализатором брали образец раствора после циркуляционного процесса и подвергали спектроскопии  $^{119}\text{Sn}$ -ЯМР. Концентрацию атомов олова (в активном компоненте) композиции рассчитывали, исходя из концентрации тетраалкилдиалкоксидистанноксана и концентрации диалкоксида диалкилолова композиции после пробного испытания в соответствии с результатами анализа, и рассчитывали процент снижения от момента, предшествующего началу пробного испытания. Число моль алкоксида триалкилолова, полученного после пробного испытания, также определяли, исходя из результатов анализа, и рассчитывали полученное количество по отношению к числу моль атомов олова (в активном компоненте) композиции до начала пробного испытания. Процент снижения концентрации атомов олова (в активном компоненте) композиций и полученное количество алкоксида триалкилолова показаны в табл. 5 и 6.

Таблица 5

Пример	Алкоксид алкилолова		Длительность непрерывного процесса [в сутках]	Процент снижения концентрации атомов олова (в активном компоненте) [%] *5)	Полученное количество алкоксида триалкилолова [%] *6)
	R' (алкильная группа)	OR'' (алкокси-группа)			
143	3-бутилнонил	N-пентокси	6	6,4	3,3
144	Нонан-3-ил	Этокси	6	10,4	5,5
145	Изопропил	Метокси	5	11,9	6,2
146	3-этилпентил	N-гексилокси	5	6,2	3,3
147	Изопентил	N-гексилокси	6	6,5	3,2
148	Изопропил	Этокси	6	11,7	5,9
149	Пентан-3-ил	N-пентокси	5	10,5	5,1
150	3-этилгептил	Этокси	6	6,5	3,3
151	Пентан-3-ил	2-метилпропилокси	5	10,8	5,5
152	Изобутил	3-метилбутилокси	5	4,6	2,5
153	Изопентил	Метокси	5	7,2	3,8
154	2-бутилоктил	2-метилпропилокси	6	3,6	1,8
155	Изопропил	3-метилбутилокси	5	11,0	5,5
156	3-этилпентил	2-этилбутилокси	5	5,9	3,2
157	Изобутил	N-пентокси	5	4,9	2,6
158	3-бутилнонил	3-метилбутилокси	5	6,0	3,0
159	Нонан-3-ил	2-метилпропилокси	5	10,5	5,4
160	Пентан-3-ил	3-метилбутилокси	6	10,3	5,0
161	Нонан-3-ил	3-метилбутилокси	6	10,0	5,4
162	3-этилпентил	N-пентокси	6	6,8	3,7
163	Нонан-3-ил	Метокси	6	10,8	5,2
164	Изобутил	Метокси	6	5,5	2,8
165	2-бутилоктил	2-этилбутилокси	6	3,3	1,7
166	3-этилгептил	2-этилбутилокси	5	5,6	2,9
167	Изопентил	2-метилпропилокси	5	6,2	3,3
168	Изопропил	N-гексилокси	5	11,9	6,2
169	Изопропил	N-пентокси	5	11,6	6,2
170	3-бутилнонил	N-гексилокси	5	6,1	2,9

\*5) Процент снижения концентрации атомов олова (в активном компоненте) каждой композиции алкоксида алкилолова определяли с помощью математической формулы (8).

\*6) Полученное количество алкоксида триалкилолова определяли с помощью математической формулы (9).

## [Математическая формула 12]

Процент снижения концентрации атомов олова (в активном компоненте) =  $(S_3^0 - S_3^t) / S_3^0 \times 100\%$  (8)

где "процент снижения концентрации атомов олова (в активном компоненте)" представляет собой процент снижения [%] концентрации атомов олова (в активном компоненте) композиции после циркуляционного процесса;

$S_3^0$  представляет собой концентрацию атомов олова (в активном компоненте) [моль/кг] композиции перед циркуляционным процессом;

$S_3^t$  представляет собой концентрацию атомов олова (в активном компоненте) [моль/кг] композиции после циркуляционного процесса;

$S_3^0$  и  $S_3^t$  рассчитывали, исходя из концентрации тетраалкилдиалкоксидистанноксана и концентрации диалкоксида диалкилолова композиции в соответствии с определением спектроскопии  $^{119}\text{Sn}$ -ЯМР.

## [Математическая формула 13]

Полученное количество алкоксида триалкилолова =  $T / (W_3^0 \times S_3^0) \times 100\%$  (9)

где "полученное количество алкоксида триалкилолова" представляет собой количество алкоксида триалкилолова, полученное [%] после циркуляционного процесса;

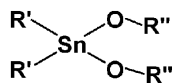
T представляет собой число моль [моль] алкоксида триалкилолова, полученного после циркуляционного процесса;

$W_3^0$  представляет собой массу [кг] композиции, введенную в бак с катализатором перед циркуляционным процессом; и

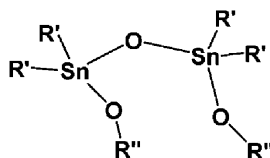
$S_3^0$  представляет собой концентрацию атомов олова (в активном компоненте) [моль/кг] композиции перед циркуляционным процессом,  $S_3^0$  рассчитывали, исходя из концентрации тетраалкилдиалкоксидистанноксана и концентрации диалкоксида диалкилолова композиции в соответствии с определением спектроскопии  $^{119}\text{Sn}$ -ЯМР.

Структурные формулы тетраалкилдиалкоксидистанноксана и диалкоксида диалкилолова в композиции алкоксида алкилолова.

## [Химическая формула 41]



## [Химическая формула 42]



где R' представляет собой C<sub>1-15</sub>алкильную группу и R'' представляет собой C<sub>1-8</sub>алкильную группу.

Таблица 6

Пример	Алкоксид алкилолова		Длительность непрерывного процесса [в сутках]	Процент снижения концентрации атомов олова (в активном компоненте) [%] *5)	Полученное количество алкоксида триалкилолова [%] *6)
	R' (алкильная группа)	OR'' (алкокси-группа)			
171	Изопропил	2-метилпропилокси	6	11,7	5,6
172	Пентан-3-ил	2-этилбутилокси	6	11,0	5,6

173	Нонан-3-ил	N-гексилокси	6	11,5	6,1
174	2-бутилоктил	3-метилбутилокси	6	3,6	1,8
175	Изопентил	Этокси	6	6,8	3,3
176	3-бутилнонил	2-этилбутилокси	5	5,6	2,9
177	Изопентил	2-этилбутилокси	5	5,8	2,8
178	3-бутилнонил	2-метилпропилокси	6	6,0	3,0
179	Нонан-3-ил	N-Пентокси	5	10,1	5,4
180	3-этилпентил	3-метилбутилокси	5	6,3	3,3
181	3-этилгептил	2-метилпропилокси	6	5,9	2,8
182	3-этилгептил	Метокси	5	7,0	3,5
183	3-этилгептил	N-гексилокси	6	5,9	3,1
184	Нонан-3-ил	2-этилбутилокси	6	10,9	5,4
185	Изобутил	Этокси	5	5,0	2,5
186	3-пропилгексил	N-пентокси	5	6,1	3,2
187	Изопропил	2-этилбутилокси	5	11,7	5,7
188	2-бутилоктил	N-Гексилокси	5	3,6	1,9
189	3-пропилгексил	2-этилбутилокси	6	5,3	2,6
190	Изобутил	2-метилпропилокси	5	4,6	2,3
191	3-этилпентил	2-метилпропилокси	6	6,4	3,4
192	3-этилгептил	N-пентокси	5	6,5	3,2
193	3-этилгептил	3-метилбутилокси	5	5,9	2,9
194	3-пропилгексил	3-метилбутилокси	6	5,8	2,9

\*5) Процент снижения концентрации атомов олова (в активном компоненте) каждой композиции алкоксида алкилолова определяли с помощью математической формулы (8).

\*6) Полученное количество алкоксида триалкилолова определяли с помощью математической формулы (9).

[Математическая формула 14]

$$\text{Процент снижения концентрации атомов олова (в активном компоненте)} = (S_3^0 - S_3^t) / S_3^0 \times 100\% \quad (8)$$

где "процент снижения концентрации атомов олова (в активном компоненте)" представляет собой процент снижения [%] концентрации атомов олова (в активном компоненте) композиции после циркуляционного процесса;

$S_3^0$  представляет собой концентрацию атомов олова (в активном компоненте) [моль/кг] композиции перед циркуляционным процессом;

$S_3^t$  представляет собой концентрацию атомов олова (в активном компоненте) [моль/кг] композиции после циркуляционного процесса;

$S_3^0$  и  $S_3^t$  рассчитывали, исходя из концентрации тетраалкилдиалкоксидистанноксана и концентрации диалкоксида диалкилолова композиции в соответствии с определением спектроскопии  $^{119}\text{Sn}$ -ЯМР.

[Математическая формула 15]

$$\text{Полученное количество алкоксида триалкилолова} = T / (W_3^0 \times S_3^0) \times 100\% \quad (9)$$

где "полученное количество алкоксида триалкилолова" представляет количество алкоксида триал-

килолова, полученное [%] после циркуляционного процесса;

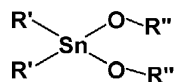
T представляет собой число моль [моль] алкоксида триалкилолова, полученного после циркуляционного процесса;

$W_3^0$  представляет собой массу [кг] композиции, введенную в бак с катализатором перед циркуляционным процессом; и

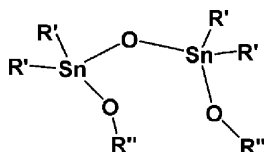
$S_3^0$  представляет собой концентрацию атомов олова (в активном компоненте) [моль/кг] композиции перед циркуляционным процессом,  $S_3^0$  рассчитывали, исходя из концентрации тетраалкилдиалкоксидистанноксана и концентрации диалкоксида диалкилолова композиции в соответствии с определением спектроскопии  $^{119}\text{Sn}$ -ЯМР.

Структурные формулы тетраалкилдиалкоксидистанноксана и диалкоксида диалкилолова в композиции алкоксида алкилолова.

[Химическая формула 43]



[Химическая формула 44]



где R' представляет собой  $C_{1-15}$ алкильную группу и R'' представляет собой  $C_{1-8}$ алкильную группу.

Примеры 195-257.

Композиции, содержащие диалкоксиды диалкилолова тетраалкилдиалкоксидистанноксаны и алкоксиды триалкилолова, перечисленные в табл. 7 и 8, полученные аналогичными способами, как в примерах синтеза 3 и 6, использовали для пробного испытания (циркуляционного процесса) в циркуляционном реакторе непрерывного действия, как показано на фиг. 4, аналогичным способом, как в примере 4, с подтверждением реакции модификации во время термоциркуляции. Приблизительно 60 кг каждой композиции, содержащей диалкоксид диалкилолова, тетраалкилдиалкоксидистанноксан и алкоксид триалкилолова, полученной аналогичными способами, как в примерах синтеза 3 и 6, вводили в бак с катализатором и вращали в циркуляционном реакторе непрерывного действия. Из бака с катализатором брали образец раствора после циркуляционного процесса и подвергали спектроскопии  $^{119}\text{Sn}$ -ЯМР. Концентрацию атомов олова (в активном компоненте) композиции рассчитывали, исходя из концентрации тетраалкилдиалкоксидистанноксана и концентрации диалкоксида диалкилолова композиции после пробного испытания в соответствии с результатами анализа, и рассчитывали процент снижения от момента, предшествующего началу пробного испытания. Число моль алкоксида триалкилолова также определяли, исходя из результатов анализа и рассчитывали полученное количество по отношению к числу моль атомов олова (в активном компоненте) композиции до начала пробного испытания. Процент снижения концентрации атомов олова (в активном компоненте) композиций и полученное количество алкоксида триалкилолова показаны в табл. 7 и 8.

Таблица 7

Пример	Алкоксид алкилолова		Концентрация алкоксида триалкил олова [в моль-процентах]	Длительность непрерывного процесса [в сутках]	Процент снижения концентрации атомов олова (в активном компоненте) [%] *7)	Полученное количество алкоксида триалкил олова [%] *8)
	R' (алкильная группа)	OR'' (алкокси- группа)				
195	Изопропил	2-метилпропилокси	9	6	11,5	6,1
196	2-бутилоктил	N-пентокси	8	6	3,4	1,8
197	Нонан-3-ил	2-этилгексилокси	8	6	10,7	5,7
198	3-этилгептил	Этокси	9	5	6,0	3, <sup>0</sup>
199	3-бутилнонил	N-бутокси	10	5	5,7	2,9
200	Изобутил	N-бутокси	10	6	4,5	2,3
201	Нонан-3-ил	N-гексилокси	10	6	11,1	5,7
202	3-этилпентил	2-этилбутилокси	7	5	5,3	2,8
203	изопентил	N-бутокси	8	5	6,0	3,0
204	3-бутилгептил	N-пентокси	7	5	5,7	2,9
205	3-бутилгептил	3-метилбутилокси	9	5	5,5	2,9
206	Изопропил	Этокси	7	6	11,8	6,0
207	3-пропилгексил	2-этилгексилокси	10	5	5,4	2,9
208	3-бутилнонил	N-гексилокси	10	5	5,6	2,8
209	3-этилгептил	2-этилбутилокси	8	6	5,0	2,6
210	Нонан-3-ил	N-пентокси	9	5	10,1	4,8
211	Пентан-3-ил	3-метилбутилокси	9	6	10,2	5,5
212	Пентан-3-ил	Этокси	9	5	10,8	5,6
213	Пентан-3-ил	N-бутокси	8	5	10,6	5,1
214	Пентан-3-ил	2-метилпропилокси	9	5	10,7	5,4
215	3-пропилгексил	2-метилпропилокси	7	6	5,4	2,7
216	Пентан-3-ил	2-этилгексилокси	9	6	10,7	5,7
217	Изопентил	Этокси	7	5	6,4	3,3
218	Изобутил	2-этилгексилокси	7	5	4,3	2,3
219	Нонан-3-ил	2-метилпропилокси	9	5	10,3	5,1
220	3-бутилнонил	2-метилпропилокси	9	5	5,4	2,8
221	2-гексилдецил	N-бутокси	7	5	3,6	1,9
222	Изобутил	Этокси	6	5	4,7	2,3
223	Изопентил	2-метилпропилокси	9	6	5,7	2,8
224	3-пропилгексил	3-метилбутилокси	8	5	5,3	2,8
225	3-пропилгексил	N-гексилокси	6	6	5,6	2,8

\*7) Процент снижения концентрации атомов олова (в активном компоненте) каждой композиции алкоксида алкилолова определяли с помощью математической формулы (8).

\*8) Полученное количество алкоксида триалкилолова определяли с помощью математической формулы (9).



[Математическая формула 16]

$$\text{Процент снижения концентрации атомов олова (в активном компоненте)} = (S_3^0 - S_3^t) / S_3^0 \times 100\% \quad (8)$$

где "процент снижения концентрации атомов олова (в активном компоненте)" представляет собой процент снижения [%] концентрации атомов олова (в активном компоненте) композиции после циркуляционного процесса;

$S_3^0$  представляет собой концентрацию атомов олова (в активном компоненте) [моль/кг] композиции перед циркуляционным процессом;

$S_3^t$  представляет собой концентрацию атомов олова (в активном компоненте) [моль/кг] композиции после циркуляционного процесса;

$S_3^0$  и  $S_3^t$  рассчитывали, исходя из концентрации тетраалкилдиалкоксидистанноксана и концентрации диалкоксида диалкилолова композиции в соответствии с определением спектроскопии  $^{119}\text{Sn}$ -ЯМР.

[Математическая формула 17]

$$\text{Полученное количество алкоксида триалкилолова} = T / (W_3^0 \times S_3^0) \times 100\% \quad (9)$$

где "полученное количество алкоксида триалкилолова" представляет собой количество алкоксида триалкилолова, полученное [%] после циркуляционного процесса;

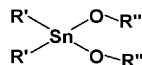
T представляет собой число моль [моль] алкоксида триалкилолова полученного после циркуляционного процесса;

$W_3^0$  представляет собой массу [кг] композиции алкоксида алкилолова, введенную в бак с катализатором перед циркуляционным процессом; и

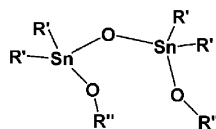
$S_3^0$  представляет собой концентрацию атомов олова (в активном компоненте) [моль/кг] композиции перед циркуляционным процессом,  $S_3^0$  рассчитывали, исходя из концентрации тетраалкилдиалкоксидистанноксана и концентрации диалкоксида диалкилолова композиции в соответствии с определением спектроскопии  $^{119}\text{Sn}$ -ЯМР.

Структурные формулы тетраалкилдиалкоксидистанноксана и диалкоксида диалкилолова в композиции алкоксида алкилолова.

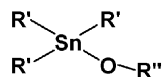
[Химическая формула 45]



[Химическая формула 46]



[Химическая формула 47]



где R' представляет собой C<sub>1-15</sub>алкильную группу и R'' представляет собой C<sub>1-8</sub>алкильную группу.

Таблица 8

Пример	Алкоксид алкилолова		Концентрация алкоксида триалкил олова [в моль-процентах]	Длительность непрерывного процесса [в сутках]	Процент снижения концентрации атомов олова (в активном компоненте) [%] *7)	Полученное количество алкоксида триалкил олова [%] *8)
	R' (алкильная группа)	OR'' (алкокси- группа)				
226	2-бутилоктил	2-этилбутилокси	7	6	3,1	1,5
227	Изопентил	N-гексилокси	6	6	5,6	2,7
228	3-этилгептил	N-пентокси	9	6	5,6	2,9
229	Изопропил	3-метилбутилокси	8	6	11,1	5,4
230	2-бутилоктил	3-метилбутилокси	9	6	3,3	1,7
231	3-этилгептил	N-гексилокси	9	6	5,4	2,8
232	2-гексилдецил	2-метилпропилокси	9	6	3,4	1,7
233	Изопропил	N-бутокси	10	6	11,3	5,9
234	3-этилпентил	N-гексилокси	9	6	5,8	2,9
235	3-этилгептил	N-бутокси	8	6	5,6	2,8
236	Нонан-3-ил	2-этилбутилокси	8	5	10,7	5,4
237	3-этилпентил	2-метилпропилокси	10	6	5,6	2,7
238	3-пропилгексил	2-этилбутилокси	7	6	5,0	2,4
239	3-этилпентил	N-бутокси	8	5	5,9	2,9
240	Нонан-3-ил	3-метилбутилокси	10	6	9,9	4,9
241	3-бутилнонил	2-этилбутилокси	7	5	5,1	2,6
242	Изопентил	2-этилбутилокси	10	5	5,2	2,6
243	3-этилпентил	2-этилгексилокси	9	5	5,6	2,8
244	3-этилпентил	Этоксн	7	5	6,4	3,1
245	Нонан-3-ил	N-Бутокси	7	6	10,2	5,4
246	3-бутилнонил	2-этилгексилокси	9	5	5,4	2,8
247	3-этилгептил	2-метилпропилокси	7	5	5,4	2,8
248	3-пропилгексил	N-пентокси	10	5	5,5	2,7
249	Пентан-3-ил	N-гексилокси	9	5	11,4	5,6
250	3-этилгептил	3-метилбутилокси	8	6	5,4	2,8
251	Пентан-3-ил	2-этилбутилокси	7	6	10,8	5,2
252	Изобутил	2-этилбутилокси	8	6	4,0	2,0
253	Изопентил	2-этилгексилокси	8	6	5,5	2,9
254	3-пропилгексил	Этоксн	6	6	5,8	2,8
255	3-пропилгексил	N-бутокси	9	5	5,6	2,8
256	2-бутилоктил	N-гексилокси	10	5	3,2	1,6
257	Изопропил	N-пентокси	9	6	11,4	6,0

\*7) Процент снижения концентрации атомов олова (в активном компоненте) каждой композиции алкоксида алкилолова определяли с помощью математической формулы (8).

\*8) Полученное количество алкоксида триалкилолова определяли с помощью математической формулы (9).

[Математическая формула 18]

$$\text{Процент снижения концентрации атомов олова (в активном компоненте)} = (S_3^0 - S_3^t) / S_3^0 \times 100\% \quad (8)$$

где "процент снижения концентрации атомов олова (в активном компоненте)" представляет собой процент снижения [%] концентрациям атомов олова (в активном компоненте) композиции после циркуляционного процесса;

$S_3^0$  представляет собой концентрацию атомов олова (в активном компоненте) [моль/кг] композиции перед циркуляционным процессом;

$S_3^t$  представляет собой концентрацию атомов олова (в активном компоненте) [моль/кг] композиции после циркуляционного процесса;

$S_3^0$  и  $S_3^t$  рассчитывали, исходя из концентрации тетраалкилдиалкоксидистанноксана и концентрации диалкоксида диалкилолова композиции в соответствии с определением спектроскопии  $^{119}\text{Sn}$ -ЯМР.

[Математическая формула 19]

$$\text{Полученное количество алкоксида триалкилолова} = T / (W_3^0 \times S_3^0) \times 100 \quad (9)$$

где "полученное количество алкоксида триалкилолова представляет собой количество алкоксида триалкилолова, полученное [%] после циркуляционного процесса;

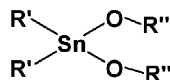
T представляет собой число моль [моль] алкоксида триалкилолова, полученного после циркуляционного процесса;

$W_3^0$  представляет собой массу [кг] композиции алкоксида алкилолова, введенной в бак с катализатором перед циркуляционным процессом; и

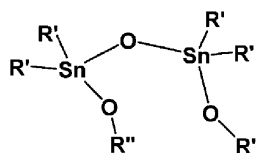
$S_3^0$  представляет собой концентрацию атомов олова (в активном компоненте) [моль/кг] композиции перед циркуляционным процессом,  $S_3^0$  рассчитывали, исходя из концентрации тетраалкилдиалкоксидистанноксана и концентрации диалкоксида диалкилолова композиции в соответствии с определением спектроскопии  $^{119}\text{Sn}$ -ЯМР.

Структурные формулы тетраалкилдиалкоксидистанноксана, диалкоксида диалкилолова и алкоксида триалкилолова в композиции алкоксида алкилолова.

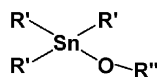
[Химическая формула 48]



[Химическая формула 49]



[Химическая формула 50]



где R' представляет собой C<sub>1-15</sub>алкильную группу и R'' представляет собой C<sub>1-8</sub>алкильную группу.

Примеры 258-273.

Диалкоксиды диалкилолова и тетраалкилдиалкоксидистанноксаны со структурами, перечисленными в табл.9, получали такими же способами, как указано в примерах синтеза 1, 2, 4, 5, 7 и 8, и получали композиции, содержащие диалкоксиды диалкилолова и тетраалкилдиалкоксидистанноксаны. Композиции, содержащие диалкоксиды диалкилолова и тетраалкилдиалкоксидистанноксаны, получали таким образом, чтобы молярное соотношение атомов олова диалкоксидов диалкилолова и тетраалкилдиалкоксидистанноксанов по отношению к числу моль атомов олова (в активном компоненте) композиции составляло от 5:95 до 50:50. Композиции использовали аналогичным способом, как в примере 5, для пробного испытания (циркуляционного процесса) в циркуляционном реакторе непрерывного действия, как показано на фиг. 5, с подтверждением реакции модификации во время термоциркуляции. Приблизительно 60 кг каждой полученной композиции вводили в бак с катализатором и вращали в циркуляционном реакторе непрерывного действия, как показано на фиг. 5, аналогичным способом. Из бака с катализатором отбирали образец композиции алкоксида алкилолова после циркуляционного процесса и подрегали спектроскопии  $^{119}\text{Sn}$ -ЯМР. Концентрацию атомов олова (в активном компоненте) композиции рассчитывали, исходя из концентрации тетраалкилдиалкоксидистанноксана и концентрации диалкоксида диалкилолова композиции после пробного испытания в соответствии с результатами анализа, и рассчитывали процент снижения от момента, предшествующего началу пробного испытания. Число моль алкоксида триалкилолова также определяли, исходя из результатов анализа и рассчитывали полученное количество по отношению к числу моль атомов олова (в активном компоненте) композиции до начала пробного испытания. Процент снижения концентрации атомов олова (в активном компоненте) композиций и полу-

ченное количество алкоксида триалкилолова показаны в табл. 9.

Таблица 9

Пример	Алкоксид алкилолова		Молярное соотношение атомов олова, диалкоксида диалкилолова и тетраалкилдиалкоксидистанноксана	Длительность непрерывного процесса [в сутках]	Процент снижения концентрации атомов олова композиции алкоксида алкилолова [%] *9)	Полученное количество алкоксида триалкилолова [%] *10)
	R' (алкильная группа)	OR'' (алкокси- группа)				
258	Изопропил	3-метилбутилокси	5:95	5	13,4	6,6
259	Изопентил	3-метилбутилокси	5:95	5	7,5	3,8
260	Изопропил	3-метилбутилокси	15:85	5	12,8	6,3
261	Изопентил	3-метилбутилокси	15:85	5	7,3	3,5
262	Изопропил	3-метилбутилокси	35:65	5	12,0	5,9
263	Изопентил	3-метилбутилокси	35:65	5	7,0	3,8
264	Изопропил	3-метилбутилокси	50:50	6	11,2	5,7
265	Изопентил	3-метилбутилокси	50:50	6	6,8	3,6
266	Изопропил	N-бутоксн	5:95	5	13,5	6,7
267	Изопентил	N-бутоксн	5:95	5	7,5	3,6
268	Изопропил	N-бутоксн	15:85	6	13,2	6,7
269	Изопентил	N-бутоксн	15:85	6	7,4	4,0
270	Изопропил	N-бутоксн	35:65	6	13,1	6,6
271	Изопентил	N-бутоксн	35:65	6	7,3	3,9
272	Изопропил	N-бутоксн	50:50	6	13,0	6,6
273	Изопентил	N-бутоксн	50:50	6	7,2	3,7

\*9) Процент снижения концентрации атомов олова (в активном компоненте) каждой композиции алкоксида алкилолова определяли с помощью математической формулы (8).

\*10) Полученное количество алкоксида триалкилолова определяли с помощью математической формулы (9).

[Математическая формула 20]

$$\text{Процент снижения концентрации атомов олова (в активном компоненте)} = (S_3^0 - S_3^t) / S_3^0 \times 100\% \quad (8)$$

где "процент снижения концентрации атомов олова (в активном компоненте)" представляет собой процент снижения [%] концентрации атомов олова (в активном компоненте) композиции после циркуляционного процесса;

$S_3^0$  представляет собой концентрацию атомов олова (в активном компоненте) [моль/кг] композиции перед циркуляционным процессом;

$S_3^t$  представляет собой концентрацию атомов олова (в активном компоненте) [моль/кг] композиции после циркуляционного процесса;

$S_3^0$  и  $S_3^t$  рассчитывали, исходя из концентрации тетраалкилдиалкоксидистанноксана и концентрации диалкоксида диалкилолова композиции в соответствии с определением спектроскопии  $^{119}\text{Sn}$ -ЯМР.

[Математическая формула 21]

$$\text{Полученное количество алкоксида триалкилолова} = T / (W_3^0 \times S_3^0) \times 100\% \quad (9)$$

где "полученное количество алкоксида триалкилолова" представляет собой количество алкоксида триалкилолова, полученное [%] после циркуляционного процесса;

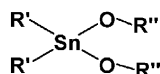
T представляет собой число моль [моль] алкоксида триалкилолова, полученного после циркуляционного процесса;

$W_3^0$  представляет собой массу [кг] композиции алкоксида алкилолова, введенной в бак с катализатором перед циркуляционным процессом; и

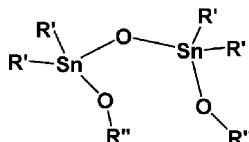
$S_3^0$  представляет собой концентрацию атомов олова (в активном компоненте) [моль/кг] композиции перед циркуляционным процессом,  $S_3^0$  рассчитывали, исходя из концентрации тетраалкилдиалкоксидистанноксана и концентрации диалкоксида диалкилолова композиции в соответствии с определением спектроскопии  $^{119}\text{Sn}$ -ЯМР.

Структурные формулы тетраалкилдиалкоксидистанноксана и диалкоксида диалкилолова в композиции алкоксида алкилолова.

[Химическая формула 51]



[Химическая формула 52]



где R' представляет собой C<sub>1-15</sub>алкильную группу и R'' представляет собой C<sub>1-8</sub>алкильную группу.  
Примеры 274-293.

Диалкоксиды диалкилолова и тетраалкилдиалкоксидистанноксаны со структурами, перечисленными в табл. 10, получали такими же способами, как указано в примерах синтеза 1, 2, 4, 5, 7 и 8, и сначала получали композиции, содержащие диалкоксиды диалкилолова и тетраалкилдиалкоксидистанноксаны. Композиции, содержащие диалкоксиды диалкилолова и тетраалкилдиалкоксидистанноксаны, получали таким образом, чтобы молярное соотношение атомов олова диалкоксидов диалкилолова и тетраалкилдиалкоксидистанноксана по отношению к числу моль атомов олова (в активном компоненте) композиции составляло 65:35. Затем алкоксиды триалкилолова со структурами, перечисленными в табл.10, добавляли к композициям для получения композиций, содержащих алкоксиды триалкилолова. Композиции получали таким образом, чтобы число моль атомов олова в алкоксидах триалкилолова по отношению к числу моль атомов олова композиций, содержащих алкоксиды триалкилолова, составляло от 11 до 13 мол.%. Композиции использовали аналогичным способом, как в примере 5, для пробного испытания (циркуляционного процесса) в циркуляционном реакторе непрерывного действия, как показано на фиг. 5, с подтверждением реакции модификации во время термоциркуляции. Приблизительно 60 кг каждой полученной композиции вводили в бак с катализатором и вращали в циркуляционном реакторе непрерывного действия, как показано на фиг. 5, аналогичным образом. Из бака с катализатором брали образец каждой композиции после циркуляционного процесса и подвергали спектроскопии <sup>119</sup>Sn-ЯМР. Концентрацию атомов олова (в активном компоненте) композиции рассчитывали, исходя из концентрации тетраалкилдиалкоксидистанноксана и концентрации диалкоксида диалкилолова композиции после пробного испытания в соответствии с результатами анализа, и рассчитывали процент снижения от момента, предшествующего началу пробного испытания. Число моль алкоксида триалкилолова также определяли, исходя из результатов анализа, и рассчитывали полученное количество по отношению к числу моль атомов олова (в активном компоненте) композиции до начала пробного испытания. Процент снижения концентрации атомов олова (в активном компоненте) композиций и полученное количество алкоксида триалкилолова показаны в табл. 10.

Таблица 10

Пример	Алкоксид диалкилолова		Алкоксид триалкил олова		Длительность непрерывного процесса [в сутках]	Процент снижения концентрации атомов олова композиции алкоксида алкилолова [%] *11)	Полученное количество алкоксида триалкилолова [%] *12)
	R' (алкильная группа)	OR'' (алкокси- группа)	R''' (алкильная группа)	Концентрация [атомов олова в моль-процентах]			
274	Пентан-3-ил	N-пентоксн	N-октил	11	5	10,4	5,6
275	2-бутилоктил	N-пентоксн	N-октил	12	5	3,4	1,7
276	2-гексилдецил	N-пентоксн	N-октил	11	6	3,5	1,7
277	3-этилгептил	N-пентоксн	N-октил	13	5	5,6	3,0
278	3-бутилгептил	N-пентоксн	N-октил	13	6	5,7	2,9
279	Пентан-3-ил	N-пентоксн	Пентан-3-ил	13	6	10,4	5,6
280	2-бутилоктил	N-пентоксн	Пентан-3-ил	12	5	3,5	1,7
281	2-гексилдецил	N-пентоксн	Пентан-3-ил	12	6	3,5	1,7
282	3-этилгептил	N-пентоксн	Пентан-3-ил	13	5	5,6	2,8
283	3-бутилгептил	N-пентоксн	Пентан-3-ил	12	5	5,7	2,8
284	Пентан-3-ил	N-пентоксн	2-бутилоктил	12	5	10,4	5,2
285	2-бутилоктил	N-пентоксн	2-бутилоктил	11	6	3,4	1,7
286	2-гексилдецил	N-пентоксн	2-бутилоктил	12	5	3,5	1,7
287	3-этилгептил	N-пентоксн	2-бутилоктил	12	5	5,5	2,9
288	3-бутилгептил	N-пентоксн	2-бутилоктил	13	6	5,6	2,9
289	Пентан-3-ил	N-пентоксн	3-этилбутил	12	5	10,3	5,4
290	2-бутилоктил	N-пентоксн	3-этилбутил	11	6	3,5	1,8
291	2-гексилдецил	N-пентоксн	3-этилбутил	12	5	3,6	1,9
292	3-этилгептил	N-пентоксн	3-этилбутил	12	6	5,5	2,7
293	3-бутилгептил	N-пентоксн	3-этилбутил	13	5	5,6	3,0

\*11) Процент снижения концентрации атомов олова (в активном компоненте) каждой композиции алкоксида алкилолова определяли с помощью математической формулы (8).

\*12) Полученное количество алкоксида триалкилолова определяли с помощью математической формулы (9).

[Математическая формула 22]

Процент снижения концентрации атомов олова (в активном

$$\text{компоненте}) = (S_3^0 - S_3^t) / S_3^0 \times 100\% \quad (8)$$

где "процент снижения концентрации атомов олова (в активном компоненте)" представляет собой процент снижения [%] концентрации атомов олова (в активном компоненте) композиции после циркуляционного процесса;

$S_3^0$  представляет собой концентрацию атомов олова (в активном компоненте) [моль/кг] композиции перед циркуляционным процессом;

$S_3^t$  представляет собой концентрацию атомов олова (в активном компоненте) [моль/кг] композиции после циркуляционного процесса.  $S_3^0$  и  $S_3^t$  рассчитывали, исходя из концентрации тетраалкилдиалкоксидистанноксана и концентрации диалкоксида диалкилолова композиции в соответствии с определением спектроскопии  $^{119}\text{Sn}$ -ЯМР.

[Математическая формула 23]

$$\text{Полученное количество алкоксида триалкилолова} = T / (W_3^0 \times S_3^0) \times 100\% \quad (9)$$

где "полученное количество алкоксида триалкилолова" представляет собой количество алкоксида триалкилолова, полученным [%] после циркуляционного процесса;

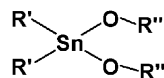
T представляет собой число моль [моль] алкоксида триалкилолова, полученного после циркуляционного процесса;

$W_3^0$  представляет собой массу [кг] композиции алкоксида алкилолова, введенной в бак с катализатором перед циркуляционным процессом; и

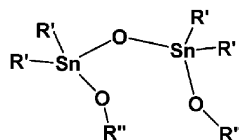
$S_3^0$  представляет собой концентрацию атомов олова (в активном компоненте) [моль/кг] композиции перед циркуляционным процессом,  $S_3^0$  рассчитывали, исходя из концентрации тетраалкилдиалкоксидистанноксана и концентрации диалкоксида диалкилолова композиции в соответствии с определением спектроскопии  $^{119}\text{Sn}$ -ЯМР.

Структурные формулы тетраалкилдиалкоксидистанноксана, диалкоксида диалкилолова и алкоксида триалкилолова в композиции алкоксида алкилолова.

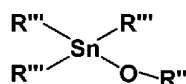
[Химическая формула 53]



[Химическая формула 54]



[Химическая формула 55]



где каждый из R' и R''' представляет собой C<sub>1-15</sub>алкильную группу и R'' представляет собой C<sub>1-8</sub>алкильную группу.

Примеры 294-305.

Композиции, содержащие диалкоксиды диалкилолова, тетраалкилдиалкоксидистанноксаны и алкоксиды триалкилолова со структурами, перечисленными в табл. 11, получали такими же способами, как указано в примерах синтеза 3 и 6. Время нагревания для получения каждой композиции корректировали таким образом, чтобы концентрация алкоксида триалкилолова композиции соответствовала значению, представленному в табл. 11. Затем композиции, содержащие диалкоксиды диалкилолова, тетраалкилдиалкоксидистанноксаны и алкоксиды триалкилолова, использовали для пробного испытания (циркуляционного процесса) циркуляционного реактора непрерывного действия, как показано на фиг. 5, аналогичным способом, как в примере 5, с подтверждением реакции модификации во время термоциркуляции. Приблизительно 60 кг композиции алкоксида алкилолова вводили в бак с катализатором и вращали в циркуляционном реакторе непрерывного действия, как показано на фиг. 5, аналогичным способом. Из бака с катализатором брали образец каждой композиции после циркуляционного процесса и подвергали спектроскопии  $^{119}\text{Sn}$ -ЯМР. Концентрацию атомов олова (в активном компоненте) композиции рассчитывали, исходя из концентрации тетраалкилдиалкоксидистанноксана и концентрации диалкоксида диалкилолова композиции после пробного испытания в соответствии с результатами анализа, и рассчитывали процент снижения от момента, предшествующего началу пробного испытания. Число моль алкоксида триалкилолова также определяли, исходя из результатов анализа, и рассчитывали полученное количество по отношению к числу моль атомов олова (в активном компоненте) композиции до начала пробного испытания. Процент снижения концентрации атомов олова (в активном компоненте) композиций и полу-

ченное количество алкоксида триалкилолова показаны в табл. 11.

Таблица 11

Пример	Алкоксид диалкилолова		Алкоксид триалкилолова		Длительность непрерывного процесса [в сутках]	Процент снижения концентрации атомов олова композиции алкоксида алкилолова [%] *13)	Полученное количество алкоксида триалкилолова [%] *14)
	R' (алкильная группа)	OR'' (алкокси-группа)	R''' (алкильная группа)	Концентрация в композиции алкоксида алкилолова			
294	Пентан-3-ил	N-бутокси	Пентан-3-ил	12	5	10,4	5,0
295	изопентил	N-бутокси	Изопентил	12	5	5,9	2,9
296	Пентан-3-ил	N-бутокси	Пентан-3-ил	25	6	10,1	5,1
297	Изопентил	N-бутокси	изопентил	26	5	5,7	3,0
298	Пентан-3-ил	N-бутокси	Пентан-3-ил	45	6	10,0	5,2
299	Изопентил	N-бутокси	Изопентил	46	6	5,6	2,9
300	Пентан-3-ил	3-метилбутилокси	Пентан-3-ил	12	5	10,1	4,9
301	Изопентил	3-метилбутилокси	Изопентил	12	5	5,6	2,9
302	Пентан-3-ил	3-метилбутилокси	Пентан-3-ил	25	6	10,0	5,3
303	Изопентил	3-метилбутилокси	Изопентил	26	5	5,5	2,9
304	Пентан-3-ил	3-метилбутилокси	Пентан-3-ил	46	6	9,7	4,8
305	Изопентил	3-метилбутилокси	Изопентил	45	5	5,4	2,7

\*13) Процент снижения концентрации атомов олова (в активном компоненте) каждой композиции алкоксида алкилолова определяли с помощью математической формулы (8).

\*14) Полученное количество алкоксида триалкилолова определяли с помощью математической формулы (9).

[Математическая формула 24]

$$\text{Процент снижения концентрации атомов олова (в активном компоненте)} = (S_3^0 - S_3^t) / S_3^0 \times 100\% \quad (8)$$

где "процент снижения концентрации атомов олова (в активном компоненте)" представляет собой процент снижения [%] концентрации атомов олова (в активном компоненте) композиции после циркуляционного процесс;

$S_3^0$  представляет собой концентрацию атомов олова (в активном компоненте) [моль/кг] композиции перед циркуляционным процессом;

$S_3^t$  представляет собой концентрацию атомов олова (в активном компоненте) [моль/кг] композиции после циркуляционного процесса;

$S_3^0$  и  $S_3^t$  рассчитывали, исходя из концентрации тетраалкилдиалкоксидистанноксана и концентрации диалкоксида диалкилолова композиции в соответствии с определением спектроскопии  $^{119}\text{Sn}$ -ЯМР.

[Математическая формула 25]

$$\text{Полученное количество алкоксида триалкилолова} = T / (W_3^0 \times S_3^0) \times 100\% \quad (9)$$

где "полученное количество алкоксида триалкилолова представляет собой количество алкоксида триалкилолова, полученное [%] после циркуляционного процесса;

T представляет собой число моль [моль] алкоксида триалкилолова, полученного после циркуляционного процесса;

$W_3^0$  представляет собой массу [кг] композиции алкоксида алкилолова, введенной в бак с катализа-

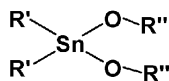


тором перед циркуляционным процессом; и

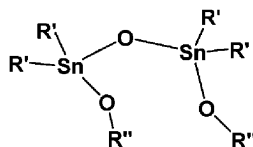
$S_3^0$  представляет собой концентрацию атомов олова (в активном компоненте) [моль/кг] композиции перед циркуляционным процессом,  $S_3^0$  рассчитывали, исходя из концентрации тетраалкилдиалкоксидистанноксана и концентрации диалкоксида диалкилолова композиции в соответствии с определением спектроскопии  $^{119}\text{Sn}$ -ЯМР.

Структурные формулы тетраалкилдиалкоксидистанноксана, диалкоксида диалкилолова и алкоксида триалкилолова в композициях алкоксида алкилолова.

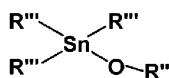
[Химическая формула 56]



[Химическая формула 57]



[Химическая формула 58]



где каждый из  $R'$  и  $R'''$  представляет собой  $C_{1-15}$ алкильную группу и  $R''$  представляет собой  $C_{1-8}$ алкильную группу.

Пример 306.

Циркуляционный реактор непрерывного действия, включающий корпусной реактор, трубчатый реактор и башенный реактор, как показано на фиг. 1, использовали для проведения реакции переэтерификации. Приблизительно 20 кг композиции бис-(3-метилбутил)-бис-(3-метилбутокс)олова, полученной посредством способа примера синтеза 4 (с концентрацией атомов олова (в активном компоненте) композиции: 2,26 моль/кг), вводили в бак с катализатором SUS316 130, оснащенный нагревательной рубашкой и насосом для перемещения жидкости, через линию поставки 15. Затем сложный эфир *n*-пропил-2-этилгексаноата (продукт Wako Pure Chemical Industries) вводили в бак с исходным веществом 110 через линию поставки 1 и 3-метил-1-бутиловый спирт (продукт Kuraray Co., Ltd.) вводили в бак с исходным веществом 120 через линию поставки 2. Бак и трубы обогревали паром для сохранения реологического свойства. В корпусной реактор 140 переносили *n*-сложный эфир пропил-2-этилгексаноата при скорости потока приблизительно 10 кг/ч через линию транспортировки 3, поточный смеситель 141 и линию транспортировки 5 и 3-метил-1-бутиловый спирт при скорости потока приблизительно 12 кг/ч через линию транспортировки 4, поточный смеситель 141 и линию транспортировки 5. Композицию переносили из бака с катализатором 130 в корпусной реактор 140 при 1,6 кг/ч, через линию транспортировки 14, поточный смеситель 141, оснащенный нагревательной рубашкой, и линию транспортировки 5. В поточном смесителе 141 композицию бис-(3-метилбутил)-бис-(3-метилбутокс)олова, сложный эфир *n*-пропил-2-этилгексаноата и 3-метил-1-бутиловый спирт смешивали и нагревали. Концентрация атомов олова в смеси в корпусном реакторе составляла 1,7 мол.%. Корпусной реактор 140 представлял собой реактор объемом 15 л, включающий мешалку, нагревательную рубашку и насос для перемещения жидкости, и нагревательную рубашку нагревали паром для контроля смеси в реакторе приблизительно до 160°C. Трубчатый реактор 150 с внешним диаметром 200 мм и длиной 1000 мм также содержал нагревательную рубашку, которую нагревали паром приблизительно при 160°C. Сложный эфир *N*-пропил-2-этилгексаноата и 3-метил-1-бутиловый спирт, перенесенные в корпусной реактор 140, подвергали реакции переэтерификации с использованием композиции бис-(3-метилбутил)-бис-(3-метилбутокс)олова в качестве катализатора, а затем переносили в трубчатый реактор 150 через линию транспортировки 6 для проведения реакции и также переносили в башенный реактор 160 через линию транспортировки 7 для проведения реакции.

Башенный реактор SUS316 160 с внутренним диаметром 75 мм и расчетной длиной 4500 мм, оснащенный 30 ситчатыми тарелками, нагревали и теплоизолировали с помощью обогревателя по всей площади башенного реактора для предотвращения потери излучаемого тепла, обогреватель установили на уровне приблизительно 160°C. Насос для перемещения жидкости и ребойлер 163 помещали на дно башенного реактора 160, и ребойлер 163 нагревали паром приблизительно при 165°C.

После проведения реакции переэтерификации в башенном реакторе 160 *n*-пропиловый спирт и 3-метил-1-бутиловый спирт, полученные посредством реакции, отгоняли посредством дистилляции и фракцию, состоящую в основном из *n*-пропилового спирта, собирали из коллекторной линии 8. Смесь, содержащую продукт реакции сложного эфира 3-метилбутил-2-этилгексаноата, переносили из башенного реактора 160 через линию транспортировки 9 в тонкоплочный испаритель 170 с установленной температурой 180°C и давлением приблизительно 40 кПа абс., а затем компонент с низкой температурой

кипения, содержащий сложный эфир 3-метилбутил-2-этилгексаноата, переносили через линию транспортировки 10 в дистилляционную колонку 180 (колонку, заполненную наполнителем MetalGauze CY, с внутренним диаметром 83 мм, расчетной длиной 2800 мм), и очищали. В отдельности компонент с высокой температурой кипения, содержащий композицию бис-(3-метилбутил)-бис-(3-метилбутокс)олова, переносили в бак с катализатором 130 через линию транспортировки 11, а затем осуществляли циркуляцию в циркуляционном реакторе непрерывного действия через линию транспортировки 14, поточный смеситель 141 и линию транспортировки 5. При необходимости, поставку из бака с исходным веществом и бака с катализатором в корпусной реактор уменьшали или прерывали для установления стабильного состояния внутри системы. Процесс продолжали и после достижения стабильного состояния внутри реактора со дна башенного реактора 160 брали образец смеси и проводили количественный анализ посредством газовой хроматографии, и выход сложного эфира 3-метилбутил-2-этилгексаноата составил 19,7% на основании групп сложного эфира *n*-пропил 2-этилгексаноата. Это состояние сохранялось в течение приблизительно 15 суток, после этого со дна башенного реактора 160 снова брали образец смеси и проводили количественный анализ посредством газовой хроматографии, и выход сложного эфира 3-метилбутил-2-этилгексаноата составил 19,3%. Было возможно стабильное получение сложного эфира 3-метилбутил-2-этилгексаноата приблизительно при 2,1 кг/ч из коллекторной линии 13 в течение непрерывного процесса. Компонент с высокой температурой кипения, содержащий композицию бис-(3-метилбутил)-бис-(3-метилбутокс)олова, в циркуляционном реакторе непрерывного действия после непрерывного процесса отделяли с использованием тонкопленочного испарителя 170, и собирали в баке с катализатором 130, и измеряли массу. Из бака с катализатором 130 брали образец через трубопровод отбора пара 16, и в результате проведенной спектроскопии <sup>119</sup>Sn-ЯМР подтверждалось присутствие бис-(3-метилбутил)-бис-(3-метилбутокс)олова и трис-(3-метилбутил)(3-метилбутокс)олова после непрерывного процесса. Исходя из результатов проведенного анализа, трис-(3-метилбутил)(3-метилбутокс)олова получали приблизительно при 0,27 моль через 15 суток непрерывного процесса, количество составляло приблизительно 0,6% по отношению к числу моль атомов олова (в активном компоненте) композиции, введенной в бак с катализатором 130 до начала непрерывного процесса.

#### Пример 307.

Циркуляционный реактор непрерывного действия, включающий корпусной реактор, трубчатый реактор и башенный реактор, как показано на фиг. 1, использовали для проведения реакции переэтерификации. Приблизительно 20 кг композиции бис-(3-метилбутил)-бис-(3-метилбутокс)олова, полученной аналогичным способом, как в примере синтеза 4 (с концентрацией атомов олова (в активном компоненте) композиции: 2,26 моль/кг), вводили в бак с катализатором SUS316 130, оснащенный нагревательной рубашкой и насосом для перемещения жидкости, через линию поставки 15. Затем сложный эфир 3-метилбутил-2-этилгексаноата, полученный в примере 306, вводили в бак с исходным веществом 110 через линию поставки 1 и сложный эфир этил-2-метилпропаноата (продукт Aldrich) вводили в бак с исходным веществом 120 через линию поставки 2. Бак и трубы обогревали паром для сохранения реологического свойства. Сложный эфир 3-метилбутил-2-этилгексаноата переносили при скорости потока приблизительно 12 кг/ч через линию транспортировки 3, поточный смеситель 141 и линию транспортировки 5 и сложный эфир этил-2-метилпропаноата переносили в корпусной реактор 140 при скорости потока приблизительно 10 кг/ч через линию транспортировки 4, поточный смеситель 141 и линию транспортировки 5. Кроме того, бак с катализатором 130 нагревали паром для сохранения реологического свойства содержимого и композицию бис-(3-метилбутил)-бис-(3-метилбутокс)олова в таком состоянии переносили при 1,2 кг/ч через линию транспортировки 14, поточный смеситель 141, оснащенный нагревательной рубашкой, и линию транспортировки 5. В поточном смесителе 141 композицию бис-(3-метилбутил)-бис-(3-метилбутокс)олова, сложный эфир 3-метилбутил-2-этилгексаноата и сложный эфир этил-2-метилпропаноата смешивали и нагревали. Концентрация атомов олова в смеси в корпусном реакторе 140 составляла 1,9 мол.%.

Корпусной реактор 140 представлял собой реактор объемом 15 л, включающий мешалку, нагревательную рубашку и насос для перемещения жидкости, и нагревательную рубашку нагревали паром для контроля смеси в реакторе приблизительно до 160°C. Трубчатый реактор 150 также включал нагревательную рубашку, которую нагревали паром приблизительно при 160°C. Сложный эфир 3-метилбутил-2-этилгексаноата и сложный эфир этил-2-метилпропаноата, ранее перенесенные в корпусной реактор 140, подвергали реакции переэтерификации с использованием композиции бис-(3-метилбутил)-бис-(3-метилбутокс)олова в качестве катализатора, а затем переносили в трубчатый реактор 150 через линию транспортировки 6 для проведения реакции и затем переносили в башенный реактор 160 через линию транспортировки 7 для проведения реакции.

Башенный реактор SUS316 160 с внутренним диаметром 75 мм и расчетной длиной 4500 мм, оснащенный 30 ситчатыми тарелками, нагревали и теплоизолировали с помощью обогревателя по всей площади башенного реактора для предотвращения потери излучаемого тепла, обогреватель установили на уровне приблизительно 160°C. Насос для перемещения жидкости и ребойлер 163 помещали на дно башенного реактора 160, и ребойлер 163 нагревали паром приблизительно при 165°C.

После проведения реакции переэтерификации в башенном реакторе 160 сложный эфир 3-метилбутил-2-метилпропаноата, собранный с помощью реакции, и не вступивший в реакцию сложный эфир этил-2-метилпропаноата отделяли посредством дистилляции и фракцию, содержащую сложный эфир этил-2-метилпропаноата и сложный эфир 3-метилбутил-2-метилпропаноата, собирали из коллекторной линии 8.

Смесь, содержащую продукт реакции сложного эфира этил-2-этилгексаноата и не вступивший в реакцию сложный эфир 3-метилбутил-2-этилгексаноата, переносили из башенного реактора 160 через линию транспортировки 9 в тонкопленочный испаритель 170 с установленной температурой 180°C и давлением приблизительно 30 кПа абс., а затем компонент с низкой температурой кипения, содержащий сложный эфир этил-2-этилгексаноата и сложный эфир 3-метилбутил-2-этилгексаноата, переносили через линию транспортировки 11 в дистилляционную колонку 180 (колонку, заполненную наполнителем MetalGauze CY, с внутренним диаметром 83 мм, расчетной длиной 2800 мм) и очищали. В отдельности компонент с высокой температурой кипения, содержащий композицию бис-(3-метилбутил)-бис-(3-метилбутоксид)олова, переносили в бак с катализатором 130 через линию транспортировки 11, а затем осуществляли циркуляцию в циркуляционном реакторе непрерывного действия через линию транспортировки 14, поточный смеситель 141 и линию транспортировки 5. При необходимости, поставку из бака с исходным веществом и бака с катализатором в корпусной реактор уменьшали или прерывали для установления стабильного состояния внутри системы. Процесс продолжали и после достижения стабильного состояния внутри реактора со дна башенного реактора 160 брали образец смеси и проводили количественный анализ посредством газовой хроматографии, и выход сложного эфира этил-2-этилгексаноата составлял 39,2% (на основании групп сложного эфира 3-метилбутил-2-этилгексаноата). Это состояние сохранялось в течение приблизительно 15 суток, после этого со дна башенного реактора 160 снова брали образец смеси и проводили количественный анализ посредством газовой хроматографии, и выход сложного эфира этил-2-этилгексаноата составил 38,5%. Было возможно стабильное получение сложного эфира этил-2-этилгексаноата в собранной фракции приблизительно при 3,5 кг/ч из коллекторной линии 12 в течение непрерывного процесса. Компонент с высокой температурой кипения, содержащий композицию бис-(3-метилбутил)-бис-(3-метилбутоксид)олова, в циркуляционном реакторе непрерывного действия после непрерывного процесса отделяли с использованием тонкопленочного испарителя 170, собирали в баке с катализатором 130 и измеряли массу. Из бака с катализатором 130 брали образец через трубопровод отбора пара 16, и в результате проведенной спектроскопии <sup>119</sup>Sn-ЯМР подтверждалось присутствие бис-(3-метилбутил)-бис-(3-метилбутоксид)олова, бис-(3-метилбутил)диэтоксидолова, трис-(3-метилбутил)-(3-метилбутоксид)олова и трис-(3-метилбутил)этоксидолова. Исходя из результатов проведенного анализа, получали общее количество трис-(3-метилбутил)(3-метилбутоксид)олова и трис-(3-метилбутил)этоксидолова, составившее 0,32 моль, через 15 суток непрерывного процесса, это количество составляло приблизительно 0,7% по отношению к числу моль атомов олова (в активном компоненте) композиции, введенной в бак с катализатором 130 до начала непрерывного процесса.

Пример 308.

Циркуляционный реактор непрерывного действия, включающий корпусной реактор, трубчатый реактор и башенный реактор, как показано на фиг. 1, использовали для проведения реакции переэтерификации. Приблизительно 20 кг композиции 1,1,3,3-тетракис-(3-метилбутил)-1,3-диэтоксидистанноксана, полученной аналогичным способом, как в примере синтеза 2 (с концентрацией атомов олова (в активном компоненте) композиции: 3,14 моль/кг), вводили в бак с катализатором SUS316 130, оснащенный нагревательной рубашкой и насосом для перемещения жидкости, через линию поставки 15. Затем сложный эфир 3-метилбутил-2-этилгексаноата вводили в бак с исходным веществом 110 через линию поставки 1 и сложный эфир этил-2-метилпропаноата (продукт Aldrich) вводили в бак с исходным веществом 120 через линию поставки 2. Бак и трубы обогревали паром для сохранения реологического свойства. Сложный эфир 3-метилбутил-2-этилгексаноата переносили при скорости потока приблизительно 12 кг/ч через линию транспортировки 3, поточный смеситель 141 и линию транспортировки 5 и сложный эфир этил-2-метилпропаноата переносили в корпусной реактор 140 при скорости потока приблизительно 10 кг/ч через линию транспортировки 4, поточный смеситель 141 и линию транспортировки 5. Кроме того, бак с катализатором 130 нагревали паром для сохранения реологического свойства содержимого, и композицию 1,1,3,3-тетракис-(3-метилбутил)-1,3-диэтоксидистанноксана в таком состоянии переносили при 0,8 кг/ч через линию транспортировки 14, поточный смеситель 141, оснащенный нагревательной рубашкой, и линию транспортировки 5. В поточном смесителе 141 композицию 1,1,3,3-тетракис-(3-метилбутил)-1,3-диэтоксидистанноксана, сложный эфир 3-метилбутил-2-этилгексаноата и сложный эфир этил-2-метилпропаноата смешивали и нагревали. Концентрация атомов олова в смеси в корпусном реакторе 140 составила 1,8 мол.%. Корпусной реактор 140 представлял собой реактор объемом 15 л, включающий мешалку, нагревательную рубашку и насос для перемещения жидкости, и нагревательную рубашку нагревали паром для контроля смеси в реакторе приблизительно до 160°C. Трубчатый реактор 150 также включал нагревательную рубашку, которую нагревали паром приблизительно при 160°C.

Сложный эфир 3-метилбутил-2-этилгексаноата и сложный эфир этил-2-метилпропаноата переноси-

ли в корпусной реактор 140 и подвергали реакции переэтерификации с использованием 1,1,3,3-тетраakis-(3-метилбутил)-1,3-диэтоксидистанноксана в качестве катализатора, а затем переносили в трубчатый реактор 150 через линию транспортировки 6 для проведения реакции и также переносили в башенный реактор 160 через линию транспортировки 7 для проведения реакции. Башенный реактор SUS316 160 с внутренним диаметром 75 мм и расчетной длиной 4500 мм, оснащенный 30 ситчатыми тарелками, нагревали и теплоизолировали с помощью обогревателя по всей площади башенного реактора для предотвращения потери излучаемого тепла, обогреватель установили на уровне приблизительно 160°C. Насос для перемещения жидкости и ребойлер 163 помещали на дно башенного реактора 160 и ребойлер 163 нагревали паром приблизительно при 165°C. После проведения реакции переэтерификации в башенном реакторе 160 сложный эфир 3-метилбутил-2-метилпропаноата, собранный посредством реакции, и не вступивший в реакцию сложный эфир этил-2-метилпропаноата отделяли посредством дистилляции, и фракцию, содержащую сложный эфир этил-2-метилпропаноата и сложный эфир 3-метилбутил-2-метилпропаноата, собирали из коллекторной линии 8. Смесь, содержащую продукт реакции сложного эфира этил-2-этилгексаноата и не вступивший в реакцию сложный эфир 3-метилбутил 2-этилгексаноата, переносили из башенного реактора 160 через линию транспортировки 9 в тонкоплочный испаритель 170 с установленной температурой 180°C и давлением приблизительно 30 кПа абс., а затем компонент с низкой температурой кипения, содержащий сложный эфир этил-2-этилгексаноата и сложный эфир 3-метилбутил-2-этилгексаноата, переносили через линию транспортировки 10 в дистилляционную колонку 180 (колонку, заполненную наполнителем MetalGauze CY, с внутренним диаметром 83 мм, расчетной длиной 2800 мм) и очищали. В отдельности компонент с высокой температурой кипения, содержащий композицию 1,1,3,3-тетраakis-(3-метилбутил)-1,3-диэтоксидистанноксана, переносили в бак с катализатором 130 через линию транспортировки 11, а затем осуществляли циркуляцию в циркуляционном реакторе непрерывного действия через линию транспортировки 14, поточный смеситель 141 и линию транспортировки 5. При необходимости, поставку из бака с исходным веществом и бака с катализатором в корпусной реактор уменьшали или прерывали для установления стабильного состояния внутри системы. Процесс продолжали и после достижения стабильного состояния внутри реактора со дна башенного реактора 160 брали образец смеси и проводили количественный анализ посредством газовой хроматографии, выход сложного эфира этил-2-этилгексаноата составил 31,5% (на основании групп сложного эфира 3-метилбутил-2-этилгексаноата). Это состояние сохранялось в течение приблизительно 15 суток, после этого со дна башенного реактора 160 снова брали образец смеси и проводили количественный анализ посредством газовой хроматографии, выход сложного эфира этил-2-этилгексаноата составил 30,9%. Было возможно стабильное получение сложного эфира этил-2-этилгексаноата в собранной фракции приблизительно при 2,8 кг/ч из коллекторной линии 12 в течение непрерывного процесса. Компонент с высокой температурой кипения, содержащий композицию 1,1,3,3-тетраakis-(3-метилбутил)-1,3-диэтоксидистанноксана, в циркуляционном реакторе непрерывного действия после непрерывного процесса отделяли с использованием тонкоплочного испарителя 170 и собирали в баке с катализатором 130 и измеряли массу. Из трубопровода отбора пара 16 бака с катализатором 130 брали образец, и согласно результатам проведенной спектроскопии <sup>119</sup>Sn-ЯМР бак с катализатором 130 содержал 1,1,3,3-тетраakis-(3-метилбутил)-1,3-бис-(3-метилбутоксидистанноксан, 1,1,3,3-тетраakis-(3-метилбутил)-1,3-диэтоксидистанноксан, трис-(3-метилбутил)(3-метилбутоксид)олова и трис-(3-метилбутил)этоксидолова. Исходя из результатов проведенного анализа, получали общее количество трис-(3-метилбутил)(3-метилбутоксид)олова и трис-(3-метилбутил)этоксидолова, составившее приблизительно 0,57 моль через 15 суток непрерывного процесса, это количество составляло приблизительно 0,9% по отношению к числу моль атомов олова (в активном компоненте), введенному в бак с катализатором 130 до начала непрерывного процесса.

#### Пример 309.

Циркуляционный реактор непрерывного действия, включающий трубчатый реактор и башенный реактор, как показано на фиг. 2, использовали для проведения реакции переэтерификации.

Приблизительно 20 кг композиции 1,1,3,3-тетраakis-(3-метилбутил)-1,3-бис-(3-метилбутоксидистанноксана, полученной аналогичным способом, как в примере синтеза 5 (с концентрацией атомов олова (в активном компоненте) композиции: 2,76 моль/кг), помещали в бак с катализатором SUS316 230, оснащенный нагревательной рубашкой и насосом для перемещения жидкости, через линию поставки 33. Затем сложный эфир 3-метилбутил-2-этилгексаноата вводили в бак с исходным веществом 210 через линию поставки 21 и сложный эфир этил-2-метилпропаноата вводили в бак с исходным веществом 220 через линию поставки 22. Бак и трубы обогревали паром для сохранения реологического свойства. Сложный эфир 3-метилбутил-2-этилгексаноата переносили через линию транспортировки 23, поточный смеситель 241 и линию транспортировки 25 при скорости потока приблизительно 12 кг/ч и сложный эфир этил-2-метилпропаноата переносили в трубчатый реактор 240, оснащенный нагревательной рубашкой, через линию транспортировки 24, поточный смеситель 241 и линию транспортировки 25 при скорости потока приблизительно 10 кг/ч. Кроме того, бак с катализатором 230 нагревали паром для сохранения реологического свойства содержимого и композицию 1,1,3,3-тетраakis-(3-метилбутил)-1,3-бис-(3-

метилбутоксидистанноксана в таком состоянии переносили при 0,9 кг/ч через линию транспортировки 34, поточный смеситель 241 и линию транспортировки 25. В поточном смесителе 241 композицию 1,1,3,3-тетраakis-(3-метилбутил)-1,3-бис-(3-метилбутоксидистанноксана, сложный эфир 3-метилбутил-2-этилгексаноата и сложный эфир этил-2-метилпропаноата смешивали и нагревали. Сложный эфир 3-метилбутил-2-этилгексаноата и сложный эфир этил-2-метилпропаноата, ранее перенесенные в трубчатый реактор 240, подвергали реакции переэтерификации с использованием 1,1,3,3-тетраakis-(3-метилбутил)-1,3-бис-(3-метилбутоксидистанноксана в качестве катализатора и переносили в башенный реактор 250 через линию транспортировки 26 для дальнейшей реакции. Башенный реактор SUS316 250 с внутренним диаметром 130 мм и расчетной длиной 4500 мм, оснащенный 30 ситчатыми тарелками, оснащали нагревателем, ребойлером 253 и насосом для перемещения жидкости и температуру внутри реактора контролировали на уровне приблизительно 160°C с помощью нагревателя и ребойлера 253. С верха башенного реактора 250 фракцию, содержащую сложный эфир 3-метилбутил-2-метилпропаноата, полученный посредством реакции переэтерификации, и не вступивший в реакцию сложный эфир этил-2-метилпропаноата, конденсировали с помощью конденсатора 251 и собирали с помощью коллекторной линии 27 посредством бака конденсата 252. Смесь, содержащую продукт реакции сложного эфира этил-2-этилгексаноата, и не вступивший в реакцию сложный эфир 3-метилбутил-2-этилгексаноата переносили со дна башенного реактора 250 через линию транспортировки 28 в тонкоплочный испаритель 260 с установленной температурой 180°C и давлением приблизительно 30 кПа абс., а затем компонент с низкой температурой кипения, содержащий сложный эфир этил-2-этилгексаноата и не вступивший в реакцию сложный эфир 3-метилбутил-2-этилгексаноата, переносили через линию транспортировки 29 в дистиляционную колонку 270 (колонку, заполненную наполнителем MetalGauze CY, с внутренним диаметром 83 мм, расчетной длиной 2800 мм), и очищали. В отдельности компонент с высокой температурой кипения, содержащий композицию 1,1,3,3-тетраakis-(3-метилбутил)-1,3-бис-(3-метилбутоксидистанноксана, переносили в бак с катализатором 230 через линию транспортировки 30, а затем осуществляли циркуляцию в циркуляционном реакторе прерывного действия через линию транспортировки 34, поточный смеситель 241 и линию транспортировки 25. При необходимости, поставку из бака с исходным веществом и бака с катализатором в трубчатый реактор уменьшали или прерывали для установления стабильного состояния внутри системы. Процесс продолжали и после достижения стабильного состояния внутри реактора со дна башенного реактора 250 брали образец смеси и проводили количественный анализ посредством газовой хроматографии, выход сложного эфира этил-2-этилгексаноата составил 35,1% (не основании групп сложного эфира 3-метилбутил-2-этилгексаноата). Это состояние сохранялось в течение приблизительно 15 суток, после этого со дна башенного реактора 250 снова брали образец смеси и проводили количественный анализ посредством газовой хроматографии, и выход сложного эфира 2-этил-2-этилгексаноата составил 34,1%.

Было возможно стабильное получение сложного эфира этил-2-этилгексаноата в собранной фракции приблизительно при 3,1 кг/ч из коллекторной линии 31 в течение непрерывного процесса. Компонент с высокой температурой кипения, содержащий композицию 1,1,3,3-тетраakis-(3-метилбутил)-1,3-бис-(3-метилбутоксидистанноксана, в циркуляционном реакторе непрерывного действия после непрерывного процесса отделяли с использованием тонкоплочного испарителя 260, собирали в баке с катализатором 230 и измеряли массу. Из трубопровода отбора пара 35 бака с катализатором 230 брали образец, и согласно результатам проведенной спектроскопии  $^{119}\text{Sn}$ -ЯМР содержание бак с катализатором содержал 1,1,3,3-тетраakis-(3-метилбутил)-1,3-бис-(3-метилбутоксидистанноксан, 1,1,3,3-тетраakis-(3-метилбутил)-1,3-диэтоксидистанноксан, трис-(3-метилбутил)(3-метилбутоксид)олова и трис-(3-метилбутил)этоксиолова. Исходя из результатов проведенного анализа, получали общее количество трис-(3-метилбутил)(3-метилбутоксид)олова и трис-(3-метилбутил)этоксиолова, составившее приблизительно 0,5 моль через 15 суток непрерывного процесса, это количество составляло приблизительно 0,9% по отношению к числу моль атомов олова (в активном компоненте), введенному в бак с катализатором 230 до начала непрерывного процесса.

Пример 310.

Циркуляционный реактор непрерывного действия, включающий корпусной реактор и башенный реактор, как показано на фиг. 3, использовали для проведения реакции переэтерификации бис-(3-Метилбутил)диэтоксиолова и 1,1,3,3-тетраakis-(3-метилбутил)-1,3-диэтоксидистанноксан, полученные аналогичными способами, как в примере синтеза 1 и примере синтеза 2, смешивали для получения композиции алкоксида алкилолова. Композицию получали таким образом, чтобы молярное соотношение атомов олова бис-(3-метилбутил)диэтоксиолова и тетраakis-(3-метилбутил)диэтоксидистанноксана по отношению к числу моль атомов олова (в активном компоненте) композиции алкоксида алкилолова составляло 65:35. Концентрация атомов олова (в активном компоненте) композиции алкоксида алкилолова составляла 2,93 моль/кг, согласно определению, исходя из концентрации бис-(3-метилбутил)диэтоксиолова и концентрации 1,1,3,3-тетраakis-(3-метилбутил)-1,3-диэтоксидистанноксана в композиции. Приблизительно 20 кг композиции вводили в бак с катализатором SUS316 330, оснащенный нагревательной рубашкой и насосом для перемещения жидкости, через линию поставки 53. Затем

сложный эфир 3-метилбутил-2-этилгексаноата вводили в бак с исходным веществом 310 через линию поставки 41 и сложный эфир этил-2-метилпропаноата вводили в бак с исходным веществом 320 через линию поставки 42. Бак и трубы обогревали паром для сохранения реологического свойства. Сложный эфир 3-метилбутил-2-этилгексаноата переносили при скорости потока приблизительно 12 кг/ч через линию транспортировки 43, поточный смеситель 341 и линию транспортировки 45, и сложный эфир этил-2-метилпропаноата переносили в корпусной реактор 340 при скорости потока приблизительно 10 кг/ч через линию транспортировки 44, поточный смеситель 341 и линию транспортировки 45. Кроме того, бак с катализатором 330 нагревали паром для сохранения реологического свойства содержимого, и композицию алкоксида алкилолова в таком состоянии переносили при 0,9 кг/ч через линию транспортировки 54, поточный смеситель 341, оснащенный нагревательной рубашкой, и линию транспортировки 45. В поточном смесителе 341 композицию алкоксида алкилолова, сложный эфир 3-метилбутил-2-этилгексаноата и сложный эфир этил-2-метилпропаноата смешивали и нагревали. Корпусной реактор 340 представлял собой реактор объемом 15 л, включающий мешалку, нагревательную рубашку и насос для перемещения жидкости, и нагревательную рубашку нагревали паром для контроля смеси в реакторе приблизительно до 160°C. Сложный эфир 3-метилбутил-2-этилгексаноата и сложный эфир этил-2-метилпропаноата, ранее перенесенные в корпусной реактор 340, подвергали реакции переэтерификации с использованием композиции алкоксида алкилолова в качестве катализатора, а затем переносили в башенный реактор 350 через линию транспортировки 46 для проведения реакции. Башенный реактор SUS316 350 с внутренним диаметром 130 мм и расчетной длиной 4500 мм, оснащенный 25 ситчатыми тарелками, оснащали нагревателем, ребойлером 353 и насосом для перемещения жидкости и температуру внутри реактора контролировали на уровне приблизительно 160°C с помощью нагревателя и ребойлера 353. С верха башенного реактора 350 фракцию, содержащую сложный эфир 3-метилбутил-2-метилпропаноата, полученный посредством реакции переэтерификации, и не вступивший в реакцию сложный эфир этил-2-метилпропаноата конденсировали с помощью конденсатора 351 и собирали из коллекторной линии 47 через бак конденсата 352. Смесь, содержащую продукт реакции сложного эфира этил-2-этилгексаноата и не вступивший в реакцию сложный эфир 3-метилбутил-2-этилгексаноата, переносили со дна башенного реактора 350 через линию транспортировки 48 в тонкопленочный испаритель 360 с установленной температурой 180°C и давлением приблизительно 30 кПа абс., а затем компонент с низкой температурой кипения, содержащий сложный эфир этил-2-этилгексаноат и сложный эфир 3-метилбутил-2-этилгексаноата, переносили через линию транспортировки 49 в дистилляционную колонку 370 (колонку, заполненную наполнителем MetalGauze CY, с внутренним диаметром 83 мм, расчетной длиной 2800 мм) и очищали. В отдельности компонент с высокой температурой кипения, содержащий композицию алкоксида алкилолова, содержащую бис-(3-метилбутил)диэтоксидолова и 1,1,3,3-тетраakis-(3-метилбутил)-1,3-диэтоксидистанноксан, переносили в бак с катализатором 330 через линию транспортировки 50, а затем осуществляли циркуляцию в циркуляционном реакторе непрерывного действия через линию транспортировки 54, поточный смеситель 341 и линию транспортировки 45. При необходимости, поставку из бака с исходным веществом и бака с катализатором в корпусной реактор уменьшали или прерывали для установления стабильного состояния внутри системы. Процесс продолжали и после достижения стабильного состояния внутри реактора брали образец смеси со дна башенного реактора 350 и проводили количественный анализ посредством газовой хроматографии, выход сложного эфира этил-2-этилгексаноата составил 36,5% (на основании групп сложного эфира 3-метилбутил-2-этилгексаноата). Это состояние сохранялось в течение приблизительно 15 суток, после этого снова брали образец смеси со дна башенного реактора 350 и проводили количественный анализ посредством газовой хроматографии, выход сложного эфира 2-метилпропил-2-этилгексаноата составил 35,7%.

Было возможно стабильное получение сложного эфира этил-2-этилгексаноата в собранной фракции приблизительно при 3,3 кг/ч из коллекторной линии 51 в течение непрерывного процесса. Компонент с высокой температурой кипения, включающий композицию алкоксида алкилолова, в циркуляционном реакторе непрерывного действия после непрерывного процесса отделяли с использованием тонкопленочного испарителя 360, собирали в баке с катализатором 330 и измеряли массу. Из трубопровода отбора пара 55 бака с катализатором 330 брали образец, и согласно результату проведенной спектроскопии  $^{119}\text{Sn}$ -ЯМР, бак с катализатором 330 содержал бис-(3-метилбутил)-бис-(3-метилбутоксидолова), бис-(3-метилбутил)диэтоксидолова, 1,1,3,3-тетраakis-(3-метилбутил)-1,3-бис-(3-метилбутоксидистанноксан, 1,1,3,3-тетраakis-(3-метилбутил)-1,3-диэтоксидистанноксан, трис-(3-метилбутил)(3-метилбутоксидолова и трис-(3-метилбутил)этоксидолова. Исходя из результатов проведенного анализа, получали общее количество трис-(3-метилбутил)(3-метилбутоксидолова и трис-(3-метилбутил)этоксидолова, составившее приблизительно 0,47 моль через 15 суток непрерывного процесса, это количество составляло приблизительно 0,8% по отношению к числу моль атомов олова (в активном компоненте) композиции алкоксида алкилолова, введенной в бак с катализатором 330 до начала непрерывного процесса.

Примеры 311-332.

Композиции диалкоксида диалкилолова, перечисленные в табл. 12, полученные аналогичными способами, как в примерах синтеза 1, 4 и 7, использовали для реакции переэтерификации с помощью цирку-

ляционного реактора непрерывного действия аналогичным способом, как в примере 306. Каждый из сложных эфиров карбоновых кислот и спиртов, используемых в качестве исходных веществ для реакции переэтерификации, перечисленных в табл. 12, вводили в бак с исходным веществом и переносили в корпусной реактор и реакцию переэтерификации проводили с диалкоксидом диалкилолова в качестве катализатора. Скорость потока композиции диалкоксида диалкилолова, переносимой из бака с катализатором, корректировали таким образом, чтобы концентрация атомов олова в реакционной смеси в корпусном реакторе составляла от 1,5 до 2,5 мол.%, и реакцию переэтерификации проводили при температурах, перечисленных в табл. 12. В табл. 12 показан выход реакции (первоначальный выход) незамедлительно после достижения стабильного состояния и выход реакции, а также полученное количество алкоксида триалкилолова (полученное количество по отношению к числу моль атомов олова (в активном компоненте), введенного в бак с катализатором до непрерывного процесса) через 15 суток непрерывного процесса.

Таблица 12

Пример	Алкоксид алкилолова		Исходные вещества для реакции переэтерификации		Температура [°C]	Первоначальный выход [в моль-процентах]	Выход [в моль-процентах] (через 15 суток непрерывного процесса)	Полученное количество алкоксида триалкилолова [в моль-процентах] * 15 (через 15 суток непрерывного процесса)
	R' (алкильная группа)	OR'' (алкокси- группа)	Сложный эфир карбоновой кислоты	Спирт				
311	Пентан-3-ил	Этокси	Сложный эфир метил-2-этилгексаноата	Этанол	150	17,2	16,1	2,9
312	Нонан-3-ил	Этокси	Сложный эфир метил-2-этилгексаноата	Этанол	150	17,8	16,5	3,2
313	2-метилбутил	Этокси	Сложный эфир метил-2-этилгексаноата	Этанол	150	30,6	29,4	1,8
314	3-этилпентил	Этокси	Сложный эфир метил-2-этилгексаноата	Этанол	150	39,1	37,8	1,4
315	3-бутилгептил	Этокси	Сложный эфир метил-2-этилгексаноата	Этанол	150	38,3	36,9	1,6
316	Пентан-3-ил	2-метилпропилокси	Сложный эфир пропил-2-этилгексаноата	2-метил-1-пропанол	170	17,6	16,4	3,0
317	Нонан-3-ил	2-метилпропилокси	Сложный эфир пропил-2-этилгексаноата	2-метил-1-пропанол	170	18,0	16,7	3,3
318	2-бутилоктил	2-Метилпропилокси	Сложный эфир пропил-2-этилгексаноата	2-метил-1-пропанол	170	38,5	37,2	1,6
319	Изопентил	2-метилпропилокси	Сложный эфир пропил-2-этилгексаноата	2-метил-1-пропанол	170	28,9	27,8	1,9
320	3-этилпентил	2-метилпропилокси	Сложный эфир пропил-2-этилгексаноата	2-метил-1-пропанол	170	43,0	41,5	1,6
321	3-бутилгептил	2-метилпропилокси	Сложный эфир пропил-2-этилгексаноата	2-метил-1-пропанол	170	41,4	40,3	1,2

322	Пентан-3-ил	3-метилбутилокси	Сложный эфир пропил-2-этилгексаноата	3-метил-1-бутанол	170	17,6	16,4	3,1
323	Нонан-3-ил	3-метилбутилокси	Сложный эфир пропил-2-этилгексаноата	3-метил-1-бутанол	170	18,0	17,0	2,4
324	2-бутилоктил	3-метилбутилокси	Сложный эфир пропил-2-этилгексаноата	3-метил-1-бутанол	170	37,2	35,5	1,9
325	3-этилпентил	3-метилбутилокси	Сложный эфир пропил-2-этилгексаноата	3-метил-1-бутанол	170	39,9	38,4	1,6
326	3-бутилгептил	3-метилбутилокси	Сложный эфир пропил-2-этилгексаноата	3-метил-1-бутанол	170	39,2	38,1	1,3
327	Пентан-3-ил	2-этилбутилокси	Сложный эфир пропил-2-этилгексаноата	2-этил-1-бутанол	170	18,8	17,7	2,6
328	Нонан-3-ил	2-этилбутилокси	Сложный эфир пропил-2-этилгексаноата	2-этил-1-бутанол	170	18,2	17,1	2,6
329	2-бутилоктил	2-этилбутилокси	Сложный эфир пропил-2-этилгексаноата	2-этил-1-бутанол	170	35,3	33,9	1,8
330	Изопентил	2-этилбутилокси	Сложный эфир пропил-2-этилгексаноата	2-этил-1-бутанол	170	26,5	25,6	1,4
331	3-этилпентил	2-этилбутилокси	Пропил Сложный эфир пропил-2-этилгексаноата	2-этил-1-бутанол	170	38,3	37,0	1,5
332	3-бутилгептил	2-этилбутилокси	Сложный эфир пропил-2-этилгексаноата	2-этил-1-бутанол	170	37,0	36,0	1,2

\*15) Полученное количество алкоксида триалкилолова рассчитывали с помощью следующей математической формулы (10).

[Математическая формула 26]

$$\text{Полученное количество алкоксида триалкилолова} = T / (W_1^0 \times S_1^0) \times 100\% \quad (10)$$

где "полученное количество алкоксида триалкилолова" представляет собой количество алкоксида триалкилолова, полученное [%] после непрерывного процесса;

T представляет собой число моль [моль] алкоксида триалкилолова, полученного после непрерывного процесса;

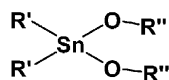
$W_1^0$  представляет собой массу [кг] композиции диалкоксида диалкилолова, введенной в бак с катализатором до непрерывного процесса; и

$S_1^0$  представляет собой концентрацию атомов олова (в активном компоненте) [моль/кг] композиции до непрерывного процесса.

Число моль алкоксида триалкилолова T рассчитывают, исходя из концентрации алкоксида триалкилолова, определенной с помощью спектроскопии  $^{119}\text{Sn}$ -ЯМР, композиции, собранной после непрерывного процесса, и массы композиции диалкоксида диалкилолова, собранной после непрерывного процесса.

Структурная формула диалкоксида диалкилолова.

[Химическая формула 59]



где R' представляет собой  $\text{C}_{1-15}$ алкильную группу и R'' представляет собой  $\text{C}_{1-8}$ алкильную группу. Примеры 333-351.

Композиции диалкоксида диалкилолова, перечисленные в табл. 13, полученные аналогичными способами, как в примерах синтеза 1, 4 и 7, использовали для реакции переэтерификации с помощью циркуляционного реактора непрерывного действия аналогичным способом, как в примере 307. Скорость потока композиции диалкоксида диалкилолова, переносимой из бака с катализатором, корректировали таким



образом, чтобы концентрация атомов олова в реакционной смеси в корпусном реакторе составляла от 1,5 до 2,5 мол.%, и реакцию переэтерификации проводили при температурах, перечисленных в табл. 13, с использованием диалкоксида диалкилолова в качестве катализатора. В табл. 13 показан выход реакции (первоначальный выход) незамедлительно после достижения стабильного состояния, выход реакции и полученное количество алкоксида триалкилолова (полученное количество по отношению к числу моль атомов олова (в активном компоненте), введенного в бак с катализатором до непрерывного процесса), через 15 суток непрерывного процесса.

Таблица 13

Пример	Алкоксид алкилолова		Температура [°C]	Первоначальный выход [в моль-процентах]	Выход [в моль-процентах] (через 15 суток непрерывного процесса)	Полученное количество алкоксида триалкилолова [в моль-процентах] *16) (через 15 суток непрерывного процесса)
	R' (алкильная группа)	OR'' (алкокси-группа)				
333	3-бутилгептил	3-метилбутилокси	170	33,1	32,2	1,2
334	3-бутилгептил	Этокси	150	32,4	31,2	1,6
335	3-бутилгептил	N-бутокси	160	30,0	29,0	1,5
336	2-бутилоктил	N-пентокси	170	32,5	31,4	1,5
337	3-этилпентил	3-метилбутилокси	170	33,8	32,5	1,7
338	3-этилпентил	N-пентокси	170	36,4	35,1	1,5
339	изопентил	N-пентокси	170	24,4	23,3	2,0
340	Нонан-3-ил	N-пентокси	170	15,4	14,1	3,7
341	Изопентил	N-бутокси	160	21,6	21,0	1,3
342	3-этилпентил	Этокси	150	33,1	32,0	1,5
343	Пентан-3-ил	N-бутокси	160	15,0	13,9	3,3
344	Пентан-3-ил	N-пентокси	170	14,7	13,6	3,1
345	2-бутилоктил	3-метилбутилокси	170	31,4	30,1	1,9
346	Пентан-3-ил	3-метилбутилокси	170	14,9	13,8	3,1
347	Пентан-3-ил	Этокси	150	14,6	13,6	2,9
348	Изопентил	3-метилбутилокси	170	22,8	22,2	1,1
349	3-этилпентил	N-бутокси	160	30,9	29,6	2,0
350	Нонан-3-ил	3-метилбутилокси	170	15,2	14,4	2,6
351	Нонан-3-ил	N-бутокси	160	15,2	14,1	3,1

\*16) Полученное количество алкоксида триалкилолова рассчитывали с помощью следующей математической формулы (10).

[Математическая формула 27]

$$\text{Полученное количество алкоксида триалкилолова} = T / (W_1^0 \times S_1^0) \times 100\% \quad (10)$$

где "полученное количество алкоксида триалкилолова" представляет собой количество алкоксида триалкилолова, полученное [%] после непрерывного процесса;

T является общим число моль алкоксида триалкилолова [моль], полученного после непрерывного процесса;

$W_1^0$  представляет собой массу [кг] композиции, введенной в бак с катализатором до непрерывного процесса; и

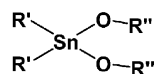
$S_1^0$  представляет собой концентрацию атомов олова (в активном компоненте) [моль/кг] композиции

до непрерывного процесса.

Общее число моль алкоксида триалкилолова Т рассчитывают, исходя из каждой концентрации алкоксида триалкилолова, определенной с помощью спектроскопии  $^{119}\text{Sn}$ -ЯМР и массы композиции диалкоксида диалкилолова, собранной после непрерывного процесса.

Структурная формула диалкоксида диалкилолова.

[Химическая формула 60]



где R' представляет собой C<sub>1-15</sub>алкильную группу и R'' представляет собой C<sub>1-8</sub>алкильную группу.

Примеры 352-374.

Композиции, перечисленные в табл.14, полученные аналогичными способами, как в примерах синтеза 2, 5 и 8, использовали в качестве катализаторов для реакции переэтерификации с помощью циркуляционного реактора непрерывного действия аналогичным способом, как в примере 309. Скорость потока каждой жидкой композиции тетраалкилдиалкоксидистанноксана, переносимой из бака с катализатором, корректировали таким образом, чтобы концентрация атомов олова в реакционной смеси в трубчатом реакторе составляла от 1,5 до 2,5 мол.%, и реакцию переэтерификации проводили при температурах, перечисленных в табл. 14. В табл. 14 показан выход реакции (первоначальный выход) незамедлительно после достижения стабильного состояния, выход реакции и полученное количество алкоксида триалкилолова (полученное количество по отношению к числу моль атомов олова (в активном компоненте), введенного в бак с катализатором до непрерывного процесса), через 15 суток непрерывного процесса.

Таблица 14

Пример	Алкоксид алкилолова		Температура [°C]	Первоначальный выход [в моль-процентах]	Выход [в моль-процентах] (через 15 суток непрерывного процесса)	Полученное количество алкоксида триалкилолова [в моль-процентах] *17) (через 15 суток непрерывного процесса)
	R' (алкильная группа)	OR'' (алкокси-группа)				
352	3-этилпентил	3-метилбутилокси	170	36,5	35,1	1,7
353	Пентан-3-ил	Этокси	160	16,6	15,4	3,2
354	3-бутилгептил	Этокси	160	34,8	33,8	1,3
355	Нонан-3-ил	3-метилбутилокси	170	17,7	16,6	2,9
356	2-бутилоктил	2-метилпропилокси	160	35,7	34,4	1,6
357	3-бутилгептил	2-метилпропилокси	160	37,1	35,8	1,7
358	2-бутилоктил	Этокси	160	33,3	31,9	1,9
359	Нонан-3-ил	N-бутокси	160	17,6	16,3	3,1
360	Пентан-3-ил	3-метилбутилокси	170	17,2	16,3	2,4
361	2-бутилоктил	N-бутокси	160	34,0	32,6	1,8
362	3-этилпентил	Этокси	160	35,9	34,8	1,4
363	3-этилпентил	2-метилпропилокси	160	39,2	38,1	1,3
364	Нонан-3-ил	Этокси	160	17,2	15,9	3,2
365	изопентил	2-метилпропилокси	160	27,1	26,2	1,5
366	Пентан-3-ил	N-бутокси	160	17,4	16,2	3,0
367	изопентил	N-бутокси	160	25,4	24,4	1,7
368	Нонан-3-ил	2-метилпропилокси	160	17,5	16,4	2,8
369	2-бутилоктил	3-метилбутилокси	170	33,8	32,8	1,4

370	3- этилпентил	N-бутокси	160	36,6	35,6	1,2
371	изопентил	3-метилбутилокси	170	25,5	24,4	1,9
372	3- бутилпентил	N-бутокси	160	35,5	34,3	1,5
373	Пентан-3-ил	2- метилпропилокси	160	16,9	15,9	2,7
374	3- бутилпентил	3-метилбутилокси	170	35,4	34,1	1,8

\*17) Полученное количество алкоксида триалкилолова определяли с помощью математической формулы (11).

[Математическая формула 28]

$$\text{Полученное количество алкоксида триалкилолова} = T / (W_2^0 \times S_2^0) \times 100\% \quad (11)$$

где "полученное количество алкоксида триалкилолова" представляет собой количество алкоксида триалкилолова, полученное [%] после непрерывного процесса;

T является общим числом моль алкоксида триалкилолова [моль], полученного после непрерывного процесса;

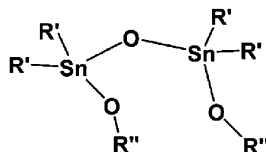
$W_2^0$  представляет собой массу [кг] композиции тетраалкилдиалкоксидистанноксана, введенной в бак с катализатором до непрерывного процесса; и

$S_2^0$  представляет собой концентрацию атомов олова (в активном компоненте) [моль/кг] композиции до непрерывного процесса.

Общее число моль алкоксида триалкилолова T рассчитывают, исходя из каждой концентрации алкоксида триалкилолова, определенной с помощью спектроскопии  $^{119}\text{Sn}$ -ЯМР, и массы композиции тетраалкилдиалкоксидистанноксана, собранной после непрерывного процесса.

Структурная формула тетраалкилдиалкоксидистанноксана.

[Химическая формула 61]



где R' представляет собой  $\text{C}_{1-15}$ алкильную группу и R'' представляет собой  $\text{C}_{1-8}$ алкильную группу.

Примеры 375-396.

Получали композиции, содержащие диалкоксиды диалкилолова и тетраалкилдиалкоксидистанноксаны, перечисленные в табл. 15, полученные аналогичными способами, как в примерах синтеза 1, 2, 4, 5, 7 и 8, и композиции использовали в качестве катализаторов для реакции переэтерификации в циркуляционном реакторе непрерывного действия аналогичным способом, как в примере 310. Каждую композицию получали таким образом, чтобы молярное соотношение атомов олова диалкоксида диалкилолова и тетраалкилдиалкоксидистанноксана по отношению к числу моль атомов олова (в активном компоненте) в композиции, используемой для реакции переэтерификации, составляло 65:35, и вводили в бак с катализатором. Скорость потока композиции, переносимой из бака с катализатором, корректировали таким образом, чтобы концентрация атомов олова в корпусном реакторе составляла от 1,5 до 2,0 мол.%, и реакцию переэтерификации проводили при температурах, перечисленных в табл. 15. В табл. 15 показан выход реакции (первоначальный выход) незамедлительно после достижения стабильного состояния и выход реакции, а также полученное количество алкоксида триалкилолова (полученное количество по отношению к числу моль атомов олова (в активном компоненте), введенного в бак с катализатором до непрерывного процесса), через 15 суток непрерывного процесса.

Таблица 15

Пример	Алкоксид алкилолова		Температура [°C]	Первоначальный выход [в моль-процентах]	Выход [в моль-процентах] (через 15 суток непрерывного процесса)	Полученное количество алкоксида триалкилолова [в моль-процентах] *18) (через 15 суток непрерывного процесса)
	R' (алкильная группа)	OR" (алкокси-группа)				
375	3-бутилгептил	2-метилпропилокси	170	43,2	42,1	1,2
376	3-этилпентил	2-метилпропилокси	170	43,6	42,5	1,2
377	Нонан-3-ил	3-метилбутилокси	170	18,0	17,0	2,5
378	2-метилбутил	2-метилпропилокси	170	34,9	33,5	1,8
379	3-бутилгептил	N-бутоксид	160	39,1	37,8	1,6
380	Пентан-3-ил	Этоксид	160	18,0	16,9	2,6
381	Пентан-3-ил	2-метилпропилокси	170	17,2	16,0	3,0
382	Нонан-3-ил	2-метилпропилокси	170	17,8	16,7	2,7
383	3-бутилгептил	Этоксид	160	40,9	39,4	1,7
384	Нонан-3-ил	N-бутоксид	160	18,6	17,4	2,9
385	2-бутилоксид	Этоксид	160	39,0	38,0	1,1
386	Пентан-3-ил	3-метилбутилокси	170	17,6	16,4	3,1
387	2-этилбутил	3-метилбутилокси	170	41,4	40,3	1,1
388	Изопентил	3-метилбутилокси	170	28,8	27,8	1,5
389	3-этилпентил	N-бутоксид	160	40,0	38,3	1,8
390	Нонан-3-ил	Этоксид	160	18,2	17,1	2,8
391	3-этилпентил	Этоксид	160	41,3	39,5	1,9
392	Изопентил	2-метилпропилокси	170	30,1	28,8	1,9
393	Пентан-3-ил	N-бутоксид	160	18,7	17,5	3,0
394	2-бутилоксид	N-бутоксид	160	36,9	35,7	1,5
395	Изопентил	N-бутоксид	160	27,1	26,2	1,4
396	3-этилпентил	3-метилбутилокси	170	41,9	40,2	1,8

\*18) Полученное количество алкоксида триалкилолова определяли с помощью математической формулы (12).

[Математическая формула 29]

$$\text{Полученное количество алкоксида триалкилолова} = T / (W_3^0 \times S_3^0) \times 100\% \quad (12)$$

где "полученное количество алкоксида триалкилолова" представляет собой количество алкоксида триалкилолова, полученного [%] после непрерывного процесса;

T является общим числом моль алкоксида триалкилолова [моль], полученного после непрерывного процесса;

$W_3^0$  представляет собой массу [кг] композиции алкоксида алкилолова, введенной в бак с катализатором перед непрерывным процессом; и

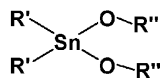
$S_3^0$  представляет собой концентрацию атомов олова (в активном компоненте) [моль/кг] композиции перед непрерывным процессом (рассчитанную, исходя из концентрации тетраалкилдиалкоксидистанноксана и концентрации диалкоксида диалкилолова в композиции).

Общее число моль алкоксида триалкилолова T рассчитывают, исходя из концентрации алкоксида триалкилолова, определенной с помощью спектроскопии  $^{119}\text{Sn}$ -ЯМР, и массы алкоксида алкилолова ком-

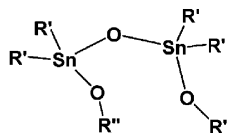
позиции, собранной после непрерывного процесса.

Структурные формулы диалкоксида диалкилолова и тетраалкилдиалкоксидистанноксана в композиции алкоксида алкилолова

[Химическая формула 62]



[Химическая формула 63]



где R' представляет собой C<sub>1-15</sub>алкильную группу и R'' представляет собой C<sub>1-8</sub>алкильную группу.

Примеры 397-416.

Композиции, содержащие диалкоксиды диалкилолова, тетраалкилдиалкоксидистанноксаны и алкоксиды триалкилолова, перечисленные в табл. 16, полученные аналогичными способами, как в примерах синтеза 3 и 6, использовали в качестве катализаторов для реакции переэтерификации в циркуляционном реакторе непрерывного действия аналогичным способом, как в примере 310. Концентрацию атомов олова (в активном компоненте) композиции рассчитывали, исходя из концентрации тетраалкилдиалкоксидистанноксана и концентрации диалкоксида диалкилолова композиции. Скорость потока композиции, переносимой из бака с катализатором, корректировали таким образом, чтобы концентрация атомов олова в корпусном реакторе составляла 1,5 до 2,0 мол.%, и реакцию переэтерификации проводили при температурах, перечисленных в табл. 16. В табл. 16 показан выход реакции (первоначальный выход) незамедлительно после достижения стабильного состояния и выход реакции, а также полученное количество алкоксида триалкилолова (полученное количество по отношению к числу моль атомов олова (в активном компоненте), введенного в бак с катализатором до непрерывного процесса), через 15 суток непрерывного процесса.

Таблица 16

Пример	Алкоксид алкилолова		Температура [°C]	Первоначальный выход [в моль-процентах]	Выход [в моль-процентах] (через 15 суток непрерывного процесса)	Полученное количество алкоксида триалкилолова [в моль-процентах] *19) (через 15 суток непрерывного процесса)
	R' (алкильная группа)	OR'' (алкокси-группа)				
397	3-бутилгептил	3-метилбутилокси	170	44,2	42,7	1,6
398	Изопентил	3-метилбутилокси	170	30,6	29,6	1,4
399	2-этилбутил	N-бутоксид	160	41,4	39,8	1,7
400	Нонан-3-ил	N-пентоксид	160	18,5	17,0	3,7
401	2-бутилоктил	3-метилбутилокси	170	42,2	40,8	1,4
402	Изопентил	N-бутоксид	160	28,8	27,8	1,4
403	Пентан-3-ил	N-бутоксид	160	19,4	18,0	3,3
404	2-метилбутил	N-бутоксид	160	33,5	32,5	1,3
405	2-этилбутил	3-метилбутилокси	170	44,5	42,5	1,9
406	изопентил	N-пентоксид	160	31,6	30,8	1,1
407	Пентан-3-ил	3-метилбутилокси	170	17,6	16,5	2,7
408	Нонан-3-ил	3-метилбутилокси	170	18,0	16,8	2,8
409	3-бутилгептил	N-пентоксид	160	46,2	45,1	1,1
410	3-этилпентил	N-бутоксид	160	42,1	40,4	1,8
411	Пентан-3-ил	N-пентоксид	160	18,1	16,7	3,6
412	2-этилбутил	N-пентоксид	160	46,7	45,3	1,2
413	Нонан-3-ил	N-бутоксид	160	19,1	17,8	3,1
414	3-этилпентил	3-метилбутилокси	170	45,2	43,9	1,3
415	3-бутилгептил	N-бутоксид	160	41,8	40,2	1,7
416	2-бутилоктил	N-пентоксид	160	43,9	42,4	1,5

\*19) Полученное количество алкоксида триалкилолова определяли с помощью математической формулы (12).

[Математическая формула 30]

$$\text{Полученное количество алкоксида триалкилолова} = T / (W_3^0 \times S_3^0) \times 100\% \quad (12)$$

где "полученное количество алкоксида триалкилолова" представляет собой количество алкоксида триалкилолова, полученного [%] после непрерывного процесса;

T представляет собой общее число моль алкоксида триалкилолова [моль], полученного после непрерывного процесса;

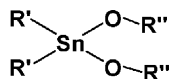
$W_3^0$  представляет собой массу [кг] композиции, введенной в бак с катализатором до непрерывного процесса; и

$S_3^0$  представляет собой концентрацию атомов олова (в активном компоненте) [моль/кг] композиции до непрерывного процесса (рассчитанную, исходя из концентрации тетраалкилдиалкоксидистанноксана и концентрации диалкоксида диалкилолова в композиции).

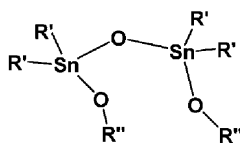
Общее число моль алкоксида триалкилолова T рассчитывают, исходя из каждой концентрации алкоксида триалкилолова, определенной с помощью спектроскопии  $^{119}\text{Sn}$ -ЯМР, и массы композиции алкоксида алкилолова, собранной после непрерывного процесса.

Структурные формулы диалкоксида диалкилолова, тетраалкилдиалкоксидистанноксана и алкоксида триалкилолова в композиции алкоксида алкилолова.

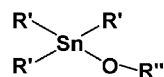
[Химическая формула 64]



[Химическая формула 65]



[Химическая формула 66]



где R' представляет собой C<sub>1-15</sub>алкильную группу и R'' представляет собой C<sub>1-8</sub>алкильную группу.

Пример 417.

Циркуляционный реактор непрерывного действия, включающий корпусной реактор и башенный реактор, как показано на фиг. 4, использовали для синтеза сложного эфира угольной кислоты. Приблизительно 30 кг композиции 1,1,3,3-тетраakis-(3-метилбутил)-1,3-бис-(3-метилбутоксидистанноксана, полученной посредством способа примера синтеза 5 (с концентрацией атомов олова (в активном компоненте) композиции: 2,76 моль/кг), помещали в бак с катализатором SUS316660, оснащенный нагревательной рубашкой и насосом для перемещения жидкости, через линию поставки 78. Бак с катализатором 660 нагревали паром для сохранения реологического свойства содержимого. Бак и трубы также обогревали паром для сохранения реологического свойства. Башенный реактор SUS316620 с внутренним диаметром 76 мм и расчетной длиной 4500 мм, оснащенный 30 ситчатыми тарелками, нагревали и термоизолировали с помощью обогревателя по всей площади башенного реактора для предотвращения потери излучаемого тепла, обогреватель установили на уровне приблизительно 150°C. Насос для перемещения жидкости и ребойлер 622 помещали на дно башенного реактора 620 и ребойлер 622 нагревали паром от 155°C до 160°C.

Композицию 1,1,3,3-тетраakis-(3-метилбутил)-1,3-бис-(3-метилбутоксидистанноксана переносили в башенный реактор 620 из бака с катализатором 660 через линию транспортировки 74, поточный смеситель 621, оснащенный нагревательной рубашкой, и линию транспортировки 65 при 6,5 кг/ч и 3-метил-1-бутиловый спирт, очищенный на дистилляционной колонке 610, переносили при 25 кг/ч через линию транспортировки 63 и линию транспортировки 64. Фракцию, содержащую воду и 3-метил-1-бутиловый спирт, переносили с верха башенного реактора 620 в дистилляционную колонку 610 (дистилляционную колонку, заполненную наполнителем MetalGauze CY, с внутренним диаметром 83 мм, расчетной длиной 3000 мм) через линию транспортировки 66 приблизительно при 22 кг/ч, и воду отделяли. Воду собирали из коллекторной линии 62 посредством конденсатора 611. Композицию алкоксида алкилолова, содержащую бис-(3-метилбутил)-бис-(3-метилбутоксидолова и 1,1,3,3-тетраakis-(3-метилбутил)-1,3-бис-(3-метилбутоксидистанноксан, получали с верха башенного реактора, и согласно результату проведенного анализа образца композиции алкоксида алкилолова, взятого из линии транспортировки 67, содержание бис-(3-метилбутил)-бис-(3-метилбутоксидолова составляло 89% по массе.

Стадия (1). Получение сложного эфира угольной кислоты из реакции композиции алкоксида алкилолова с диоксидом углерода.

Композицию алкоксида алкилолова, содержащую бис-(3-метилбутил)-бис-(3-метилбутоксидолова и 1,1,3,3-тетраakis-(3-метилбутил)-1,3-бис-(3-метилбутоксидистанноксан, переносили в автоклав 630 объемом 15 л, оснащенный нагревательной рубашкой и насосом для перемещения жидкости через линию транспортировки 67, и подвергали реакции с диоксидом углерода, снабженным через линию поставки 68, при температуре 120°C и давлении 4 мПа-Г. Образец реакционной смеси, взятый из автоклава 630, был прозрачным, и согласно результатам проведенного анализа реакционной смеси, выход бис-(3-метилбутил)карбоната составлял 43%, исходя из бис-(3-метилбутил)-бис-(3-метилбутоксидолова.

Стадия (2). Отделение сложного эфира угольной кислоты из реакционной смеси для получения остаточного раствора.

Тонкоплочный испаритель 640 и тонкоплочный испаритель 650, оснащенные нагревательной рубашкой и насосом для перемещения жидкости для переноса компонента с высокой температурой кипения, нагревали с использованием пара при 150°C.

Реакционную смесь, полученную на стадии (1), переносили через линию транспортировки 71 в тонкоплочный испаритель 640 с установленным давлением 26 кПа абс. и сначала избыток диоксида углерода отделяли и собирали из линии продувки 70. Реакционную смесь переносили через линию транспортировки 71 в тонкоплочный испаритель 650 с предварительно установленным давлением 1,3 кПа абс., фракцию, содержащую бис-(3-метилбутил)карбонат, собирали через линию транспортировки 72 и бис-(3-метилбутил)карбонат дополнительно очищали посредством дистилляционной колонки 670 (дис-

тилляционной колонки, заполненной наполнителем MetalGauze CY, с внутренним диаметром 83 мм, расчетной длиной 2800 мм). В отдельности остаточный раствор, содержащий 1,1,3,3-тетраakis-(3-метилбутил)-1,3-бис-(3-метилбутоксидистанноксан, собирали из линии транспортировки 73 и переносили в бак с катализатором 660.

Стадия (3). Получение алкоксида алкилолова из реакции остаточного раствора и спирта.

Остаточный раствор, полученный на стадии (2), снова переносили в башенный реактор 620 через линию транспортировки 74, поточный смеситель 621 и линию транспортировки 65 и подвергали реакции с 3-метил-1-бутиловым спиртом, перенесенным через линию транспортировки 63 и линию транспортировки 64. Фракцию, содержащую воду и 3-метил-1-бутиловый спирт, переносили с верха башенного реактора 620 в дистилляционную колонку 610 через линию транспортировки 66 приблизительно при 22 кг/ч и воду отделяли. Воду собирали из коллекторной линии 62 посредством конденсатора 611. Композицию алкоксида алкилолова, содержащую бис-(3-метилбутил)-бис-(3-метилбутоксидистанноксана и 1,1,3,3-тетраakis-(3-метилбутил)-1,3-бис-(3-метилбутоксидистанноксана, получали со дна башенного реактора 620, и согласно результату проведенного анализа образца композиции алкоксида алкилолова, взятого из линии транспортировки 67, содержание бис-(3-метилбутил)-бис-(3-метилбутоксидистанноксана составляло 90% по массе.

При необходимости поставку из линии транспортировки 63 и линии транспортировки 65 в башенный реактор 620 уменьшали или прерывали для установления стабильного состояния внутри системы. Вышеуказанные стадии (1), (2) и (3) проводили непрерывно и после достижения стабильного состояния системы продолжали проведение стадий в течение 15 суток. Согласно результатам проведенного далее анализа образца реакционной смеси, взятого из автоклава 630, выход бис-(3-метилбутил) карбоната составил 42% на основании бис-(3-метилбутил)-бис-(3-метилбутоксидистанноксана. В течение непрерывного процесса бис-(3-метилбутил)карбонат стабильно получали из коллекторной линии 76 приблизительно при 1,2 кг/ч. Компонент с высокой температурой кипения, содержащий композицию алкоксида алкилолова, в циркуляционном реакторе непрерывного действия после непрерывного процесса отделяли с использованием тонкоплочного испарителя 640 и тонкоплочного испарителя 650 и собирали в баке с катализатором 660.

Затем из трубопровода отбора пара 79 брали образец композиции алкоксида алкилолова в баке с катализатором 660, и согласно результату спектроскопии  $^{119}\text{Sn}$ -ЯМР подтвердилось присутствие бис-(3-метилбутил)-бис-(3-метилбутоксидистанноксана, 1,1,3,3-тетраakis-(3-метилбутил)-1,3-бис-(3-метилбутоксидистанноксана и трис-(3-метилбутил)(3-метилбутоксидистанноксана после непрерывного процесса. Исходя из результатов анализа, получали приблизительно 0,37 моль трис-(3-метилбутил)(3-метилбутоксидистанноксана через 15 суток непрерывного процесса, количество составляло приблизительно 0,9 мол.% по отношению к числу моль атомов олова (в активном компоненте) композиции, введенной в бак с катализатором до непрерывного процесса.

Пример 418.

Циркуляционный реактор непрерывного действия, включающий корпусной реактор и башенный реактор, как показано на фиг. 5, использовали для синтеза сложного эфира угольной кислоты. Приблизительно 35 кг композиции 1,1,3,3-тетраakis-(3-метилбутил)-1,3-дибутокси-дистанноксана, полученной аналогичным способом, как в примере синтеза 2 (с концентрацией атомов олова (в активном компоненте) композиции 2,88 моль/кг), вводили в бак с катализатором SUS316 770, оснащенный нагревательной рубашкой и насосом для перемещения жидкости через линию поставки 107. Бак с катализатором 770 нагревали паром для сохранения реологического свойства содержимого. Бак и трубы также обогревали паром для сохранения реологического свойства.

Корпусной реактор 710 представлял собой реактор объемом 10 л, оснащенный нагревательной рубашкой и насосом для перемещения жидкости, и композицию 1,1,3,3-тетраakis-(3-метилбутил)-1,3-дибутокси-дистанноксана переносили в корпусной реактор 710 через линию транспортировки 109, поточный смеситель 711 и линию транспортировки 110 при 6,5 кг/ч и н-бутиловый спирт, очищенный на дистилляционной колонке 720, переносили при 25 кг/ч через линию транспортировки 93, сборный бак 724, линию транспортировки 94, поточный смеситель 711 и линию транспортировки 110. Реакционную смесь переносили со дна корпусного реактора 710 через линию транспортировки 95 в башенный реактор 730 и также подвергали реакции с одномоментной отгонкой фракции, содержащей воду и н-бутиловый спирт с верха башенного реактора. Фракцию переносили через линию транспортировки 96 в дистилляционную колонку 720 (дистилляционную колонку, заполненную наполнителем MetalGauze CY, с внутренним диаметром 83 мм, расчетной длиной 3000 мм) приблизительно при 23 кг/ч и воду и н-бутиловый спирт отделяли. Воду собирали из коллекторной линии 92 посредством конденсатора 721. Композицию алкоксида алкилолова, содержащую бис-(3-метилбутил)дibuтоксидистанноксана и 1,1,3,3-тетраakis-(3-метилбутил)-1,3-дibuтоксидистанноксана, получали со дна башенного реактора 730, и согласно результату анализа образца композиции алкоксида алкилолова, взятого из линии транспортировки 97, содержание бис-(3-метилбутил)дibuтоксидистанноксана составляло 83% по массе.

Стадия (1). Получение сложного эфира угольной кислоты из реакции композиции алкоксида алкилолова с диоксидом углерода.



Композицию алкоксида алкилолова, содержащую бис-(3-метилбутил)дибутоксиолова и 1,1,3,3-тетраakis-(3-метилбутил)-1,3-дибутоксидистанноксан, переносили в автоклав 740 объемом 15 л, оснащенный нагревательной рубашкой и насосом для перемещения жидкости, через линию транспортировки 97 и подвергали реакции с диоксидом углерода, снабженным через линию поставки 98, при температуре 140°C и давлении 4 мПа-Г. Образец реакционной смеси, взятый из автоклава 740, был прозрачным, и согласно результатам проведенного анализа реакционной смеси, выход полученного дибутилкарбоната составлял 43%, исходя из бис-(3-метилбутил)дибутоксиолова.

Стадия (2). Отделение сложного эфира угольной кислоты из реакционной смеси для получения остаточного раствора.

Тонкопленочные испарители 750 и 760, оснащенные нагревательной рубашкой и насосом для перемещения жидкости для переноса компонента с высокой температурой кипения, нагревали с использованием пара при 140°C. Реакционную смесь, полученную на стадии (1), переносили через линию транспортировки 99 в тонкопленочный испаритель 750 с установленным давлением 26 кПа абс. и сначала избыток диоксида углерода отделяли и собирали из линии продувки 100. Реакционную смесь переносили через линию транспортировки 101 в тонкопленочный испаритель 760 с предварительно установленным давлением 2,6 кПа абс., фракцию, содержащую дибутилкарбонат, собирали через линию транспортировки 102, и дибутилкарбонат дополнительно очищали посредством дистилляционной колонки 780 (дистилляционной колонки, заполненной наполнителем MetalGauze CY, с внутренним диаметром 83 мм, расчетной длиной 2800 мм). В отдельности остаточный раствор, содержащий 1,1,3,3-тетраakis-(3-метилбутил)-1,3-дибутоксидистанноксан, собирали из линии транспортировки 103 и переносили в бак с катализатором 770.

Стадия (3). Получение алкоксида алкилолова из реакции остаточного раствора и спирта.

Остаточный раствор, полученный на стадии (2), снова переносили в корпусной реактор 710 через линию транспортировки 109 при 6,5 кг/ч и подвергали реакции с н-бутиловым спиртом, перенесенным через линию транспортировки 94, поточный смеситель 711 и линию транспортировки 110.

Реакционную смесь переносили со дна корпусного реактора 710 через линию транспортировки 95 в башенный реактор 730 и дополнительно подвергали реакции при одномоментной отгонке фракции, содержащей воду и н-бутиловый спирт на вершину башенного реактора. Фракцию переносили в дистилляционную колонку 720 через линию транспортировки 96 приблизительно при 23 кг/ч и воду и н-бутиловый спирт отделяли. Воду собирали из коллекторной линии 92 посредством конденсатора 721. Композицию алкоксида алкилолова, содержащую бис-(3-метилбутил)дибутоксиолова и 1,1,3,3-тетраakis-(3-метилбутил)-1,3-дибутоксидистанноксан, получали со дна башенного реактора 730, и согласно результатам анализа образца композиции алкоксида алкилолова, взятого из линии транспортировки 97, содержание бис-(3-метилбутил)дибутоксиолова составляло 82% по массе.

При необходимости, поставку из линии транспортировки 109 и линии транспортировки 94 в корпусной реактор 710 уменьшали или прерывали для установления стабильного состояния внутри системы. Вышеуказанные стадии (1)-(3) проводили непрерывно и после достижения стабильного состояния системы продолжали проведение стадий в течение 15 суток. Согласно результатам проведенного далее анализа образца реакционной смеси, взятого из автоклава 740, выход полученного дибутилкарбоната составлял 42%, исходя из бис-(3-метилбутил)дибутоксиолова. Дибутилкарбонат стабильно получали из коллекторной линии 105 приблизительно при 1 кг/ч. Компонент с высокой температурой кипения, содержащий композицию алкоксида алкилолова, в циркуляционном реакторе непрерывного действия после непрерывного процесса разделяли с использованием тонкопленочного испарителя 750 и тонкопленочного испарителя 760 и собирали в баке с катализатором 770. Затем из трубопровода отбора пара 108 брали образец композиции алкоксида алкилолова в баке с катализатором 770, и в результате проведенной спектроскопии <sup>119</sup>Sn-ЯМР подтверждалось присутствие бис-(3-метилбутил)дибутоксиолова, 1,1,3,3-тетраakis-(3-метилбутил)-1,3-дибутоксидистанноксана и трис-(3-метилбутил)бутоксиолова после непрерывного процесса. Исходя из результатов проведенного анализа, получали приблизительно 0,91 моль трис-(3-метилбутил)бутоксиолова через 15 суток непрерывного процесса, количество составляло приблизительно 0,9 мол.% по отношению к числу моль атомов олова (в активном компоненте) композиции, введенной в бак с катализатором до непрерывного процесса.

Примеры 419-429.

Синтез сложного эфира угольной кислоты проводили с помощью циркуляционного реактора непрерывного действия аналогичным способом, как в примере 417. Тетраалкилдиалкоксидистанноксаны, перечисленные в табл. 17, получали аналогичными способами, как в примерах синтеза 2, 5 и 8, и приблизительно 30 кг каждого вводили в бак с катализатором. Спирт с аналогичной алкоксигруппой в качестве алкоксигруппы алкоксида алкилолова использовали для синтеза сложного эфира угольной кислоты с помощью автоклава 630, при условиях температуры и давления, перечисленных в табл. 17. Стадии (1)-(3) непрерывно проводили в течение 15 суток аналогичным образом, как в примере 417. В табл. 17 показан первоначальный выход сложного эфира угольной кислоты незамедлительно после достижения стабильного состояния и выход сложного эфира угольной кислоты, а также полученное количество алкоксида

триалкилолова (полученное количество по отношению к числу моль атомов олова (в активном компоненте) композиции, введенной в бак с катализатором до непрерывного процесса) через 15 суток непрерывного процесса.

Таблица 17

Пример	Алкоксид алкилолова		Температура [°C]	Давление CO <sub>2</sub> [МПа-Г]	Первоначальный выход сложного эфира угольной кислоты [в моль-процентах]	Выход сложного эфира угольной кислоты [в моль-процентах] (через 15 суток непрерывного процесса)	Полученное количество алкоксида триалкилолова [в моль-процентах] *20) (через 15 суток непрерывного процесса)
	R' (алкилы ая группа)	R'' (алкокси- группа)					
419	3-бутилнонил	N-бутокси	125	4,0	40,6	40,2	0,8
420	Изопентил	N-пентокси	110	4,5	40,9	40,2	0,8
421	3-этилгептил	2-метилпропилокси	110	4,5	41,6	41,2	0,7
422	2-бутилоктил	N-пентокси	125	4,0	42,1	41,8	0,5
423	изопропил	2-метилпропилокси	110	4,5	42,9	42,2	1,5
424	3-этилгептил	N-бутокси	125	4,0	42,6	42,1	0,9
425	изопропил	N-бутокси	125	4,0	44,8	44,0	1,7
426	Нонан-3-ил	N-пентокси	110	4,5	42,6	42,1	1,5
427	3-бутилнонил	N-пентокси	110	4,5	40,1	39,7	0,7
428	2-этилгексил	2-метилпропилокси	110	4,5	40,6	40,3	0,5
429	Нонан-3-ил	N-пентокси	125	4,0	44,1	43,4	1,5

\*20) Полученное количество алкоксида триалкилолова определяли с помощью математической формулы (11).

[Математическая формула 31]

$$\text{Полученное количество алкоксида триалкилолова} = T / (W_2^0 \times S_2^0) \times 100\% \quad (11)$$

где "полученное количество алкоксида триалкилолова" представляет собой количество алкоксида триалкилолова, полученное [%] после непрерывного процесса;

T представляет собой число моль [моль] алкоксида триалкилолова, полученного после непрерывного процесса;

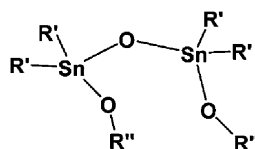
$W_2^0$  представляет собой массу [кг] композиции тетраалкилдиалкоксидистанноксана, введенной в бак с катализатором до непрерывного процесса; и

$S_2^0$  представляет собой концентрацию атомов олова (в активном компоненте) [моль/кг] композиции до непрерывного процесса.

Число моль алкоксида триалкилолова T рассчитывают, исходя из концентрации алкоксида триалкилолова, определенной с помощью спектроскопии <sup>119</sup>Sn-ЯМР, и массы композиции, собранной после непрерывного процесса.

Структурная формула тетраалкилдиалкоксидистанноксана.

[Химическая формула 67]



где R' представляет собой C<sub>1-15</sub>алкильную группу и R'' представляет собой C<sub>1-8</sub>алкильную группу.  
Примеры 430-440.

Синтез сложного эфира угольной кислоты проводили с помощью циркуляционного реактора непрерывного действия аналогичным способом, как в примере 418. Алкоксиды алкилолова, перечисленные в табл. 18, получали аналогичными способами, как в примерах синтеза 2, 5 и 8, и вводили в бак с катализатором. Спирт с аналогичной алкоксигруппой в качестве алкоксигруппы алкоксида алкилолова использовали для синтеза сложного эфира угольной кислоты при условиях температуры и давления, перечисленных в табл. 18, и стадии (1)-(3) проводили непрерывно в течение 15 суток аналогичным образом, как в примере 418. В табл. 18 показан первоначальный выход сложного эфира угольной кислоты незамедлительно после достижения стабильного состояния и выход сложного эфира угольной кислоты, а также полученное количество алкоксида триалкилолова (полученное количество по отношению к числу моль атомов олова (в активном компоненте) композиции, введенной в бак с катализатором до непрерывного процесса) через 15 суток непрерывного процесса.

Таблица 18

Пример	Алкоксид алкилолова		Температура [°C]	Давление CO <sub>2</sub> [МПа-G]	Первоначальный выход сложного эфира угольной кислоты [в моль-процентах]	Выход сложного эфира угольной кислоты [в моль-процентах] (через 15 суток непрерывного процесса)	Полученное количество алкоксида триалкилолова [в моль-процентах] *21) (через 15 суток непрерывного процесса)
	R' (алкильная группа)	R'' (алкокси- группа)					
430	3- этилгептил	2- этилбутилокси	105	4,5	40,1	39,5	1,3
431	Изопропил	3- метилбутилокси	120	4,0	44,3	43,3	1,8
432	3- бутилнонил	3- метилбутилокси	120	4,0	41,1	40,5	1,1
433	Изопропил	2- этилбутилокси	105	4,5	37,8	37,0	2,1
434	3- бутилнонил	2- этилбутилокси	105	4,5	38,5	38,0	1,2
435	2- Бутилоктил	2- этилбутилокси	105	4,5	40,2	39,7	0,8
436	3- этилгептил	3- метилбутилокси	120	4,0	42,5	42,0	1,1
437	Нонан-3-ил	3- метилбутилокси	120	4,0	44,2	43,3	1,9
438	Нонан-3-ил	2- этилбутилокси	105	4, <sup>5</sup>	37,4	36,6	2,0
439	2- этилгексил	3- метилбутилокси	120	4,0	40,6	40,2	0,7
440	Изопентил	3- метилбутилокси	120	4,0	42,1	41,5	1,2

\*21) Полученное количество алкоксида триалкилолова определяли с помощью математической формулы (11).

[Математическая формула 32]

$$\text{Полученное количество алкоксида триалкилолова} = T / (W_2^0 \times S_2^0) \times 100\% \quad (11)$$

где "полученное количество алкоксида триалкилолова" представляет собой количество алкоксида триалкилолова, полученного [%] после непрерывного процесса;

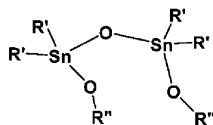
T представляет собой число моль [моль] алкоксида триалкилолова, полученного после непрерывного процесса;

W<sub>2</sub><sup>0</sup> представляет собой массу [кг] композиции тетраалкилдиалкоксидистанноксана, введенной в бак с катализатором до непрерывного процесса; и

S<sub>2</sub><sup>0</sup> представляет собой концентрацию атомов олова (в активном компоненте) [моль/кг] композиции до непрерывного процесса.

Число моль алкоксида триалкилолова Т рассчитывают, исходя из концентрации алкоксида триалкилолова, определенной с помощью спектроскопии  $^{119}\text{Sn}$ -ЯМР, и массы композиции, собранной после непрерывного процесса.

Структурная формула тетраалкилдиалкоксидистанноксана.  
[Химическая формула 68]



где R' представляет собой C<sub>1-15</sub>алкильную группу и R'' представляет собой C<sub>1-8</sub>алкильную группу.  
Примеры 441-467.

Композиции, содержащие смеси диалкоксидов диалкилолова, тетраалкилдиалкоксидистанноксанов и алкоксидов триалкилолова со структурами, перечисленными в табл. 19, синтезировали аналогичными способами, как в примерах синтеза 3 и 6. Композиции алкоксида алкилолова использовали для синтеза сложного эфира угольной кислоты с помощью циркуляционного реактора непрерывного действия аналогичным способом, как в примере 417. Спирт с аналогичной алкоксигруппой в качестве алкоксигруппы алкоксида алкилолова использовали для синтеза сложного эфира угольной кислоты с помощью автоклава 630 при условиях температуры и давления, перечисленных в табл. 19. Стадии (1)-(3) непрерывно проводили в течение 15 суток аналогичным образом, как в примере 417. Выход сложного эфира угольной кислоты после непрерывного процесса показан в табл. 19.

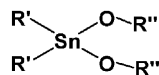
Таблица 19

Пример	Алкоксид диалкилолова		Первоначальная концентрация алкоксида триалкилолова [атомы олова в моль-процентах]	Температура [°C]	Давление CO <sub>2</sub> [мПа-G]	Выход сложного эфира угольной кислоты [в моль-процентах]	Выход сложного эфира угольной кислоты [в моль-процентах] (через 15 суток непрерывного процесса)
	R' (алкильная группа)	OR'' (алкокси-группа)					
441	Нонан-3-ил	N-бутоксн	12	125	4,0	38,8	38,3
442	Изобутил	N-бутоксн	13	125	4,0	36,8	36,5
443	3-этилгептил	N-бутоксн	11	125	4,0	37,9	37,5
444	Нонан-3-ил	3-метилбутилуксн	11	120	4,0	39,3	38,6
445	изобутил	3-метилбутилуксн	11	120	4,0	36,4	35,7
446	3-этилгептил	3-метилбутилуксн	12	120	4,0	37,4	37,0
447	Нонан-3-ил	2-этилбутилуксн	11	105	4,5	33,2	32,6
448	Изобутил	2-этилбутилуксн	12	105	4,5	34,0	33,5
449	3-этилгептил	2-этилбутилуксн	12	105	4,5	35,3	34,8
450	Нонан-3-ил	N-бутоксн	26	125	4,0	32,6	32,2
451	Изобутил	N-бутоксн	25	125	4,0	30,7	30,4
452	3-этилгептил	N-бутоксн	25	125	4,0	31,9	31,6
453	Нонан-3-ил	3-метилбутилуксн	26	120	4,0	32,7	32,1
454	Изобутил	3-метилбутилуксн	25	120	4,0	30,6	30,1
455	3-этилгептил	3-метилбутилуксн	25	120	4,0	31,9	31,5
456	Нонан-3-ил	2-этилбутилуксн	25	105	4,5	28,0	27,5
457	Изобутил	2-этилбутилуксн	26	105	4,5	28,6	28,2
458	3-этилгептил	2-этилбутилуксн	26	105	4,5	29,7	29,3
459	Нонан-3-ил	N-бутоксн	44	125	4,0	24,7	24,4
460	Изобутил	N-бутоксн	45	125	4,0	22,6	22,3
461	3-этилгептил	N-бутоксн	44	125	4,0	23,8	23,6
462	Нонан-3-ил	3-метилбутилуксн	45	120	4,0	24,3	23,9

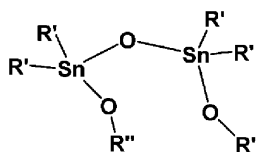
463	Изобутил	3-метилбутилокси	46	120	4,0	21,9	21,7
464	3-этилгептил	3-метилбутилокси	45	120	4,0	23,4	23,1
465	Нона-3-ил	2-этилбутилокси	46	105	4,5	20,2	19,8
466	Изобутил	2-этилбутилокси	45	105	4,5	21,3	21,0
467	3-этилгептил	2-этилбутилокси	45	105	4,5	22,1	21,8

Структурные формулы диалкоксида диалкилолова, тетраалкилдиалкоксидистанноксана и алкоксида триалкилолова в композиции алкоксида алкилолова.

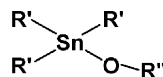
[Химическая формула 69]



[Химическая формула 70]



[Химическая формула 71]



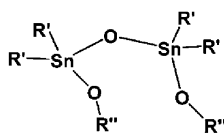
где R' представляет собой C<sub>1-15</sub>алкильную группу и R'' представляет собой C<sub>1-8</sub>алкильную группу. Сравнительные примеры 1-8.

Композиции тетраалкилдиалкоксидистанноксана со структурами, перечисленными в табл. 20, синтезировали аналогичным способом, как в примере синтеза 9. Затем композиции использовали аналогичным способом, как в примере 3, для пробного испытания в циркуляционном реакторе непрерывного действия. Каждую композицию вводили в бак с катализатором циркуляционного реактора непрерывного действия, показанного на фиг. 3, и проводили циркуляционный процесс. В табл. 20 показан процент снижения концентрации атомов олова в композиции после циркуляционного процесса и полученное количество алкоксида триалкилолова (полученное количество по отношению к концентрации атомов олова композиции тетраалкилдиалкоксидистанноксана, введенной в бак с катализатором до непрерывного процесса).

Таблица 20

Сравнительный пример	Алкоксид алкилолова		Непрерывное время [в сутках]	Процент снижения концентрации атомов олова раствора композиции тетраалкилдиалкокси- дистанноксана [%]	Полученное количество алкоксида триалкилолова [в моль-процентах]
	R' (алкильная группа)	OR'' (алкокси-группа)			
1	Метил	Этокси	2	95	47
2	Фенил	Этокси	3	82	41
3	N-бутил	Этокси	5	35	19
4	N-октил	Этокси	5	23	12
5	Метил	2-метилпропилокси	3	90	44
6	Фенил	2-метилпропилокси	3	76	39
7	N-бутил	2-метилпропилокси	5	30	15
8	N-октил	2-метилпропилокси	5	21	10

Структурная формула тетраалкилдиалкоксидистанноксана.  
[Химическая формула 72]



где R' представляет собой C<sub>1-8</sub>-алкильную или фенильную группу и R'' представляет собой C<sub>1-8</sub>-алкильную группу.

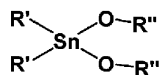
Сравнительные примеры 9-16.

Композиции диалкоксида диалкилолова со структурами, перечисленными в табл. 21, синтезировали аналогичным способом, как в примере синтеза 10. Затем композиции диалкоксида диалкилолова использовали для пробного испытания в циркуляционном реакторе непрерывного действия аналогичным способом, как в примере 5. Каждую композицию диалкоксида диалкилолова вводили в бак с катализатором циркуляционного реактора непрерывного действия, показанного на фиг. 5, для осуществления циркуляционного процесса. В табл. 21 показан процент снижения концентрации атомов олова в композициях после циркуляционного процесса и полученное количество алкоксида триалкилолова (полученное количество по отношению к концентрации атомов олова композиций диалкоксида диалкилолова, введенных в бак с катализатором до непрерывного процесса).

Таблица 21

Сравнительный пример	Алкоксид алкилолова		Непрерывное время [в сутках]	Процент снижения концентрации диалкоксида диалкилолова [%]	Полученное количество алкоксида триалкилолова [в моль-процентах]
	R' (алкильная группа)	OR'' (алкокси-группа)			
9	Метил	Этокси	4	78	41
10	Фенил	Этокси	4	68	36
11	N-бутил	Этокси	5	27	14
12	N-октил	Этокси	5	17	8,8
13	Метил	2-метилпропилокси	4	68	37
14	Фенил	2-метилпропилокси	4	57	31
15	N-бутил	2-метилпропилокси	5	23	12
16	N-октил	2-метилпропилокси	5	15	7,5

Структурная формула диалкоксида диалкилолова.  
[Химическая формула 73]



где R' представляет собой C<sub>1-8</sub>-алкильную или фенильную группу и R'' представляет собой C<sub>1-8</sub>-алкильную группу.

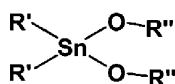
Сравнительные примеры 17-24.

Композиции диалкоксида диалкилолова со структурами, перечисленными в табл. 22, синтезировали аналогичным способом, как в примере синтеза 10. Каждую композицию диалкоксида диалкилолова использовали для реакции переэтерификации аналогичным способом, как в примере 306, с корректировкой таким образом, чтобы концентрация атомов олова реакционной смеси составляла приблизительно от 1,5 до 2,5 мол.%. В табл. 22 показан первоначальный выход и выход реакции после непрерывного процесса для реакции переэтерификации, а также полученное количество алкоксида триалкилолова (полученное количество по отношению к числу моль атомов композиций диалкоксида диалкилолова, введенных в бак с катализатором до непрерывного процесса).

Таблица 22

Сравнительный пример	Алкоксид алкилолова		Исходные вещества для реакции переэтерификации		Температура [°C]	Первоначальный выход [в моль-процентах]	Выход [в моль-процентах] (15 суток непрерывного процесса)	Полученное количество алкоксида триалкилолова [в моль-процентах] (через 15 суток непрерывного процесса)
	R' (алкильная группа)	OR'' (алкокси-группа)	Сложный эфир карбоновой кислоты	Спирт				
17	Метил	Этоксид	Сложный эфир метил- 2-этилгексаноата	Этанол	150	20	7	32
18	Фенил	Этоксид	Сложный эфир метил- 2-этилгексаноата	Этанол	150	20	8	29
19	N-бутил	Этоксид	Сложный эфир метил- 2-этилгексаноата	Этанол	150	17	13	11
20	N-октил	Этоксид	Сложный эфир метил- 2-этилгексаноата	Этанол	150	21	18	10
21	Метил	2-метилпропилокси	Сложный эфир пропил- 2-этилгексаноата	2-метил-1-пропанол	160	18	8	28
22	Фенил	2-метилпропилокси	Сложный эфир метил- 2-этилгексаноата	2-метил-1-пропанол	160	14	7	23
23	N-бутил	2-метилпропилокси	Сложный эфир метил- 2-этилгексаноата	2-метил-1-пропанол	160	20	16	9
24	N-октил	2-метилпропилокси	Сложный эфир метил- 2-этилгексаноата	2-метил-1-пропанол	160	19	16	9

Структурная формула диалкоксида диалкилолова.  
[Химическая формула 74]



где R' представляет собой C<sub>1-8</sub>алкильную или фенильную группу и R'' представляет собой C<sub>1-8</sub>алкильную группу.

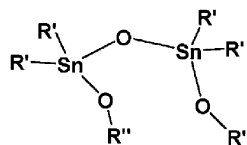
Сравнительные примеры 25-32.

Композиции тетраалкилдиалкоксидистанноксана со структурами, перечисленными в табл. 23, синтезировали аналогичным способом, как в примере синтеза 9. Затем каждую композицию тетраалкилдиалкоксидистанноксана использовали для реакции переэтерификации аналогичным способом, как в примере 309, с корректировкой таким образом, чтобы концентрация атомов олова в реакционной смеси составляла приблизительно от 1,5 до 2,5 мол.%. В табл. 23 показан первоначальный выход и выход реакции после непрерывного процесса для реакции переэтерификации, и полученное количество алкоксида триалкилолова (полученное количество по отношению к числу моль атомов олова композиций тетраалкилдиалкоксидистанноксана, введенных в бак с катализатором до непрерывного процесса).

Таблица 23

Сравнительный пример	Алкоксид алкилолова		Температура [°C]	Первоначальный выход [в моль-процентах]	Выход [в моль-процентах] (15 суток непрерывного процесса)	Полученное количество алкоксида триалкилолова [моль-процентов] (через 15 суток непрерывного процесса)
	R' (алкильная группа)	OR'' (алкокси-группа)				
25	Метил	Этокси	150	16	3	40
26	Фенил	Этокси	150	19	6	33
27	N-бутил	Этокси	150	18	13	14
28	N-Октил	Этокси	150	14	12	10
29	Метил	2-метилпропилокси	160	20	5	37
30	Фенил	2-метилпропилокси	160	15	5	31
31	N-бутил	2-метилпропилокси	160	21	16	13
32	N-октил	2-метилпропилокси	160	21	18	10

Структурная формула тетраалкилдиалкоксидистанноксана.  
[Химическая формула 75]



где R' представляет собой C<sub>1-8</sub>алкильную или фенильную группу и R'' представляет собой C<sub>1-8</sub>алкильную группу.

Сравнительные примеры 33-41.

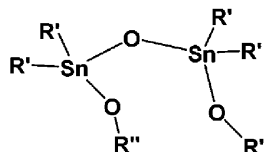
Композиции тетраалкилдиалкоксидистанноксана со структурами, перечисленными в табл. 24, синтезировали аналогичным способом, как в примере синтеза 9. Затем каждую композицию тетраалкилдиалкоксидистанноксана использовали для синтеза сложного эфира угольной кислоты аналогичным способом, как в примере 417. В табл. 24 показан первоначальный выход сложного эфира угольной кислоты и выход сложного эфира угольной кислоты после непрерывного процесса, а также полученное количество алкоксида триалкилолова (полученное количество по отношению к числу моль атомов олова композиций тетраалкилдиалкоксидистанноксана, введенных в бак с катализатором циркуляционного реактора непрерывного действия).



Таблица 24

Сравнительный пример	Алкоксид алкилолова		Температура [°C]	Давление CO <sub>2</sub> [МПа-Г]	Первоначальный выход сложного эфира угольной кислоты [в моль-процентах]	Выход сложного эфира угольной кислоты [в моль-процентах] (через 15 суток непрерывного процесса)	Полученное количество алкоксида триалкилолова [моль-процентов] (через 15 суток непрерывного процесса)
	R' (алкильная группа)	OR'' (алкоксигруппа)					
33	Метил	N-бутоксигруппа	120	4,5	47,6	35,5	13,6
34	Фенил	N-бутоксигруппа	120	4,5	32,8	25,6	12,0
35	N-бутил	N-бутоксигруппа	120	4,5	48,2	41,3	7,5
36	N-октил	N-бутоксигруппа	120	4,5	48,4	42,7	6,3
37	Метил	2-метилпропилоксигруппа	120	4,5	47,3	34,7	13,8
38	Фенил	2-метилпропилоксигруппа	120	4,5	31,8	24,5	12,2
39	N-бутил	2-метилпропилоксигруппа	120	4,5	47,6	41,7	6,5
40	N-октил	2-метилпропилоксигруппа	120	4,5	47,9	42,1	6,2
41	N-октил	2-метилпропилоксигруппа	110	4,5	42,5	37,4	6,1

Структурная формула тетраалкилдиалкоксидистанноксана.  
[Химическая формула 76]



где R' представляет собой C<sub>1-8</sub>алкильную или фенильную группу и R'' представляет собой C<sub>1-8</sub>алкильную группу.

Второй вариант осуществления.

Далее описан второй вариант осуществления изобретения в качестве предпочтительного варианта осуществления изобретения.

Соединением алкилолова этого варианта осуществления является соединение алкилолова для синтеза сложного эфира, где алкильной группой, замещенной циклической группой, является алкильная группа с циклической группой, выбранной из числа алициклических углеводородных групп и ароматических углеводородных групп, присоединенных по меньшей мере к одному атому углерода из числа атомов углерода с первого по третий с началом отсчета от атома олова, и атом олова является четырехвалентным. Соединение алкилолова выступает в качестве катализатора во время синтеза сложного эфира.

Как правило, в реакциях синтеза используют катализаторы. Их используют для повышения скорости конкретных реакций. Сами катализаторы остаются неизменными до и после реакции, или даже при израсходовании их можно восстановить для повторного использования в реакции. В идеале, таким образом, первоначально катализатор добавляют и используют постоянно и неоднократно в реакции для получения химического продукта.

Однако часто обнаруживаемым феноменом является разложение и инактивация катализатора, и с целью сохранения скорости реакции необходимы процессы для добавления и замещения свежего катализатора. При непрерывном добавлении катализатора неактивированный катализатор накапливается в реакционной системе, и замещение также приводит к удалению и утилизации катализатора, который по-прежнему сохраняет свою активность, вместе с неактивированным катализатором. Продуктивность также снижается посредством проведения вышеуказанного процесса.

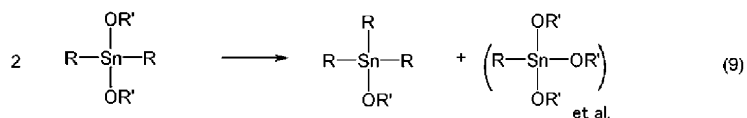
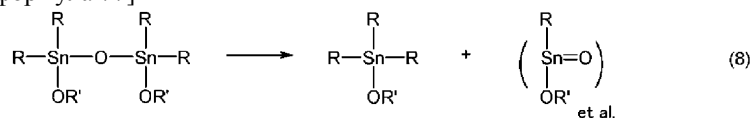
Инактивация катализатора отличается в зависимости от реакции и вида (гомогенной системы или негетерогенной системы) и структуры катализатора, и, таким образом, невозможно определить способ решения этой задачи для всех случаев.

Из числа таких реакций синтеза соединения алкилолова по этому варианту осуществления изобретения является гомогенным катализатором для синтеза сложного эфира, атом олова соединения алкилолова является четырехвалентным, и он в большой степени применим в промышленности. В целях осуществления этого варианта осуществления изобретения "реакция синтеза сложного эфира" относится

к реакции переэтерификации, реакции этерификации, реакции синтеза сложного эфира угольной кислоты или реакции синтеза сложного эфира карбаминовой кислоты, и это синтез нейтрального сложного эфира карбоновой кислоты или карбаминовой кислоты или реакция переэтерификации.

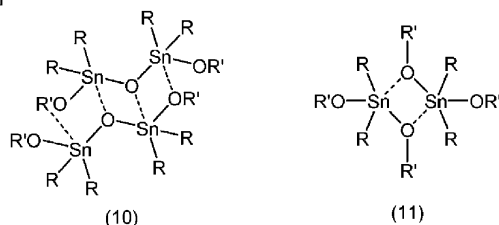
Несмотря на то, что существует очень мало примеров подробного исследования реакций инактивирования действия катализатора соединений алкилолова, результаты исследования показали, что очень легко возникают реакции диспропорционирования алкильных групп, представленные химическими уравнениями (8) и (9).

[Химическая формула 77]



Выявлено, что в этих реакциях инактивации количество алкильных групп, связанных с атомом олова в соединении алкилолова, изменяется таким образом, что становится невозможным получение первоначальной каталитической активности. Несмотря на отсутствие четкого понимания причины снижения каталитической активности, возникающего в реакции инактивации, возможно, что, например, диоксидный вид соединения алкилолова, представленный в химическом уравнении (8), структурно стабилизирован посредством внедрения лестничной структуры, показанной в формуле (10) (или, как также было отмечено, посредством образования циклической структуры двух или более молекул при присутствии в качестве мономера), и соединение алкилолова в уравнении (9) проявляет каталитическое действие посредством образования структуры, содержащей агрегат, такой как основная структура, показанная в формуле (11). Предположительно, когда имеет место эта реакция диспропорционирования, образование таких структур представляет сложности или эта каталитическая активность изменяется посредством электронных эффектов, обусловленных изменениями в количестве алкильных групп, связывающихся с оловом, или посредством взаимодействия этих эффектов.

[Химическая формула 78]



Настоящее изобретение осуществлено в свете данной ситуации, посредством конкретных соединений алкил(замещенный циклической группой)олова, ингибирующих эти реакции диспропорционирования и выступающих в качестве гомогенных катализаторов в синтезе сложного эфира.

Далее описаны соединения для использования по этому варианту осуществления изобретения.

Названия соединений, используемые в настоящем документе, в большинстве случаев являются названиями, основанными на номенклатурных правилах (Номенклатуре ИЮПАК по органической химии), установленных ИЮПАК (Международным союзом теоретической и прикладной химии). Термин "органическое" относится к группе соединений, являющейся объектом изобретения в соответствии с вышеуказанными номенклатурными правилами. Этим объектом изобретения может быть объект изобретения, описанный в рекомендациях 1993 года. Однако "органические" соединения, являющиеся объектом изобретения вышеуказанной Номенклатуры, включают металлорганические соединения и комплексные соединения с металлами. Для вариантов осуществления изобретения, описываемых в настоящем документе, "органическое", "органическая группа" и/или "заместитель", а также другие соединения, используемые для вариантов осуществления изобретения, состоят из атомов, не включающих атомы металла и/или металлоиды, если не указано иначе. Более предпочтительно "органическое соединение", "органическая группа" или "заместитель" при использовании для вариантов осуществления изобретения состоят из атомов, выбранных из числа H (водорода), C (углерода), N (азота), O (кислорода), S (серы), Cl (хлора), Br (брома) и I (йода).

Термины "алифатическое" и "ароматическое" часто используются на всем протяжении следующего пояснения. В соответствии с правилами ИЮПАК органические соединения классифицируются как алифатические соединения и ароматические соединения. Алифатическими соединениями, согласно определению, являются алифатические соединения на основе рекомендаций ИЮПАК 1995 года. Рекомендации определяют алифатические соединения как "ациклические или циклические, насыщенные или ненасы-

щенные углеродные соединения, за исключением ароматических соединений". Кроме того, термин "алифатические соединения", используемый для вариантов осуществления изобретения, включает насыщенные алифатические соединения и ненасыщенные алифатические соединения, а также алифатические соединения с неразветвленной цепью и циклические алифатические соединения, и он относится к "органическим соединениям", "органическим группам" или "заместителям", состоящим из атомов, выбранных из числа атомов Н (водорода), С (углерода), N (азота), О (кислорода), S (серы), Si (кремния) и галогена, такого как Cl (хлор), Br (бром) и I (йод).

Кроме того, когда ароматическая группа связана с алифатической группой, как в "аралкильной группе", это часто обозначается как "алифатическая группа, замещенная ароматической группой", "ароматическая алифатическая группа" или "группа, содержащая алифатическую группу, с которой связана ароматическая группа". Основой этому является реактивность в вариантах осуществления, так как свойство, относящееся к реакции групп, таких как аралкильные группы, очень схоже с алифатической реактивностью взамен содержанию ароматических углеводородов. Кроме того, неароматические реакционноспособные группы, включающие аралкильные и алкильные группы, часто обозначаются как "алифатические группы, необязательно замещенные ароматическими группами", "алифатические группы, замещенные ароматическими группами" или "алифатические группы, связанные с ароматической группой", и они также включены в число "алифатических групп".

При пояснении общей формулы соединения, используемого в настоящем документе, используют определение в соответствии с правилами Номенклатуры, установленными ИЮПАК, но часто используются общепринятые названия для названий конкретных групп и названий иллюстративных соединений. Кроме того, в настоящем документе часто упоминается число атомов и количество заместителей, и все они являются целыми числами.

Когда заместители или соединения, указанные в настоящем документе, имеют структурные изомеры, они включают структурные изомеры, если не указано иначе.

Сначала будут описаны соединения алкилолова по изобретению.

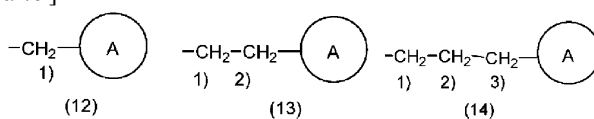
Соединение алкилолова по одному из вариантов осуществления является соединением алкил(замещенный циклической группой)олова, где алкильная группа является алкильной группой с циклической группой, выбранной из числа алициклических углеводородных групп и ароматических углеводородных групп, связанных по меньшей мере с одним атомом углерода из числа атомов углерода с первого по третий с началом отсчета от атома олова, и атом олова является четырехвалентным. Несмотря на то, что эффект может проявляться, даже когда алкильная группа содержит гетероатом (например, кислород), как в случае с эфирной связью, предпочтительными являются соединения алкилолова, замещенные циклическими группами, выбранными из числа насыщенных или ненасыщенных алициклических углеводородных групп или ароматических углеводородных групп. Насыщенными циклическими углеводородными группами могут быть циклоалкильные группы.

В результате тщательного проведенного исследования, посвященного проблемам известного уровня техники, удивительным образом было обнаружено, что расположение атома углерода рядом с атомом олова соединения алкилолова оказывает заметное воздействие на образование инактивированной формы. Остается неясным, является этот эффект электронным эффектом или стерическим эффектом, но предположительно он слабее, чем эффект стерического препятствия. Независимо от механизма воздействия, заметный эффект проявляют алкильные группы, замещенные конкретными циклическими группами. Эффект обнаружен при использовании соединения, в котором атомы углерода рядом с атомом олова в соединении алкилолова (по меньшей мере один из атомов углерода с первого по третий с началом отсчета от атома олова) замещены алициклической углеводородной группой или ароматической углеводородной группой. С другой стороны, в структуре, где циклическая группа непосредственно связана с атомом олова, снижается первоначальное каталитическое действие и реактивность. Для получения эффекта как предотвращения инактивации, так и сохранения активности алкильные группы, замещенные конкретными циклическими группами, являются предпочтительными.

Алкильной группой, замещенной циклической группой, является, например, соединение алкилолова, где атомом углерода, расположенным рядом с атомом олова (первый атом углерода с началом отсчета от атома олова), является метилен (-CH<sub>2</sub>-).

Конкретные примеры, где одна алкильная группа, замещенная циклической группой, связана с атомом олова, показаны в формулах (12)-(14) (где атомы олова являются четырехвалентными, и другие группы не включены).

[Химическая формула 79]



где кольцо А представляет собой С<sub>3-16</sub>алициклическую углеводородную группу или С<sub>6-16</sub>ароматическую углеводородную группу;

числа 1), 2) и 3) представляют собой порядок атомов углерода, начиная от атома олова, обозначая

первичный, вторичный и третичный атомы углерода соответственно.

Кольцо А представляет собой циклическую группу, являющуюся  $C_{3-16}$ алициклической углеводородной группой или  $C_{6-16}$ ароматической углеводородной группой, кольцо А также необязательно замещено группой с неразветвленной цепью или циклической группой. Циклическая группа, образующая кольцо А, связана по меньшей мере с одним атомом углерода из числа атомов углерода с первого по третий с началом отсчета от атома олова, образуя алкильную группу, замещенную циклической группой.

Примеры алкильных групп, замещенных такими алициклическими углеводородными группами, включают

циклопропилметил, циклобутилметил, циклопентилметил, циклогексилметил, 2-циклопропилэтил, 2-циклобутилэтил, 2-циклопентилэтил, 2-циклогексилэтил, 3-циклопропилпропил, 3-циклобутилпропил, 3-циклопентилпропил, 3-циклогексилпропил, 1-(2,3-дигидро-1Н-инден-1-ил)метил, 1-(2,3-дигидро-1Н-инден-2-ил)метил, 1-(1,2,3,4-тетрагидронафтаден-1-ил)метил, 1-(1,2,3,4-тетрагидронафтаден-2-ил)метил, 1-(1,2,3,4-тетрагидронафтаден-3-ил)метил, 2-(2,3-дигидро-1Н-инден-1-ил)этил, 2-(2,3-дигидро-1Н-инден-2-ил)этил, 2-(1,2,3,4-тетрагидронафтаден-1-ил)этил, 2-(1,2,3,4-тетрагидронафтаден-2-ил)этил, 2-(1,2,3,4-тетрагидронафтаден-3-ил)этил, 2-(9,10-диметил-1,2,3,4-тетрагидроантрацен-1-ил)этил, 3-(2,3-дигидро-1Н-инден-1-ил)пропил, 3-(2,3-дигидро-1Н-инден-2-ил)пропил, 3-(1,2,3,4-тетрагидронафтаден-1-ил)пропил, 3-(1,2,3,4-тетрагидронафтаден-2-ил)пропил, 3-(1,2,3,4-тетрагидронафтаден-3-ил)пропил и 3-(9,10-диметил-1,2,3,4-тетрагидроантрацен-1-ил)пропил.

Примеры алкильных групп, замещенных ароматическими углеводородными группами, включают бензил, (2-метилфенил)метил, (4-метилфенил)метил, (2,6-диметилфенил)метил, (2,4,6-триметилфенил)метил, (1-метилнафтаден-2-ил)метил, (1-метилантрацен-2-ил)метил, 2-фенилэтил, 2-(2-метилфенил)этил, 2-(4-метилфенил)этил, 2-(2,6-диметилфенил)этил, 2-(2,4-диметилфенил)этил, 2-(2,4,6-триметилфенил)этил, 2-(1-метилнафтаден-2-ил)этил, 2-(1-метилантрацен-2-ил)этил, 3-фенилпропил, 3-(2-метилфенил)пропил, 3-(4-метилфенил)пропил, 3-(2,6-диметилфенил)пропил, 3-(2,4-диметилфенил)пропил, 3-(2,4,6-триметилфенил)пропил, 3-(1-метилнафтаден-2-ил)пропил и 3-(1-метилантрацен-2-ил)пропил.

С точки зрения сохранения каталитической активности, из числа вышеуказанных алкильных групп, замещенных циклической группой, более предпочтительными являются алкильные группы, замещенные циклической группой, способные произвести более значительный эффект, имеющие циклические группы, выбранные из числа алициклических углеводородных групп и ароматических углеводородных групп, присоединенных к первому или второму атому углерода с началом отсчета от атома олова.

Как указано выше, степень инактивации выше, когда соединением алкилолова является алкоксид алкилолова. Таким образом, эффект изобретения более значителен, когда соединением алкилолова для этого варианта осуществления изобретения являются алкоксид алкилолова. Кроме того, алкоксигруппой более предпочтительно является  $C_{1-8}$ , учитывая каталитическое действие и реактивность.

Примеры предпочтительных алкоксигрупп включают метилокси, этилокси, пропилокси (все изомеры), бутилокси (все изомеры), пентилокси (все изомеры), гексилокси (все изомеры), гептилокси (все изомеры) и октилокси (все изомеры).

Учитывая восстановление соединения алкил(замещенный циклической группой)олова, более предпочтительное число атомов углерода алкоксигруппы составляет 4 до 8, и спиртом, соответствующим алкоксигруппе, является спирт с температурой кипения  $100^{\circ}\text{C}$  или выше при обычном давлении.

Примеры таких алкоксигрупп включают *n*-бутилокси, изобутилокси, втор-бутилокси и  $C_{5-8}$ алкоксигруппы.

При использовании при высокой температуре разветвленные алкоксигруппы являются предпочтительными в качестве алкоксигрупп с точки зрения получения эффекта дополнительного ингибирования реакции диспропорционирования алкильных групп. Более предпочтительно это группа, в которой  $C_{1-3}$ алкильная группа замещена во вторичном или третичном положении (положении углерода в алкоксигруппе, являющемся положением атома кислорода, связанного с атомом олова). Примеры таких алкильных групп включают 2-метилпропилокси, 2-метилбутилокси, 2-этилбутилокси, 2-пропилбутилокси, 2-метилпентилокси, 2-этилпентилокси, 2-пропилпентилокси, 2-метилгексилокси, 2-этилгексилокси, 3-метилбутилокси, 3-этилбутилокси, 3-пропилбутилокси, 3-метилпентилокси, 3-этилпентилокси, 3-пропилпентилокси, 3-метилгексилокси и 3-этилгексилокси.

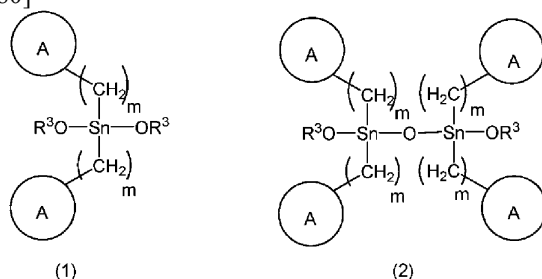
В свете вышеизложенного наиболее предпочтительно алкоксигруппой алкоксида алкилолова является алкоксигруппа, выбранная из группы, состоящей из изобутилокси и  $C_{5-8}$ алкоксигрупп, и алкоксигруппа, в которой  $C_{1-3}$ алкильная группа замещена во вторичном или третичном положении (как в положении атома углерода в алкоксигруппе, являющемся положением от атома кислорода, связанного с атомом олова).

В качестве соединений алкилолова предпочтительными для использования являются композиции,

содержащие или любой из, или одновременно диалкоксид ди(алкил(замещенный циклической группой))олова и/или тетра(алкил(замещенный циклической группой))диалкоксидистанноксан (далее обозначаемые в настоящем документе как "композиция диалкоксида ди(алкил(замещенный циклической группой))олова"), пригодные в качестве катализатора. Выражение "активный компонент" в рамках изобретения относится к соединениям алкилолова, нежели к соединениям алкилолова в целом, с двумя алкильными группами, связанными с атомом олова, и в особенности они включают алкоксиды диалкилолова, тетраалкилалкоксидистанноксаны и/или оксиды диалкилолова. При использовании вышеуказанной композиции, как правило, молярное соотношение атомов олова, содержащих диалкоксид ди(алкил(замещенный циклической группой))олова и тетра(алкил(замещенный циклической группой))диалкоксидистанноксан в композиции предпочтительно находится в диапазоне от 1:99 до 99:1 (или от 1:49,5 до 99:0,5, представленном как молярное соотношение молекул диалкоксида ди(алкил(замещенный циклической группой))олова к молекулам тетра(алкил(замещенный циклической группой))диалкоксидистанноксана), несмотря на то, что оно, в частности, не ограничено. При использовании при высокой температуре (например, 100°C или выше) предпочтительным является большее количественное соотношение более стабильного диалкоксида ди(алкил(замещенный циклической группой))олова с введением в реактор количественного соотношения от 99:1 до 50:50 (от 99:0,5 до 50:25 в отношении молярного соотношения).

Диалкоксид ди(алкил(замещенный циклической группой)) олова является предпочтительно соединением, представленным формулой (1). Тетра(алкил(замещенный циклической группой))диалкоксидистанноксан является предпочтительно соединением, представленным формулой (2).

[Химическая формула 80]



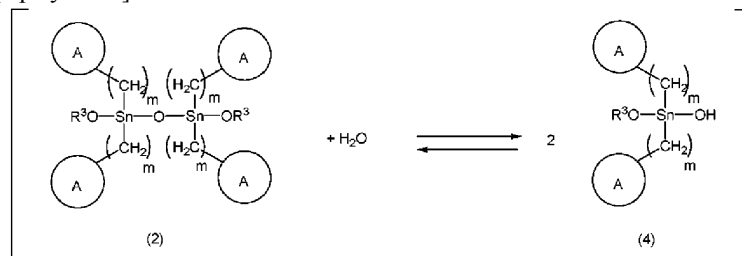
где кольцо А представляет собой C<sub>3-16</sub>алициклическую углеводородную группу или C<sub>6-16</sub>ароматическую углеводородную группу;

m является целым числом от 1 до 3; и

R<sup>3</sup> представляет собой C<sub>1-8</sub>алкильную группу.

В рамках изобретения структура тетра(алкил(замещенный циклической группой))диалкоксидистанноксана представляет собой структуру, представленную формулой (2), в виде канонической структуры. Однако, как в случае с описанным ниже оксидом ди(алкил(замещенный циклической группой))олова, она может быть представлена в качестве структуры гидрокси, представленной формулой (4) ниже. Так как в настоящее время не представляется невозможным определить присутствие и содержание структур гидрокси посредством анализа, структуры, представленные формулами (2) и (4), указанные в настоящем документе, включены в число тетра(алкил(замещенный циклической группой))диалкоксидистанноксанов.

[Химическая формула 81]



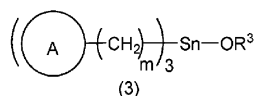
где кольцо А, m и R<sup>3</sup> имеют такие же определения, как указано выше.

По одному из вариантов осуществления изобретения соединением алкилолова может быть соединение три(алкил(замещенный циклической группой))олова или композиция, содержащая соединение три(алкил(замещенный циклической группой))олова. Когда композиция, содержащая диалкоксид ди(алкил(замещенный циклической группой))олова и/или тетра(алкил(замещенный циклической группой))диалкоксидистанноксан, также содержит соединения три(алкил(замещенный циклической группой))олова, число моль атомов соединения триалкилолова по отношению к числу моль атомов олова всей композиции (общее число моль атомов олова диалкоксида ди(алкил(замещенный циклической группой))олова, соединения тетра(алкил(замещенный циклической группой))диалкоксидистанноксан и три(алкил(замещенный циклической группой))олова в композиции) предпочтительно находится в диапа-

зоне от 1 до 50 мол.%. Термостабильность иногда повышается посредством включения соединения три(алкил(замещенный циклической группой))олова в рамках этого диапазона. Несмотря на неполное понимание химической причины этого явления, предполагают, что равновесие перераспределения алкильных групп может быть сдвинуто в необходимом направлении с помощью нагревания. Каталитическая активность и реактивность соединения триалкилолова низкая по сравнению с диалкоксидом диалкилолова и тетраалкилдиалкоксидистанноксаном. Каталитическая активность и реактивность соединений три(алкил(замещенный циклической группой))олова ниже, чем у диалкоксидов ди(алкил(замещенный циклической группой))олова и тетра(алкил(замещенный циклической группой))диалкоксидистанноксанов, и, если содержание соединения три(алкил(замещенный циклической группой))олова составляет более чем 50 мол.%, может возникнуть необходимость в увеличении количества композиции для получения необходимых результатов реакции. Содержание соединения три(алкил(замещенный циклической группой))олова более предпочтительно составляет от 1 до 30 мол.%.

Предпочтительные примеры таких соединений три(алкил(замещенный циклической группой))олова включают соединения, представленные следующей формулой (3).

[Химическая формула 82]



где кольцо А представляет собой C<sub>3-16</sub>алициклическую углеводородную группу или C<sub>6-16</sub>ароматическую углеводородную группу;

m является целым числом от 1 до 3;

R<sup>3</sup> представляет собой C<sub>1-8</sub>алкильную группу.

Диалкоксид алкоксида алкилолова(ди(алкил(замещенный циклической группой))олова и/или тетра(алкил(замещенный циклической группой))диалкоксидистанноксан и три(алкил(замещенный циклической группой))олова алкоксид) можно получать с помощью известных процессов. Предпочтительными исходными веществами являются карбоксилаты алкил(замещенный циклической группой)олова, оксиды алкил алкил(замещенный циклической группой)олова, полимеры оксидов алкил(замещенный циклической группой)олова или галогениды алкилолова. Предпочтительно использовать общеизвестные способы синтеза для этих исходных веществ. Условия получения можно изменять для достижения оптимальных результатов (например, Wilhelm P. Neumann et al., Justus Liebigs Annalen der Chemie, vol. 663, p. 11-21 (1963), Egmond, J.C. van et al., Journal of Applied Chemistry (Лондон), vol. 12, p. 17-27 (1962), Seyferth et al., Journal of Organic Chemistry, vol. 26, p. 2934 (1961), Kerk, G. J. van der; Luijten et al., Journal of Applied Chemistry (Лондон), vol. 7, p. 369-374 (1957), P. Fostein et al., Journal of Organometallic Chemistry, vol. 114, p. 7-10 (1976) ). Способами получения алкоксидов алкилолова из исходных веществ могут быть любые общеизвестные способы. Композиция, содержащая алкоксид алкилолова, также может включать оксид алкилолова и/или полимер оксида алкилолова, но содержание карбоксилата алкилолова и галогенированного (алкил(замещенный циклической группой))олова предпочтительно является как можно более низким. Например, их предпочтительно использовать очищенными до не более чем 20 мол.%, как выражено в моль-процентах атомов олова. Для очистки предпочтительно используют общеизвестный способ. Способом получения оксида алкилолова или полимера оксида алкилолова в качестве исходного вещества также предпочтительно является известный способ.

С целью повышения точности анализа для контроля получения алкильные группы, замещенные циклической группой диалкоксида ди(алкил(замещенный циклической группой))олова, тетра(алкил(замещенный циклической группой))диалкоксидистанноксана и алкоксида три(алкил(замещенный циклической группой))олова предпочтительно являются аналогичными группами, и каждая из алкоксигрупп также предпочтительно является аналогичной алкоксигруппой.

Соединение алкилолова предпочтительно используют в качестве гомогенного катализатора для синтеза сложного эфира из числа других реакций синтеза. В целях описания настоящего изобретения "реакция синтеза сложного эфира" относится к реакции переэтерификации, реакции этерификации, реакции синтеза сложного эфира угольной кислоты или реакции синтеза сложного эфира карбаминовой кислоты, и это синтез нейтрального сложного эфира карбоновой кислоты или карбаминовой кислоты или реакция переэтерификации.

Не существует каких-либо особых ограничений в отношении температуры реакции, но диапазон предпочтительно составляет от 0 до 250°C. Нет ограничений по использованию реакционных растворителей, но предпочтительными примерами являются гидрокси-углеводороды, такие как спирты и фенолы, углеводороды, и простые эфиры, такие как ТГФ, и можно выбрать, при необходимости, любые растворители, в частности, не нарушающие структуру соединения алкилолова посредством реакции окисления, реакции восстановления и т.п. Часто возникают нежелательные вторичные реакции с сильноокислотными растворителями или сильнощелочными растворителями, и предпочтительно реакционный растворитель и температура реакции выбраны с учетом необходимой скорости вторичной реакции.

Реакцию синтеза сложного эфира предпочтительно проводят с соединением алкилолова в растворенном или расплавленном состоянии и предпочтительно для этого выбирают температуру и растворитель.

Для реакции синтеза сложного эфира можно использовать инертный газ. Примеры инертных газов включают азот, аргон и гелий. Можно использовать диоксид углерода, так как он не оказывает неблагоприятного воздействия. Кислород, водород, сульфид водорода, монооксид углерода и т.п. могут быть включены в пределах, не нарушающих, в частности, структуры соединения алкил(замещенный циклической группой)олова или результатов реакции, и их очищают и контролируют известными способами для получения необходимых постоянных результатов реакции.

Далее описан способ получения сложного эфира угольной кислоты в качестве предпочтительного способа для осуществления изобретения.

По одному из вариантов осуществления соединения алкилолова является катализатором для процесса получения сложного эфира угольной кислоты посредством реакции с диоксидом углерода. Соединением алкилолова предпочтительно является алкоксид алкил(замещенный циклической группой)олова.

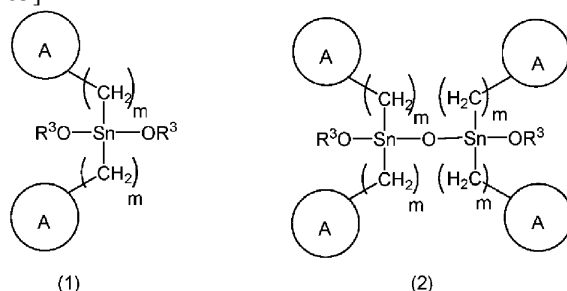
Способ получения для этого варианта осуществления представляет собой получения сложного эфира угольной кислоты с использованием алкоксида алкилолова, где алкоксид алкилолова включает или любое из, или одновременно соединение, представленное формулой (1), и/или соединение, представленное формулой (2), и способ получения сложного эфира угольной кислоты включает следующие стадии с (1) по (3).

Стадия (1): стадия реакции соединения алкилолова с диоксидом углерода для получения реакционной смеси, содержащей сложный эфир угольной кислоты.

Стадия (2): стадия отделения сложного эфира угольной кислоты от реакционной смеси для получения остаточного раствора.

Стадия (3): стадия реакции остаточного раствора со спиртом и удаления воды, полученной посредством реакции, для получения алкоксида алкилолова и повторного использования его на стадии (1).

[Химическая формула 83]



где кольцо А представляет собой C<sub>3-16</sub>алициклическую углеводородную группу или C<sub>6-16</sub>ароматическую углеводородную группу;

m является целым числом от 1 до 3;

R<sup>3</sup> представляет собой C<sub>1-8</sub>алкильную группу.

Примеры диалкоксида ди(алкил(замещенный циклической группой))олова и тетра(алкил(замещенный циклической группой))диалкоксидистанноксана для использования в способе получения сложного эфира угольной кислоты включают вышеуказанные диалкоксиды ди(алкил(замещенный циклической группой))олова и тетра(алкил(замещенный циклической группой))диалкоксидистанноксаны, предпочтительно использовать композицию, содержащую любой из или одновременно диалкоксид ди(алкил(замещенный циклической группой))олова и тетра(алкил(замещенный циклической группой))диалкоксидистанноксан. При использовании композиции молярное соотношение атомов олова, составляющих диалкоксид ди(алкил(замещенный циклической группой))олова и тетра(алкил(замещенный циклической группой))диалкоксидистанноксан в композиции, предпочтительно находится в диапазоне от 1:99 до 99:1 (или от 1:49,5 до 99:0,5, представленном как молярное соотношение молекул диалкоксида ди(алкил(замещенный циклической группой))олова и молекул тетра(алкил(замещенный циклической группой))диалкоксидистанноксана), несмотря на то, что оно, в частности, не ограничено. При использовании при высокой температуре (например, 100°C или выше) предпочтительным является большее количественное соотношение более стального диалкоксида ди(алкил(замещенный циклической группой))олова с введением в реактор количественного соотношения от 99:1 до 50:50 (от 99:0,5 до 50:25 в отношении молярного соотношения).

С целью осуществления стадии (3) необходимым образом, учитывая повторное использование соединения алкилолова, более предпочтительной алкоксигруппой алкоксида алкилолова является C<sub>4-8</sub>алкоксигруппа, и спирт, соответствующий алкоксигруппе, имеет температуру кипения 100°C или выше при обычном давлении.

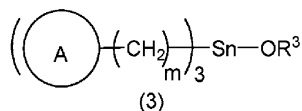
Примеры таких алкоксигрупп включают n-бутилокси, изобутилокси, втор-бутилокси и C<sub>5-8</sub>алкоксигруппы.

С целью повышения точности анализа для контроля получения алкильные группы, замещенные циклической группой, диалкоксида ди(алкил(замещенный циклической группой))олова и тетра(алкил(замещенный циклической группой))диалкоксидистанноксана являются предпочтительно аналогичными группами, и каждая из алкоксигрупп предпочтительно также является аналогичной алкоксигруппой.

В способе получения для этого варианта осуществления изобретения предпочтительно использовать композицию, также содержащую соединение три(алкил(замещенный циклической группой))олова в качестве соединения алкилолова. Иногда термостабильность увеличивается, если оно содержит соединение три(алкил(замещенный циклической группой))олова в таком диапазоне, что число моль атомов олова в соединении три(алкил(замещенный циклической группой))олова по отношению к числу моль атомов олова в композиции составляет от 1 до 50 мол.%. Несмотря на неполное понимание химической причины этого явления, предполагают, что равновесие перераспределения алкильных групп может быть сдвинуто в необходимом направлении с помощью нагревания. Каталитическая активность и реактивность соединения три(алкил(замещенный циклической группой))олова ниже, чем у диалкоксида ди(алкил(замещенный циклической группой))олова или тетра(алкил(замещенный циклической группой))диалкоксидистанноксана. Если содержание соединения три(алкил(замещенный циклической группой))олова высокое, возникает необходимость в увеличении количества композиции для получения необходимых результатов реакции, и, таким образом, более предпочтительно использовать композицию, содержащую соединение три(алкил(замещенный циклической группой))олова в диапазоне от 1 до 30 мол.%.

Предпочтительные примеры таких соединений три(алкил(замещенный циклической группой))олова включают соединения, представленные следующей формулой (3).

[Химическая формула 84]



где кольцо А представляет собой C<sub>3-16</sub>алициклическую углеводородную группу или C<sub>6-16</sub>ароматическую углеводородную группу;

m является целым числом от 1 до 3;

R<sup>3</sup> представляет собой C<sub>1-8</sub>алкильную группу.

С целью повышения точности анализа для контроля получения, предпочтительно алкил(замещенный циклической группой)ными группами диалкоксида ди(алкил(замещенный циклической группой))олова, тетра(алкил(замещенный циклической группой))диалкоксидистанноксана и алкоксида три(алкил(замещенный циклической группой))олова являются аналогичные группы, и каждая из алкоксигруппы также предпочтительно является аналогичной алкоксигруппой.

Далее описан спирт, используемый на стадии (3).

Спиртом для использования на стадии (3) является предпочтительно C<sub>4-8</sub>спирт и спирт с температурой кипения 100°C или выше при обычном давлении, учитывая повторное использование соединения алкилолова.

Примеры таких спиртов включают n-бутиловый спирт, изобутиловый спирт, втор-бутиловый спирт и C<sub>5-8</sub>алкиловые спирты.

Посредством стадии (3) спирт включен в состав в качестве алкоксигруппы алкоксида алкилолова. Для использования при высокой температуре спиртом, используемым на стадии (3), предпочтительно является спирт с C<sub>1-3</sub>алкильной группой, присоединенной на втором или третьем атоме углерода с началом отсчета от гидроксильной группы, с точки зрения предотвращения реакции диспропорционирования алкильной группы. Примеры таких спиртов включают 2-метилпропиловый спирт, 2-метилбутиловый спирт, 2-этилбутиловый спирт, 2-пропилбутиловый спирт, 2-метилпентиловый спирт, 2-этилпентиловый спирт, 2-пропилпентиловый спирт, 2-метилгексиловый спирт, 2-этилгексиловый спирт, 3-метилбутиловый спирт, 3-этилбутиловый спирт, 3-пропилбутиловый спирт, 3-метилпентиловый спирт, 3-этилпентиловый спирт, 3-пропилпентиловый спирт, 3-метилгексиловый спирт и 3-этилгексиловый спирт.

С целью повышения точности анализа для контроля получения и степени чистоты сложного эфира угольной кислоты алкоксигруппы диалкоксида ди(алкил(замещенный циклической группой))олова, тетра(алкил(замещенный циклической группой))диалкоксидистанноксана и алкоксида три(алкил(замещенный циклической группой))олова предпочтительно являются аналогичными алкоксигруппами, и спиртом, используемым на стадии (3), предпочтительно является спирт, соответствующий алкоксигруппе.

Способ получения сложного эфира угольной кислоты.

Далее следует подробное пояснение способа получения сложных эфиров угольной кислоты с использованием алкоксидов алкилолова.

Предпочтительно использовать способы, ранее описанные авторами настоящего изобретения (на-



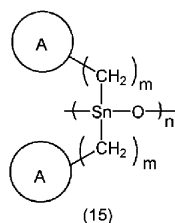
пример, международные публикации патентов № WO 03/055840, WO 2004/014840, WO 2005/000783, WO 2005/111049 и WO 2007/114130).

(i) Стадия синтеза алкоксида алкилолова (стадия начала непрерывного процесса).

Алкоксидом алкилолова для использования для этого варианта осуществления изобретения может быть алкоксид алкилолова, полученный известным способом, как описано выше. Алкоксид алкилолова можно получать, например, из карбоксилата алкилолова, оксида алкил(замещенный циклической группой)олова, полимера оксида алкил(замещенный циклической группой)олова или галогенированного соединения алкил(замещенный циклической группой)олова. Предпочтительно использовать ранее описанный способ получения алкоксидов алкилолова (международная публикация патента № WO 2005/111049 и др.). На этой стадии получают алкоксид алкил(замещенный циклической группой)олова предпочтительно из оксида ди(алкил(замещенный циклической группой)олова) и спирта. Используемым спиртом может быть любой из вышеуказанных спиртов.

Оксидом ди(алкил(замещенный циклической группой)олова), используемым в этом процессе, может быть соединение, представленное следующей формулой (15).

[Химическая формула 85]



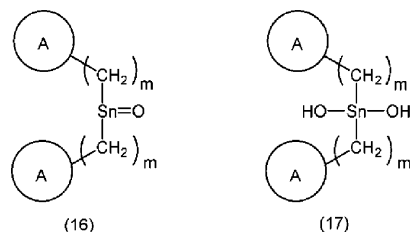
где кольцо А представляет собой  $\text{C}_{3-16}$ алициклическую углеводородную группу или  $\text{C}_{6-16}$ ароматическую углеводородную группу;

m является целым числом от 1 до 3;

n является положительным целым числом.

Структура оксида ди(алкил(замещенный циклической группой)олова) не может быть полностью выявлена посредством существующих в настоящее время способов анализа. В этом процессе оксидом ди(алкил(замещенный циклической группой)олова) может иметь структуру мономера, представленную формулой (16), или структуру гидрокси, представленную формулой (17) структуры полимера, представленной формулой (15). Структура гидрокси, представленная формулой (17), как правило, не обозначается как оксид ди(алкил(замещенный циклической группой)олова), но в связи с тем, что сложно подтвердить ее присутствие и содержание с помощью существующих в настоящее время аналитических способов, и изобретение можно проводить в условиях для этого процесса с любой структурой, для удобства в описании настоящего документа она имеет такое же определение как оксид ди(алкил(замещенный циклической группой)олова).

[Химическая формула 86]



где кольцо А представляет собой  $\text{C}_{3-16}$ алициклическую углеводородную группу или  $\text{C}_{6-16}$ ароматическую углеводородную группу и m представляет собой целое число от 1 до 3.

Спирт и оксид ди(алкил(замещенный циклической группой)олова) используют для реакции дегидрирования при одновременном удалении собравшейся воды из реакционной системы для получения тетра(алкил(замещенный циклической группой))ди(алкокси)дистанноксана и/или диалкоксида ди(алкил(замещенный циклической группой)олова). В это время используемый спирт преобразуют в алкоксигруппу для образования алкоксида алкилолова. Температура для проведения реакции может быть в диапазоне от 80 до 180°C, например, и с точки зрения упрощения процесса удаления дистилляцией собравшейся воды из реакционной системы более предпочтительным является диапазон от 60 до 180°C, хотя это зависит от давления реакции, в то же время с точки зрения повышения скорости реакции даже более предпочтительной является высокая температура реакции. С другой стороны, так как нежелательные вторичные реакции, такие как разложение, возникают при высокой температуре, таким образом снижая выход, более предпочтительная температура находится в диапазоне от 80 до 160°C. Давлением в реакторе для проведения реакции является давление, позволяющее удалять из системы собравшуюся воду, и, хотя оно зависит от температуры реакции, оно может составлять от 20 до  $1 \times 10^6$  Па. Время реакции, в частности, не ограничено, но, как правило, должно составлять от 0,001 до 50 ч, предпочтительно

от 0,01 до 10 ч и более предпочтительно от 0,1 до 2 ч. Реакция может быть завершена при получении необходимого алкоксида алкилолова. Течение реакции можно подтверждать посредством способа измерения количества воды, удаленной из реакционной системы, или способа отбора пробы реакционной смеси для измерения спектра  $^{119}\text{Sn}$ -ЯМР. Для получения алкоксида алкилолова на стадии (1) реакцию завершают при подтверждении получения алкоксида алкилолова с молярным соотношением в диапазоне от 0:100 до 80:20 и предпочтительно от 1:99 до 70:30 для тетра(алкил(замещенный циклической группой))диалкоксидистанноксана и диалкоксида ди(алкил(замещенный циклической группой))олова в алкоксиде алкил(замещенный циклической группой)олова, полученном посредством реакции. Используемый спирт можно продолжать использовать при сопричастии или в некоторых случаях спирт можно отогнать, а затем использовать. Предпочтительно удалить как можно большее количество спирта, так как это позволит уменьшить объем реактора для других стадий. Способом удаления предпочтительно является известный дистилляционный процесс, и дистиллятором, используемым для дистилляции, может быть известное дистилляционное устройство. Тонкопленочное дистилляционное устройство можно использовать в качестве предпочтительного дистилляционного устройства, так как оно обеспечивает удаление в пределах короткого периода времени. Не существует каких-либо конкретных ограничений в отношении формы реактора, и можно использовать любой известный бак или башенный реактор. Реакционная смесь с низкой температурой кипения, содержащая воду, является газообразной, и ее можно удалить из реактора посредством дистилляции, и реакционную смесь с высокой температурой кипения, содержащую алкоксид алкилолова, можно экстрагировать в виде жидкости со дна реактора. Примеры такого реактора включают реакторы, содержащие смесительный бак, многоступенчатый смесительный бак, дистилляционную колонку, многоступенчатую дистилляционную колонку, многотрубчатый реактор, многоступенчатую дистилляционную колонку непрерывного действия, башню с насадкой, тонкопленочный испаритель, реактор, оснащенный внутренней опорой, реактор принудительной циркуляции, испаритель с падающей пленкой, испаритель падающих капель, фазный реактор струйного типа или колпачковую колонну, и можно использовать известные способы, при которых применяются комбинации этих систем. Способ с использованием реактора башенного типа является предпочтительным с точки зрения эффективного смещения равновесия реакции дегидрирования в сторону алкоксида алкилолова (продукта), или способ с использованием реактора с большой площадью поверхности газожидкостного контакта используют, чтобы образовавшаяся вода быстро переходила в газовую фазу. Эту стадию можно осуществлять посредством непрерывного способа с использованием многотрубчатого реактора, многоступенчатой дистилляционной колонки или башни, заполненной наполнителем, но при использовании твердого оксида ди(алкил(замещенный циклической группой))олова более предпочтительно использовать способ проведения реакции в корпусном реакторе, а затем повышать содержание диалкоксида ди(алкил(замещенный циклической группой))олова с помощью башенного реактора. Материалами реактора и линии могут быть общеизвестные материалы, не оказывающие отрицательного воздействия на реакцию, и предпочтительно использовать SUS304, SUS316, SUS316L и т.п. ввиду их небольшой стоимости. При необходимости, можно также включать измерительные устройства, такие как измеритель расхода жидкости и термометр, и известное обрабатывающее оборудование, такое как ребойлер, насос, конденсатор, средства нагревания, средства охлаждения и т.п., при этом средствами нагревания могут быть известные средства нагревания, такие как пар или нагреватель, и средствами охлаждения могут быть известные средства охлаждения, такие как естественное охлаждение, охлаждающая вода или насыщенный солевой раствор.

Стадия (1): стадия реакции соединения алкилолова с диоксидом углерода для получения реакционной смеси, содержащей сложный эфир угольной кислоты.

На этой стадии алкоксид алкилолова вступает в реакцию с газообразным диоксидом углерода для получения сложного эфира угольной кислоты. Стадию предпочтительно проводят с использованием ранее описанного способа получения сложных эфиров угольной кислоты (международные публикации патентов № WO 03/055840, WO 04/014840 или др.).

Алкоксид алкилолова, поставляемый для этой стадии, иногда получают из синтеза алкоксида алкил(замещенный циклической группой)олова в начале процесса или иногда получают из стадии (3) получения алкоксида алкил(замещенный циклической группой)олова в течение непрерывного процесса.

Для этой стадии сначала алкоксид алкилолова и газообразный диоксид углерода вступают в реакцию для получения смеси, содержащей конъюгат диоксида углерода алкоксида алкилолова.

В ходе химической реакции предпочтительно либо нагревание алкоксида алкилолова до расплавления, либо его смешивание с растворителем в качестве раствора для проведения реакции в виде жидкости. Давление в реакторе для проведения этой реакции зависит от температуры реакции, но предпочтительно находится в диапазоне от обычного давления до 1 мПа и более предпочтительно в диапазоне от обычного давления до 0,6 мПа. Температура реакции зависит от давления реакции, но предпочтительно составляет от  $-40$  до  $80^\circ\text{C}$ , и, учитывая реологическое свойство при транспортировке, более предпочтительно составляет от  $0$  до  $80^\circ\text{C}$ , и наиболее предпочтительно находится в диапазоне от обычной температуры (например,  $20^\circ\text{C}$ ) до  $80^\circ\text{C}$ . Термин "обычная температура" в рамках изобретения означает диапазон от 1

до 30°C. Время реакции может находиться в диапазоне от нескольких секунд до 100 ч и предпочтительно составляет от нескольких секунд до 10 ч, учитывая продуктивность. Используемым реактором может быть известный корпусной реактор или башенный реактор. Также можно использовать комбинации нескольких различных реакторов. Так как реакцию проводят между диоксидом углерода (газом) и раствором, содержащий алкоксид алкилолова или алкоксид алкилолова (жидкостью), для эффективности реакции предпочтительно увеличить площадь поверхности газожидкостного контакта с целью увеличения площади контакта диоксида углерода с алкоксидом алкилолова. Способ проведения реакции с увеличенной площадью поверхности газожидкостного контакта может иметь преимущества известных наблюдений, и предпочтительными способами являются те, которые включают повышение скорости перемешивания в корпусном реакторе или скопление пузырьков воздуха в жидкости, или для башенного реактора использование башни с насадкой или использование тарельчатой колонны. Примеры таких башенных реакторов включают системы тарельчатых колонн с использованием тарелок, таких как колпачковая тарелка, пористая тарелка, клапанная тарелка или противоточная тарелка; и системы башен с насадкой, заполненные различными видами уплотнительных материалов, таких как кольца Рашига, кольца Лессинга, кольца Полла, седла Берля, седлообразные насадки Инталокс, насадка Dixon, насадка McMahon, насадки Heli-Pak, Sulzer или Mellapak. Материалами реактора и линии могут быть общеизвестные материалы, не оказывающие отрицательного воздействия на реакцию, и предпочтительно использовать SUS304, SUS316, SUS316L и т.п. ввиду их небольшой стоимости. При необходимости, можно также включать измерительные устройства, такие как измеритель расхода жидкости и термометр, и известное обрабатывающее оборудование, такое как ребойлер, насос, конденсатор, средства нагревания, средства охлаждения и т.п., при этом средствами нагревания могут быть известные средства нагревания, такие как пар или нагреватель, и средствами охлаждения могут быть известные средства охлаждения, такие как естественное охлаждение, охлаждающая вода или насыщенный солевой раствор. Реакцией, как правило, является экзотермическая реакция, и охлаждение можно осуществить с помощью теплоизлучения от реактора, например. Нагревание можно проводить, когда необходимо одномоментно получить сложный эфир угольной кислоты. При охлаждении или нагревании реактора можно использовать общеизвестный способ, такой как способ с использованием рубашки или способ с использованием внутренней батареи. Диоксид углерода и алкоксид алкилолова, загруженные в реактор, могут быть загружены по отдельности или их можно сочетать до введения в реактор. Диоксид углерода и алкоксид алкилолова можно также вводить в реактор из нескольких отделов реактора. Завершение реакции можно подтверждать, например, с помощью спектроскопии  $^{119}\text{Sn}$ -ЯМР. Стадия получения конъюгата диоксида углерода алкоксида алкилолова не имеет критически важного значения, и в некоторых случаях в зависимости от работы оборудования и т.п. алкоксид алкилолова можно переносить непосредственно на следующую стадию для получения реакционной смеси, содержащей сложный эфир угольной кислоты.

Следующий способ можно использовать для получения реакционной смеси, содержащей сложный эфир угольной кислоты из конъюгата диоксида углерода алкоксида алкил(замещенный циклической группой)олова.

Условиями реакции предпочтительно являются высокая температура реакции в диапазоне от 40 до 200°C для повышения скорости реакции, но, так как вторичные реакции нежелательны, например, при высокой температуре может иметь место разложение, потенциально снижающее выход, предпочтительный диапазон составляет от 60 до 180°C, для времени реакции от 0,05 до 10 ч, и давление реакции предпочтительно находится в диапазоне от обычного давления до 20 мПа и более предпочтительно в диапазоне от 2,0 до 10 мПа. Реакция может быть завершена после получения в реакторе необходимого сложного эфира угольной кислоты. Течение реакции можно подтверждать с помощью взятия образца реакционной смеси в реакторе и анализа собранного сложного эфира угольной кислоты посредством спектроскопии  $^1\text{H}$ -ЯМР или газовой хроматографии. Например, реакцию можно завершить после получения по меньшей мере 10 мол.% по отношению к числу моль конъюгата диоксида углерода алкоксида алкилолова, и/или алкоксида алкилолова в конъюгате диоксида углерода алкоксида алкилолова, и/или алкоксида алкилолова, и, если необходимо более высокий выход сложного эфира угольной кислоты, реакцию можно продолжить до достижения выхода реакции 90% или выше, а затем завершить. Используемым реактором может быть известный тип реактора и предпочтительно башенный реактор или корпусной реактор. Материалами реактора и линии могут быть общеизвестные материалы, не оказывающие отрицательного воздействия на реакцию, и предпочтительно использовать SUS304, SUS316, SUS316L и т.п. ввиду их небольшой стоимости. При необходимости, можно также включать измерительные устройства, такие как измеритель расхода жидкости и термометр, и известное обрабатывающее оборудование, такое как ребойлер, насос, конденсатор, средства нагревания, средства охлаждения и т.п., при этом средствами нагревания могут быть известные средства нагревания, такие как пар или нагреватель, и средствами охлаждения могут быть известные средства охлаждения, такие как естественное охлаждение, охлаждающая вода или насыщенный солевой раствор.

Стадия (2): стадия отделения сложного эфира угольной кислоты от реакционной смеси для получения остаточного раствора.

На этой стадии сложный эфир угольной кислоты отделяют от реакционной смеси, содержащей сложный эфир угольной кислоты, полученный на стадии (1), и получают остаточный раствор. При процессе отделения можно использовать любой известный способ или устройство, но предпочтительным является дистилляция.

Реакционную смесь, перенесенную из стадии (1), подвергают периодическому или полупериодическому процессу или непрерывной дистилляции для получения сложного эфира угольной кислоты и остаточного раствора. Предпочтительным способом дистилляции является такой, при котором реакционную смесь вводят в дистиллятор и сложный эфир угольной кислоты отделяют от системы с верха дистиллятора в качестве компонент газобразной фазы, при этом остаточный раствор удаляют снизу дистиллятора в качестве жидкого компонента. Температура для этой стадии зависит от температуры кипения или давления сложного эфира угольной кислоты, но стадию можно проводить при диапазоне от обычной температуры (например, 20°C) до 200°C, и, так как соединение олова в остаточном растворе иногда разрушается при высокой температуре или количество сложного эфира угольной кислоты может уменьшиться ввиду обратной реакции, реакцию предпочтительно проводят при температурном диапазоне от обычной температуры (например, 20°C) до 150°C. Давление в реакторе для реакции зависит от вида сложного эфира угольной кислоты и температуры, при которой ее проводят, но, как правило, ее осуществляют при условиях от обычного до сниженного давления, и, учитывая продуктивность, давление предпочтительно находится в диапазоне от 100 Па до 80 кПа и более предпочтительно от 100 Па до 50 кПа. Время реакции может быть в диапазоне от 0,01 до 10 ч, но, так как компонент олова в реакционной смеси может разрушаться в течение длительного периода времени при высокой температуре или количество сложного эфира угольной кислоты может уменьшиться ввиду обратной реакции, время предпочтительно находится в диапазоне от 0,01 до 0,5 ч и более предпочтительно от 0,01 до 0,3 ч. Используемым дистиллятором может быть известный дистиллятор, и предпочтительно им является башенный дистиллятор или реакторный дистиллятор, которые также можно использовать в комбинации. Тонкоплочный испаритель или тонкоплочный дистиллятор является еще более предпочтительным, и тонкоплочный испаритель или тонкоплочный дистиллятор, оснащенный дистилляционной колонкой, является наиболее предпочтительным. Материалами дистиллятора и линии могут быть общеизвестные материалы, не оказывающие отрицательного воздействия на реакцию, и предпочтительно использовать SUS304, SUS316, SUS316L и т.п. ввиду их небольшой стоимости. При необходимости, можно также включать измерительные устройства, такие как измеритель расхода жидкости и термометр, и известное обрабатывающее оборудование, такое как ребойлер, насос, конденсатор, средства нагревания, средства охлаждения и т.п., при этом средствами нагревания могут быть известные средства нагревания, такие как пар или нагреватель, и средствами охлаждения могут быть известные средства охлаждения, такие как естественное охлаждение, охлаждающая вода или насыщенный солевой раствор. На стадии (2), когда не вступивший в реакцию диоксид углерода присутствует в реакционной смеси, перенесенной из стадии (1), или, когда диоксид углерода входит в состав молекулы алкоксида алкилолова, предпочтительно отделять сложный эфир угольной кислоты после удаления диоксида углерода из реакционной смеси. Способ удаления диоксида углерода может соответствовать способу отделения сложного эфира угольной кислоты.

Предпочтительно его проведение при более низкой температуре и более высоком давлении, чем для отделения сложного эфира угольной кислоты. Выбранные условия находятся в зависимости от физических свойств получаемого сложного эфира угольной кислоты - низкое удельное давление паров сложного эфира угольной кислоты и обеспечение удаления диоксида углерода. Удаляемый диоксид углерода предпочтительно повторно используют на стадии (1). Для повторного использования его предпочтительно возвращают после создания повышенного давления с помощью компрессора или т.п. При использовании компрессора включение алкоксида алкил(замещенный циклической группой)олова может потенциально закупорить компрессор или реактор, поэтому, таким образом, его предпочтительно заранее отделяют. В этом случае отделение можно проводить известным способом с помощью дистилляционной колонки и т.п.

Стадия (3): стадия реакции остаточного раствора со спиртом и удаления воды, полученной посредством реакции, для получения алкоксида алкилолова и повторного использования его на стадии (1).

Эту стадию проводят после получения остаточного раствора на стадии 2, но она схожа со стадией синтеза алкоксида алкилолова, описанной выше. На этой стадии осуществляют реакцию дегидрирования остаточного раствора и спирта, полученного на стадии (2), для повторного использования алкоксида алкил(замещенный циклической группой)олова. Остаточный раствор также содержит алкоксид алкилолова, но на этой стадии повторное использование (восстановление) проводят при соотношении алкоксида алкилолова для проведения стадии (1). Другими словами, так как на стадии (2) сложный эфир угольной кислоты предпочтительно получают из алкоксида ди(алкил(замещенный циклической группой)олова), увеличивая количественное соотношение тетра(алкил(замещенный циклической группой))диалкоксидистанноксана, целью этой стадии является восстановление алкоксида алкилолова с увеличенным количественным соотношением диалкоксида ди(алкил(замещенный циклической группой)олова).

Используемым спиртом может быть любой из вышеуказанных спиртов. Условия реакции дегидрирования также предпочтительно являются такими же, как для стадии синтеза алкоксида алкилолова, описанной выше. Реакцию можно завершать при получении необходимого алкоксида алкил(замещенный циклической группой)олова. Течение реакции можно подтверждать посредством способа измерения количества воды, удаленной из

реакционной системы, или способа взятия образца реакционной смеси для измерения спектра  $^{119}\text{Sn}$ -ЯМР. Для получения алкоксида алкилолова этого варианта осуществления изобретения на стадии (1) реакцию завершают при подтверждении нахождения молярного соотношения тетра(алкил(замещенный циклической группой))диалкоксидистанноксана и диалкоксида ди(алкил(замещенный циклической группой))олова в алкоксиде алкилолова, полученном посредством предыдущих реакций, в диапазоне от 0:100 до 80:20 и более предпочтительно от 1:99 до 70:30. Спирт можно использовать непосредственно в качестве соприствующего компонента или, в зависимости от случая, спирт можно использовать после отгонки. Предпочтительно удалять спирт, так как это позволит уменьшить объем реактора для других стадий. Способом удаления предпочтительно является известный дистилляционный процесс, и дистиллятором, используемым для дистилляции, может быть известное дистилляционное устройство. Тонкопленочное дистилляционное устройство можно использовать в качестве предпочтительного дистилляционного устройства, так как оно обеспечивает удаление в пределах короткого периода времени. Ввиду того, что оксид диалкилолова в основном не используют на этой стадии, в отличие от стадии синтеза алкоксида алкилолова, не существует каких-либо конкретных ограничений в отношении формы реактора, используемого для проведения реакции дегидрирования, и можно использовать любой известный бак или башенный реактор. Реакционная смесь с низкой температурой кипения, содержащая воду, является газообразной, и ее можно удалить из реактора посредством дистилляции, и реакционную смесь с высокой температурой кипения, содержащую алкоксид алкилолова, можно экстрагировать в виде жидкости со дна реактора. Ввиду того, что твердый оксид ди(алкил(замещенный циклической группой))олова в основном не используют на этой стадии, в отличие от стадии синтеза алкоксида алкилолова, не существует каких-либо конкретных ограничений в отношении формы реактора, используемого для проведения реакции дегидрирования, и можно использовать любой известный бак или башенный реактор. Реакционная смесь с низкой температурой кипения, содержащая воду, является газообразной, и ее можно удалить из реактора посредством дистилляции, и реакционную смесь с высокой температурой кипения, содержащую алкоксид алкилолова, можно экстрагировать в виде жидкости со дна реактора. Примеры такого реактора включают реакторы, содержащие смешительный бак, многоступенчатый смешительный бак, дистилляционную колонку, многоступенчатую дистилляционную колонку, многотрубчатый реактор, многоступенчатую дистилляционную колонку непрерывного действия, башню с насадкой, тонкопленочный испаритель, реактор, оснащенный внутренней опорой, реактор принудительной циркуляции, испаритель с падающей пленкой, испаритель падающих капель, фазный реактор струйного типа или колпачковую колонну, и можно использовать известные способы, при которых применяются комбинации этих систем. Способ с использованием реактора башенного типа является предпочтительным с точки зрения эффективного смещения равновесия реакции дегидрирования в сторону алкоксида алкилолова или способ с использованием реактора с большой площадью поверхности газожидкостного контакта используют, чтобы образовавшаяся вода быстро переходила в газовую фазу. Для этой стадии особенно предпочтительно использовать непрерывный способ с помощью многотрубчатого реактора, многоступенчатой дистилляционной колонки или башни с насадкой, заполненной наполнителем. Материалами дистиллятора и линии могут быть общеизвестные материалы, не оказывающие отрицательного воздействия на реакцию, и предпочтительно использовать SUS304, SUS316, SUS316L и т.п. ввиду их небольшой стоимости. При необходимости, можно включать измерительные устройства, такие как измеритель расхода жидкости и термометр, и известное обрабатывающее оборудование, такое как ребойлер, насос, конденсатор, средства нагревания, средства охлаждения и т.п., при этом средствами нагревания могут быть известные средства нагревания, такие как пар или нагреватель, и средствами охлаждения могут быть известные средства охлаждения, такие как естественное охлаждение, охлаждающая вода или насыщенный солевой раствор.

Выше приведен пример получения сложного эфира угольной кислоты с использованием алкоксида алкилолова.

С помощью использования соединения алкилолова для этого варианта осуществления возможно заметное повышение накопления неактивированных форм алкоксидов алкилолова, возникающее во время способов получения известного уровня техники сложного эфира угольной кислоты, и высокоэффективное получение сложных эфиров угольной кислоты.

Сложный эфир угольной кислоты, полученный на этой стадии, можно соответствующим образом использовать в качестве исходного вещества поликарбоната, исходного вещества изоцианата или исходного вещества другого химического продукта или в качестве аккумуляторного электролита для литий-ионного аккумулятора. С использованием этого способа возможно решение проблемы стоимости и утилизации при производстве сложного эфира угольной кислоты. Таким образом, изобретение имеет чрезвычайно важное значение в промышленности.

Далее следует более подробное пояснение второго вариант осуществления изобретения посредством примеров и сравнительных примеров, с пониманием того, что изобретение не ограничено этими примерами.

Сначала описаны способы анализа, использованные в примерах и сравнительных примерах.

Способы анализа.

1) Спектроскопия ЯМР.

Устройство: система JNM-A400 FT-ЯМР от JEOL Corp.

(1) Получение образцов для спектроскопии  $^1\text{H}$ -ЯМР,  $^{13}\text{C}$ -ЯМР и  $^{119}\text{Sn}$ -ЯМР.

После измерения 0,3 г жидкости, содержащей алкоксид алкилолова или алкоксид алкилолова, добавляли приблизительно 0,7 г тяжелого хлороформа (со степенью чистоты 99,8%, Aldrich Co.) и 0,08 г тетраметилолова (класса A Wako, продукт Wako Pure Chemical Industries) в качестве внутреннего стандарта для спектроскопии  $^{119}\text{Sn}$ -ЯМР и однородно перемешанный раствор использовали в качестве образца для спектроскопии ЯМР.

(2) Количественный анализ.

Анализировали содержание диалкоксида (ди(алкил(замещенный циклической группой)олова) алкоксида алкилолова, тетра(алкил(замещенный циклической группой))диалкоксидистанноксана и/или три(алкоксид алкил(замещенный циклической группой)олова) и составляли калибровочную кривую на основании внутреннего стандарта. Количественный анализ проводили для анализа образца раствор, исходя из полученной в результате калибровочной кривой.

2) Анализ воды.

Устройство: анализатор микровлажности CA-05, продукт от Mitsubishi Chemical Corp.

Образец для анализа брали с использованием шприца и взвешивали, а затем непосредственно вводили в анализатор влажности для количественной оценки влаги. Массу шприца снова измеряли и использовали разницу для подсчета массы введенного образца для определения содержания влаги в образце.

3) Анализ с помощью газовой хроматографии соединений сложного эфира угольной кислоты и сложноэфирных соединений.

Устройство: система GC-2010 от Shimadzu Corp.

(1) Получение образца раствора для анализа.

После взвешивания 0,2 г реакционной смеси добавляли приблизительно 1,5 г дегидратированного ацетона (продукт Wako Pure Chemical Industries, с содержанием воды <50 м.д.). После дополнительного добавления приблизительно 0,05 г дегидратированного толуола (продукт Wako Pure Chemical Industries, с содержанием воды <50 м.д.) или простого дифенилового эфира (высокой степени чистоты, продукт Wako Pure Chemical Industries) в качестве внутреннего стандарта смесь использовали в качестве образца раствора для проведения анализа посредством газовой хроматографии.

(2) Условия анализа посредством газовой хроматографии.

Колонка: DB-1 (продукт J&W Scientific).

Жидкая фаза: 100% диметилполисилоксан.

Длина: 30 м.

Внутренний диаметр: 0,25 мм.

Толщина пленки: 1 мкм.

Температура колонки: после удерживания 50°C в течение 5 мин температуру повышали до 300°C со скоростью повышения температуры 10°C/мин.

Температура ввода пробы: 300°C.

Температура детектора: 300°C.

Детектор: FID.

(3) Количественный анализ.

Анализировали сложноэфирное соединение или соединение сложного эфира угольной кислоты, составляли калибровочную кривую на основании внутреннего стандарта. Количественный анализ проводили для анализа образца раствора, исходя из полученной в результате калибровочной кривой.

4) Анализ соединений оксида ди(алкил(замещенный циклической группой)олова).

Устройство: система ИК-Фурье спектрометра Spectrum One/100 (метод НПВО), продукт Perkin Elmer.

Помещая приблизительно 5 мг оксида ди(алкил(замещенный циклической группой)олова) на планшет НПВО и применяя давление с помощью прижимного рычага, измеряли ИК-спектр.

Расчет концентрации атомов олова (в активном компоненте).

Активным компонентом для этого варианта осуществления является алкоксид алкилолова, эффективно функционирующий в реакции, и, в частности, им является диалкоксид ди(алкил(замещенный циклической группой)олова) и/или тетра(алкил(замещенный циклической группой))диалкоксидистанноксана. Далее следует определение концентрации атомов олова (в активном компоненте) для выражения изменения количества активного компонента.

Концентрацию атомов олова (в активном компоненте) диалкоксида ди(алкил(замещенный циклической группой))олова рассчитывали с помощью математической формулы (1). Например, концентрацию атомов олова композиции диалкоксида ди(алкил(замещенный циклической группой))олова, полученной посредством примера синтеза 1 ниже, рассчитывали с помощью математической формулы (1).

[Математическая формула 33]

$$\text{Концентрация атомов олова (в активном компоненте)} = C_1 \quad (1)$$

где "концентрация атомов олова (в активном компоненте)" представляет собой концентрацию [моль/кг] атомов олова (в активном компоненте) в композиции диалкоксида ди(алкил(замещенный циклической группой))олова; и

$C_1$  представляет собой концентрацию [моль/кг] диалкоксид ди(алкил(замещенный циклической группой))олова в композиции диалкоксида ди(алкил(замещенный циклической группой))олова.

$C_1$  можно определять, исходя из результатов спектроскопии  $^{119}\text{Sn}$ -ЯМР композиции диалкоксида ди(алкил(замещенный циклической группой))олова.

Концентрацию атомов олова (в активном компоненте) для композиций тетра(алкил(замещенный циклической группой))диалкоксидистанноксана рассчитывали с помощью математической формулы (2). Например, концентрацию атомов олова (в активном компоненте) композиции тетра(алкил(замещенный циклической группой))диалкоксидистанноксана, полученной посредством примера синтеза 2 ниже, рассчитывали с помощью математической формулы (2).

[Математическая формула 34]

$$\text{Концентрация атомов олова (в активном компоненте)} = 2 \cdot C_2 \quad (2)$$

где "концентрация атомов олова (в активном компоненте)" представляет собой концентрацию [моль/кг] атомов олова (в активном компоненте) в композиции тетра(алкил(замещенный циклической группой))диалкоксидистанноксана;

$C_2$  представляет собой концентрацию [моль/кг] тетра(алкил(замещенный циклической группой))диалкоксидистанноксана в композиции тетра(алкил(замещенный циклической группой))диалкоксидистанноксана.

$C_2$  можно определять, исходя из результатов спектроскопии  $^{119}\text{Sn}$ -ЯМР композиции тетра(алкил(замещенный циклической группой))диалкоксидистанноксана.

Концентрацию атомов олова (в активном компоненте) в композиции, содержащей диалкоксид ди(алкил(замещенный циклической группой))олова и/или тетра(алкил(замещенный циклической группой))диалкоксидистанноксан, или композиции, также содержащей алкоксид три(алкил(замещенный циклической группой))олова, рассчитывали с помощью математической формулы (3).

[Математическая формула 35]

$$\text{Концентрация атомов олова (в активном компоненте)} = C_1 + 2 \cdot C_2$$

(3)

где "концентрация атомов олова (в активном компоненте)" представляет собой концентрацию [моль/кг] атомов олова диалкоксида ди(алкил(замещенный циклической группой))олова и/или тетра(алкил(замещенный циклической группой))диалкоксидистанноксана в композиции;

$C_1$  представляет собой концентрацию [моль/кг] диалкоксида ди(алкил(замещенный циклической группой))олова в композиции;

$C_2$  представляет собой концентрацию [моль/кг] тетра(алкил(замещенный циклической группой))диалкоксидистанноксана в композиции;

$C_1$  и  $C_2$  можно определять посредством спектроскопии  $^{119}\text{Sn}$ -ЯМР композиции.

Пример синтеза 1. Синтез композиции ди(циклогексилметил)диэтоксидолова.

Синтез ди(циклогексилметил)диэтоксидолова.

После помещения 34,38 г (0,1 моль) дифенилдихлоролова (99% со степенью чистоты, продукт Wako Pure Chemical Industries) и 150 мл простого циклопентилметилового эфира (со степенью дегидрирования, продукт Aldrich) в четырехгорлую круглодонную колбу объемом 1 л, соединенную с термометром, трехходовым краном и конденсатором Dimroth, в азотный шкаф под азотной атмосферой добавляли магнитную вертушку и для перемешивания использовали магнитную мешалку при комнатной температуре для образования гомогенного раствора. Затем в 500 мл капельную воронку добавляли 400 мл 0,5 М раствора брома ди(циклогексилметил)магния в тетрагидрофуране (продукт Aldrich) и капельную воронку соединяли с четырехгорлой колбой. Колбу удаляли из азотного шкафа и погружали в ледяную ванну при одновременном оставлении под газообразной азотной атмосферой, и начинали перемешивание.

Затем начинали капельное пропускание раствора из капельной воронки, корректируя скорость капельного пропускания таким образом, чтобы температура жидкой смеси в колбе не превышала 40°C. По мере капельного пропускания в колбе образовалось белое твердое вещество. По завершении капельного пропускания перемешивание смеси в колбе продолжали в течение приблизительно 3 ч. Затем колбу переносили в азотный шкаф, и всасывающий фильтр использовали для фильтрации белого твердого вещества под азотной атмосферой. Дистилляционное разделение простого диэтилового эфира и простого циклопентилметилового эфира проводили из собранного фильтрата. Компонент с высокой температурой

кипения после дистилляционного разделения подвергали дополнительной дистилляции, и из собранной фракции получали 45,5 г ди(циклогексилметил)дифенилолова.

Затем ди(циклогексилметил)дифенилолова вводили в трехгорлую круглодонную колбу объемом 300 мл, оснащенную термометром, трехходовым краном и соединительной трубкой ответвительной трубы (соединительная трубка ответвительной трубы соединена с прибором с конденсатором Liebig, соединительной трубкой со сниженным давлением и двумя взаимосвязанными сосудами для сбора дистиллята), а затем добавляли 16 6,4 г (2,8 моль) уксусной кислоты (высокой степени чистоты, продукт Wako Pure Chemical Industries). Колбу погружали в масляную ванну и начинали перемешивание и нагревание жидкой смеси. Температуру масляной ванны корректировали таким образом, чтобы температура жидкой смеси составляла приблизительно 100°C, и перемешивание и нагревание продолжали в течение приблизительно 2 ч, после этого брали образец жидкой смеси. Получение бензола в смеси подтверждали согласно результатам проведенной газовой хроматографии. Затем в колбе постепенно снижали давление и избыток уксусной кислоты и бензола отделяли посредством дистилляции. После дистилляционного разделения из компонента с высокой температурой кипения получали ди(циклогексилметил)диацетоксиолова.

Синтез ди(циклогексилметил)диэтоксиолова.

Ди(циклогексилметил)диацетоксиолова вводили в трехгорлую круглодонную колбу объемом 300 мл, оснащенную термометром, трехходовым краном и соединительной трубкой ответвительной трубы (соединительная трубка ответвительной трубы соединена с прибором с конденсатором Liebig, соединительной трубкой со сниженным давлением и двумя взаимосвязанными сосудами для сбора дистиллята) под азотной атмосферой, а затем добавляли 295 г (2,5 моль) диэтилкарбоната (со степенью дегидрирования, продукт Aldrich). Колбу погружали в масляную ванну, и начинали перемешивание и нагревание жидкой смеси. Температуру масляной ванны корректировали таким образом, чтобы температура жидкой смеси составляла приблизительно 130°C, и перемешивание и нагревание продолжали в течение приблизительно 8 ч, после этого брали образец жидкой смеси. Получение этилацетата в смеси подтверждали согласно результатам проведенной газовой хроматографии. Затем в колбе постепенно снижали давление и избыток диэтилкарбоната и этилацетата отделяли посредством дистилляции, после этого собирали 35,1 г компонента с высокой температурой кипения (композиции), содержащего ди(циклогексилметил)диэтоксиолова. Согласно результатам спектроскопии <sup>119</sup>Sn-ЯМР количество ди(циклогексилметил)диэтоксиолова в композиции составило 34,5 г. Другими словами, концентрация ди(циклогексилметил)диэтоксиолова в композиции составила 2,44 моль/кг, и концентрация атомов олова (в активном компоненте) композиции составила 2,44 моль/кг.

Пример синтеза 2. Синтез композиции 1,1,3,3-тетра(циклогексилметил)-1,3-диэтоксидистанноксана.

После помещения 20,2 г (0,05 моль) ди(циклогексилметил)диэтоксиолова, полученного в примере синтеза 1, в четырехгорлую круглодонную колбу объемом 300 мл, оснащенную термометром, трехходовым краном, капельной воронкой и соединительной трубкой ответвительной трубы (соединительная трубка ответвительной трубы соединена с прибором с конденсатором Liebig, соединительной трубкой со сниженным давлением и двумя взаимосвязанными сосудами для сбора дистиллята), добавляли 80 г этанола (со степенью дегидрирования, продукт Wako Pure Chemical Industries). Затем 85 г этанола и 0,45 г (0,025 моль) ионообменной воды смешивали в 200 мл лабораторном стакане и при образовании гомогенного раствора его помещали в капельную воронку. Колбу погружали в масляную ванну и начинали перемешивание и нагревание. Начинали капельное пропускание после корректировки температуры масляной ванны таким образом, чтобы температура жидкой смеси составляла приблизительно 40°C. По завершении капельного пропускания жидкую смесь оставляли при 40°C и перемешивание продолжали в течение 2 ч. Затем в колбе постепенно снижали давление и этанол отгоняли, после этого 18,6 г собирали компонент (композицию) с высокой температурой кипения, содержащий 1,1,3,3-тетра(циклогексилметил)-1,3-диэтоксидистанноксан. Количество 1,1,3,3-тетра(циклогексилметил)-1,3-диэтоксидистанноксана в композиции, определенное посредством спектроскопии <sup>119</sup>Sn-ЯМР, составляло 18,3 г. Другими словами, концентрация 1,1,3,3-тетра(циклогексилметил)-1,3-диэтоксидистанноксана в композиции составляла 1,34 моль/кг, и концентрация атомов олова (в активном компоненте) композиции составляла 2,68 моль/кг.

Пример синтеза 3. Синтез композиции, содержащей алкоксид три(алкил(замещенный циклической группой))олова.

После введения 15 г 1,1,3,3-тетра(циклогексилметил)-1,3-диэтоксидистанноксана, полученного посредством способа примера синтеза 2, в трехгорлую колбу объемом 50 мл, оснащенную конденсатором Dimroth, кремнийорганическим колпачком и термометром, соединенным с трехходовым краном, с использованием газонепроницаемого шприца (1050TLL, продукт Hamilton), затем вводили 10 г ди(циклогексилметил)диэтоксиолова, полученного посредством способа примера синтеза 1, для получения композиции алкоксида алкил(замещенный циклической группой)олова, содержащей 1,1,3,3-тетра(циклогексилметил)-1,3-диэтоксидистанноксан и ди(циклогексилметил)диэтоксиолова. Колбу погружали в масляную ванну, нагретую до 186°C. При перемешивании и нагревании в течение при-



близительно 15 мин температура жидкости композиции алкоксида алкил(замещенный циклической группой)олова в колбе достигла 180°C. Перемешивание и нагревание продолжали при периодическом взятии пробы при одновременном периодическом взятии пробы и проводили спектроскопию  $^{119}\text{Sn}$ -ЯМР и при подтверждении получения 0,0045 моль три(циклогексилметил)этоксиолова в композиции нагревание прекращали. Соотношение компонента после нагрева выражали по отношению к атомам олова. Концентрация атомов олова (в активном компоненте) композиции, содержащей ди(циклогексилметил)диэтоксиолова и 1,1,3,3-тетра(циклогексилметил)-1,3-диэтокси-дистанноксан, до нагревания составляла 2,58 моль/кг согласно расчету по математической формуле (3), и концентрация атомов олова, полученных из исходных веществ в композиции после нагревания (концентрация атомов олова, определенная, исходя из содержания ди(циклогексилметил)диэтоксиолова и 1,1,3,3-тетра(циклогексилметил)-1,3-диэтоксидистанноксана), изменилась до 2,22 моль/кг (снизилась приблизительно на 14% по сравнению с моментом до нагрева), в то же время концентрация три(циклогексилметил)этоксиолова составила 0,18 моль/кг. Другими словами, полученная композиция, содержащая алкоксид три(алкил(замещенный циклической группой)олова, изменилась приблизительно на 7% по отношению к три(циклогексилметил)этоксиолу в отношении концентрации атомов олова (в активном компоненте) композиции алкоксида алкил(замещенный циклической группой)олова до нагревания.

Пример синтеза 4. Синтез композиции дибензил-бис-(3-метилбутилокси)олова.

Синтез дибензилдихлоролова.

После введения 17,81 г (0,15 моль) порошка олова (со степенью чистоты 99,9%, продукт Wako Pure Chemical Industries), 100 мл толуола (со степенью дегидрирования, продукт Wako Pure Chemical Industries) и 38,9 г (0,31 моль) бензилхлорида (99,5% со степенью чистоты, продукт Aldrich) в четырехгорлую круглодонную колбу объемом 500 мл, соединенную с термометром, трехходовым краном и конденсатором Dimroth, в азотный шкаф, добавляли магнитную мешалку. Колбу удаляли из азотного шкафа и погружали в масляную ванну при одновременном оставлении под газообразной азотной атмосферой и начинали перемешивание и нагревание жидкой смеси. Температуру масляной ванны корректировали до состояния кипения жидкой смеси и стабильного кипячения с обратным холодильником толуола и перемешивание и нагревание продолжали в течение приблизительно 3 ч.

Затем жидкую смесь вводили в трехгорлую круглодонную колбу объемом 300 мл, оснащенную термометром, трехходовым краном и соединительной трубкой ответвительной трубы (соединительная трубка ответвительной трубы соединена с прибором с конденсатором Liebig, соединительной трубкой со сниженным давлением и двумя взаимосвязанными сосудами для сбора дистиллята). Колбу погружали в масляную ванну и начинали перемешивание и нагревание жидкой смеси. Температуру масляной ванны корректировали таким образом, чтобы температура жидкой смеси составляла 100°C, а затем в колбе постепенно снижали давление и толуол отгоняли. Композицию дибензилдихлоролова получали из компонента с высокой температурой кипения после дистилляционного разделения. Композицию дибензилдихлоролова повторно кристаллизовали с использованием этилацетата и очищали дибензилдихлоролова. Количество собранного дибензилдихлоролова составило 33,5 г.

Синтез оксида дибензилолова.

После помещения 33,0 г (0,089 моль) дибензилдихлоролова и 50 мл простого циклопентилметилового эфира (со степенью дегидрирования, продукт Aldrich) в четырехгорлую круглодонную колбу объемом 500 мл, соединенную с термометром, трехходовым краном и конденсатором Dimroth, в азотный шкаф, добавляли магнитную вертушку и для перемешивания использовали магнитную мешалку при комнатной температуре для образования гомогенного раствора. Затем 180 мл 1 М раствора гидроксида калия в этаноле (продукт Wako Pure Chemical Industries) помещали в 200 мл капельную воронку и капельную воронку соединяли с четырехгорлой колбой. Колбу удаляли из азотного шкафа и погружали в ледяную ванну при одновременном оставлении под газообразной азотной атмосферой и начинали перемешивание. Затем начинали капельное пропускание раствора из капельной воронки, корректируя скорость капельного пропускания таким образом, чтобы температура жидкой смеси в колбе не превышала 40°C. По мере капельного пропускания в колбе образовалось белое твердое вещество. По завершении капельного пропускания перемешивание смеси в колбе продолжали в течение приблизительно 3 ч и всасывающий фильтр использовали в азотном шкафу для фильтрации белого твердого вещества. Собранное твердое вещество промывали 3 раза ионообменной водой и два раза ацетоном, а затем сушили в вакууме. Количество сухого твердого вещества составляло 24,5 г, и в результате измерения ИК-спектра было выявлено содержание оксида дибензилолова, составляющее приблизительно 98,7%.

Синтез композиции дибензил-бис-(3-метилбутилокси)олова.

В круглодонную колбу объемом 1 л вводили 25,4 г (0,08 моль) оксида дибензилолова и 881,5 г (10 моль) 3-метил-1-бутилового спирта (продукт Aldrich). Колбу, содержащую белую шламopodobную смесь, помещали на испаритель, соединенный с масляной ванной с регулятором температуры, а также вакуумным насосом и регулятором вакуума. Температуру масляной ванны установили на уровне 140°C, колбу погружали в масляную ванну и начинали вращение испарителя. После вращательного перемешивания и нагревания в течение приблизительно 20 мин при обычном давлении с оставленным открытым

воздуховыпускным клапаном начинали собирать дистиллят, содержащий в основном 3-метил-1-бутиловый спирт. Это состояние поддерживали в течение 5 ч, а затем колбу вынимали из масляной ванны. Реакционная смесь представляла собой прозрачную жидкость. Общее количество дистиллята составляло 620,5 г, и согласно анализу дистиллята с помощью анализатора микровлажности содержание влаги составляло 1,48 г (0,08 моль). Затем температуру масляной ванны устанавливали на уровне 120°C, колбу снова погружали в масляную ванну при вращательном перемешивании в течение приблизительно 20 мин при обычном давлении, а затем с целью удаления избытка 3-метил-1-бутилового спирта воздуховыпускной клапан закрывали и вакуумный насос и регулятор вакуума использовали для постепенного снижения давления в системе с 1,8 до 2,5 кПа. Это состояние поддерживали в течение 3 ч, а затем колбу вынимали из масляной ванны, воздуховыпускной клапан медленно открывали и сухой газообразный азот вводили в систему для восстановления обычного давления. После дистилляции собирали 38,7 г компонента (композиции) с высокой температурой кипения, содержащем дибензил-бис-(3-метилбутилокси)олова. Согласно результатам проведенной спектроскопии  $^{119}\text{Sn}$ -ЯМР композиции содержание дибензил-бис-(3-метилбутилокси)олова составляло 38,1 г. Другими словами, концентрация дибензил-бис-(3-метилбутилокси)олова в композиции составляла 2,07 моль/кг, и концентрация атомов олова (в активном компоненте) композиции составляла 2,07 моль/кг.

Пример синтеза 5. Синтез композиции 1,1,3,3-тетрабензил-1,3-бис-(3-метилбутилокси)-дистанноксана.

После введения 38,0 г (0,08 моль) дибензил-бис-(3-метилбутилокси)олова, полученного в примере синтеза 4, в четырехгорлую круглодонную колбу объемом 300 мл, оснащенную термометром, трехходовым краном, капельной воронкой и соединительной трубкой ответвительной трубы (соединительная трубка ответвительной трубы соединена с прибором с конденсатором Liebig, соединительной трубкой со сниженным давлением и двумя взаимосвязанными сосудами для сбора дистиллята), добавляли 100 г изоамилового спирта (высокой степени чистоты, продукт Wako Pure Chemical Industries), предварительно очищенного посредством дистилляции. Затем 100 г изоамилового спирта и 0,72 г (0,04 моль) ионообменной воды смешивали в 200 мл лабораторном стакане и при образовании гомогенного раствора его помещали в капельную воронку. Колбу погружали в масляную ванну и начинали перемешивание и нагревание. Начинали капельное пропускание после корректировки температуры масляной ванны таким образом, чтобы температура жидкой смеси составляла приблизительно 45°C. По завершении капельного пропускания жидкую смесь оставляли при 45°C и перемешивание продолжали в течение 2 ч. Затем в колбе постепенно снижали давление и проводили дистилляционное разделение изоамилового спирта. После дистилляции собирали 31,8 г компонента (композиция) с высокой температурой кипения, содержащего 1,1,3,3-тетрабензил-1,3-бис-(3-метилбутилокси)дистанноксан. Согласно результатам проведенной спектроскопии  $^{119}\text{Sn}$ -ЯМР композиции, содержание 1,1,3,3-тетрабензил-1,3-бис-(3-метилбутилокси)-дистанноксана составляло 31,4 г. Другими словами, концентрация 1,1,3,3-тетрабензил-1,3-бис-(3-метилбутилокси)дистанноксана в композиции составляла 1,25 моль/кг, и концентрация атомов олова (в активном компоненте) композиции составляла 2,50 моль/кг.

Пример синтеза 6. Синтез композиции, содержащей алкоксид три(алкил(замещенный циклической группой))олова.

Для введения 15 г 1,1,3,3-тетрабензил-1,3-бис-(3-метилбутилокси)дистанноксана, полученного посредством способа примера синтеза 2, трехгорлую колбу объемом 50 мл, оснащенную конденсатором Dimroth, кремнийорганическим колпачком и термометром, соединенным с трехходовым краном, использовали газонепроницаемый шприц (1050TLL, продукт Hamilton), а затем 10 г дибензил-бис-(3-метилбутилокси)олова, полученного посредством способа примера синтеза 1, вводили аналогичным образом для получения композиции алкоксида алкил(замещенный циклической группой)олова, содержащей 1,1,3,3-тетрабензил-1,3-бис-(3-метилбутилокси)дистанноксан и дибензил-бис-(3-метилбутилокси)олова. Колбу погружали в масляную ванну, нагретую до 186°C. При перемешивании и нагревании в течение приблизительно 15 мин температура жидкости композиции алкоксида алкил(замещенный циклической группой)олова в колбе достигала 180°C. Перемешивание и нагревание продолжали при периодическом взятии пробы, при одновременном периодическом взятии пробы и проводили спектроскопию  $^{119}\text{Sn}$ -ЯМР и при подтверждении получения 0,0041 моль трибензил(3-метилбутилокси)олова в композиции нагревание прекращали. Соотношение компонента после нагрева выражали по отношению к атомам олова. Концентрация атомов олова (в активном компоненте) композиции, содержащей дибензил-бис-(3-метилбутилокси)олова и 1,1,3,3-тетрабензил-1,3-бис-(3-метилбутилокси)дистанноксан, до нагревания составляла 2,33 моль/кг при расчете с помощью математической формулы (3), и концентрация атомов олова, полученных из исходного вещества в композиции после нагревания (концентрация атомов олова, определенная, исходя из содержания дибензил-бис-(3-метилбутилокси)олова и 1,1,3,3-тетрабензил-1,3-бис-(3-метилбутилокси)дистанноксана) изменилась до 2,03 моль/кг (со снижением приблизительно на 13% по сравнению с моментом до нагревания), в то время как концентрация о атомов олова, полученных из трибензил(3-метилбутилокси)олова, составила 0,16 моль/кг. Другими словами, композиция, содержащая алкоксид три(алкил(замещенный циклической группой))олова, изменилась приблизительно на 7%

относительно трибензил(3-метилбутилокси)олова в отношении концентрации атомов олова (в активном компоненте) композиция алкоксида алкил(замещенный циклической группой)олова до нагревания.

Пример синтеза 7. Синтез композиции бис-(2-фенилэтил)-бис-(3-метилбутилокси)олова.

Синтез бис-(2-фенилэтил)дихлоролова.

После введения 17,81 г (0,15 моль) порошка олова (со степенью чистоты 99,9%, продукт Wako Pure Chemical Industries), 100 мл толуола (со степенью дегидрирования, продукт Wako Pure Chemical Industries) и 43,6 г (0,31 моль) 2-хлорэтилбензола (со степенью чистоты 99%, продукт Aldrich) в четырехгорлую круглодонную колбу объемом 500 мл, соединенную с термометром, трехходовым краном и конденсатором Dimroth, в азотный шкаф, добавляли магнитную мешалку. Колбу удаляли из азотного шкафа и погружали в масляную ванну при одновременном оставлении под газообразной азотной атмосферой и начинали перемешивание и нагревание жидкой смеси. Температуру масляной ванны корректировали до состояния кипения жидкой смеси и стабильного кипячения с обратным холодильником толуола, и перемешивание и нагревание продолжали в течение приблизительно 5 ч.

Затем жидкую смесь вводили в трехгорлую круглодонную колбу объемом 300 мл, оснащенную термометром, трехходовым краном, соединительной трубкой ответвительной трубы, конденсатором Liebig, соединительной трубкой со сниженным давлением и двумя взаимосвязанными сосудами для сбора дистиллята. Колбу погружали в масляную ванну, и начинали перемешивание и нагревание жидкой смеси. Температуру масляной ванны корректировали таким образом, чтобы температура жидкой смеси составляла 100°C, а затем в колбе постепенно снижали давление и толуол отгоняли. После дистилляции композицию бис-(2-фенилэтил)дихлоролова получали из компонента с высокой температурой кипения. Композицию бис-(2-фенилэтил)дихлоролова повторно кристаллизовали с использованием этилацетата для очистки бис-(2-фенилэтил)дихлоролова. Количество собранного бис-(2-фенилэтил)дихлоролова составляло 35,5 г.

Синтез оксида бис-(2-фенилэтил)олова.

После помещения 34,5 г (0,086 моль) бис-(2-фенилэтил)дихлоролова и 50 мл простого циклопентилметилового эфира (со степенью дегидрирования, продукт Aldrich) в четырехгорлую круглодонную колбу объемом 500 мл, соединенную с термометром, трехходовым краном и конденсатором Dimroth, в азотный шкаф, добавляли магнитную вертушку и для перемешивания использовали магнитную мешалку при комнатной температуре для образования гомогенного раствора. Затем 172 мл 1 М раствора гидроксида калия в этаноле (продукт Wako Pure Chemical Industries) помещали в 200 мл капельную воронку и капельную воронку соединяли с четырехгорлой колбой. Колбу удаляли из азотного шкафа и погружали в ледяную ванну при одновременном оставлении под газообразной азотной атмосферой и начинали перемешивание. Затем начинали капельное пропускание раствора из капельной воронки, корректируя скорость капельного пропускания таким образом, чтобы температура жидкой смеси в колбе не превышала 40°C. По мере капельного пропускания в колбе образовалось белое твердое вещество. По завершении капельного пропускания перемешивание смеси в колбе продолжали в течение приблизительно 3 ч, и всасывающий фильтр использовали в азотном шкафу для фильтрации белого твердого вещества. Собранное твердое вещество промывали 3 раза ионообменной водой и два раза ацетоном, а затем сушили в вакууме. Количество сухого твердого вещества составляло 26,1 г, и согласно измерению ИК-спектра твердого вещества содержание оксида бис-(2-фенилэтил)олова составляло приблизительно 25,8 г.

Синтез композиции бис-(2-фенилэтил) бис-(3-метилбутилокси)олова.

В круглодонную колбу объемом 1 л вводили 24,1 г (0,07 моль) оксида бис-(2-фенилэтил)олова и 881,5 г (10 моль) 3-метил-1-бутилового спирта (продукт Aldrich). Колбу, содержащую белую шламоподобную смесь, помещали на испаритель, соединенный с масляной ванной с регулятором температуры, вакуумным насосом и регулятором вакуума. Температуру масляной ванны устанавливали на уровне 140°C, колбу погружали в масляную ванну и начинали вращение испарителя. После вращательного перемешивания и нагревания в течение приблизительно 20 мин при обычном давлении с оставленным открытым воздуховыпускным клапаном начали собирать дистиллят, содержащий в основном 3-метил-1-бутиловый спирт. Это состояние поддерживали в течение 5 ч, а затем колбу вынимали из масляной ванны. Реакционная смесь представляла собой прозрачную жидкость. Общее количество полученного дистиллята составляло 630,5 г, и согласно анализу дистиллята с помощью анализатора микровлажности содержание влаги составляло 1,27 г (0,07 моль). Затем температуру масляной ванны устанавливали на уровне 120°C, колбу снова погружали в масляную ванну и осуществляли вращательное перемешивание в течение приблизительно 20 мин при обычном давлении, а затем с целью удаления избытка 3-метил-1-бутилового спирта воздуховыпускной клапан закрывали и вакуумный насос и регулятор вакуума использовали для постепенного снижения давления в системе с 1,8 до 2,5 кПа. Это состояние поддерживали в течение 3 ч, а затем колбу вынимали из масляной ванны, воздуховыпускной клапан медленно открывали и в систему вводили сухой газообразный азот для восстановления в ней обычного давления. После дистилляции собирали 35,8 г компонента с высокой температурой кипения (композиции), содержащего бис-(2-фенилэтил)-бис-(3-метилбутилокси)олова. Согласно результатам проведенной спектроскопии <sup>119</sup>Sn-ЯМР композиции содержание бис-(2-фенилэтил)-бис-(3-метилбутилокси)олова составляло 35,3 г. Дру-

гими словами, концентрация бис-(2-фенилэтил)-бис-(3-метилбутилокси)олова в композиции составляла 1,96 моль/кг, и концентрация атомов олова (в активном компоненте) композиции составляла 1,96 моль/кг.

Пример синтеза 8. Синтез композиции 1,1,3,3-тетраakis-(2-фенилэтил)-1,3-бис-(3-метилбутилокси)-дистанноксана.

После введения 30,2 г (0,06 моль) бис-(2-фенилэтил)-бис-(3-метилбутилокси)олова, полученного в примере синтеза 4, в четырехгорлую круглодонную колбу объемом 300 мл, оснащенную термометром, трехходовым краном, капельной воронкой, соединительной трубкой ответвительной трубы (соединительная трубка ответвительной трубы соединена с прибором с конденсатором Liebig, соединительной трубкой со сниженным давлением и двумя взаимосвязанными сосудами для сбора дистиллята), добавляли 100 г изоамилового спирта (высокой степени чистоты, продукт Wako Pure Chemical Industries), предварительно очищенного посредством дистилляции. Затем 100 г изоамилового спирта и 0,54 г (0,03 моль) ионообменной воды смешивали в 200 мл лабораторном стакане и при образовании гомогенного раствора помещали в капельную воронку. Колбу погружали в масляную ванну и начинали перемешивание и нагревание. Начинали капельное пропускание после корректировки температуры масляной ванны таким образом, чтобы температура жидкой смеси составляла приблизительно 45°C. По завершении капельного пропускания жидкую смесь оставляли при 45°C и перемешивание продолжали в течение 2 ч. Затем в колбе постепенно снижали давление и проводили дистилляционное разделение изоамилового спирта. После дистилляции собирали 25,5 г компонента с высокой температурой кипения (композиции), содержащего 1,1,3,3-тетраakis-(2-фенилэтил)-1,3-бис-(3-метилбутилокси)дистанноксана. Согласно результатам проведенной спектроскопии  $^{119}\text{Sn}$ -ЯМР композиции, содержание 1,1,3,3-тетраakis-(2-фенилэтил)-1,3-бис-(3-метилбутилокси)дистанноксана в композиции составляло 25,1 г. Другими словами, концентрация 1,1,3,3-тетраakis-(2-фенилэтил)-1,3-бис-(3-метилбутилокси)дистанноксана в композиции составляла 1,16 моль/кг, и концентрация атомов олова (в активном компоненте) композиции составляла 2,32 моль/кг.

Пример синтеза 9. Синтез композиции, содержащей алкоксид три(алкил(замещенный циклической группой))олова.

Для введения 15 г 1,1,3,3-тетраakis-(2-фенилэтил)-1,3-бис-(3-метилбутилокси)дистанноксана, полученного посредством способа примера синтеза 2, в трехгорлую колбу объемом 50 мл, оснащенную конденсатором Dimroth, кремнийорганическим колапчком и термометром, соединенным с трехходовым краном, использовали газонепроницаемый шприц (1050TLL, продукт Hamilton), а затем 10 г бис-(2-фенилэтил)-бис-(3-метилбутилокси)олова, полученного посредством способа примера синтеза 1, вводили аналогичным образом для получения композиции алкоксида алкил(замещенный циклической группой)олова, содержащей 1,1,3,3-тетраakis-(2-фенилэтил)-1,3-бис-(3-метилбутилокси)дистанноксан и бис-(2-фенилэтил)-бис-(3-метилбутилокси)олова. Колбу погружали в масляную ванну, нагретую до 186°C. При перемешивании и нагревании в течение приблизительно 15 мин температура жидкости композиции алкоксида алкил(замещенный циклической группой)олова в колбе достигала 180°C. Перемешивание и нагревание продолжали при одновременном периодическом взятии пробы, проводили спектроскопию  $^{119}\text{Sn}$ -ЯМР и при подтверждении получения 0,0038 моль трис-(2-фенилэтил)(3-метилбутилокси)олова в композиции нагревание прекращали. Соотношение компонента после нагрева выражали по отношению к атомам олова. Концентрация атомов олова (в активном компоненте) композиции, содержащей бис-(2-фенилэтил)-бис-(3-метилбутилокси)олова и 1,1,3,3-тетраakis-(2-фенилэтил)-1,3-бис-(3-метилбутилокси)дистанноксан, до нагревания составляла 2,18 моль/кг согласно расчету с помощью математической формулы (3), и концентрация атомов олова, полученных из исходного вещества в композиции после нагревания (концентрация атомов олова, определенная, исходя из содержания бис-(2-фенилэтил)-бис-(3-метилбутилокси)олова и 1,1,3,3-тетраakis-(2-фенилэтил)-1,3-бис-(3-метилбутилокси)дистанноксана) изменилась до 1,87 моль/кг (снизилась приблизительно на 14% по сравнению с моментом до нагрева), в то же время концентрация атомов олова, полученных из трис-(2-фенилэтил)(3-метилбутилокси)олова, составляла 0,15 моль/кг. Другими словами, композиция, содержащая алкоксид три(алкил(замещенный циклической группой))олова, изменилась приблизительно на 7% относительно трис-(2-фенилэтил)(3-метилбутилокси)олова в отношении концентрации атомов олова (в активном компоненте) композиции алкоксида алкил(замещенный циклической группой)олова до нагревания.

Пример синтеза 10. Синтез композиции 1,1,3,3-тетрабутил-1,3-бис-(2-этилбутилокси)дистанноксана

В трехгорлую колбу объемом 2 л, оснащенную термометром, трехходовым краном и водомерным устройством, соединенным с конденсатором Dimroth, помещали 199,8 г (0,80 моль) оксида дибутилолова (продукт Aldrich), 1045 г (8,0 моль) 2-этил-1-бутилового спирта (продукт Aldrich) и 500 г толуола (для органического синтеза, продукт Wako Pure Chemical Industries). Колбу, содержащую белую шламоподобную смесь, погружали в масляную ванну с установленной температурой 130°C. После перемешивания и нагревания в течение приблизительно 30 мин смесь начала кипеть, и, таким образом, вода и толуол начали собираться в водомерном устройстве.

После поддержания этого состояния в течение приблизительно 3 ч приблизительно 7,2 мл воды собирали в водомерном устройстве. Затем температуру масляной ванны понижали до 90°C и при снижении температуры смеси водомерное устройство удаляли и колбу соединяли с соединительной трубкой ответвительной трубы, конденсатором Liebig, соединительной трубкой со сниженным давлением и двумя взаимосвязанными сосудами для сбора дистиллята. Давление внутри системы снижали до 29 кПа и толуол отгоняли из колбы, после давление внутри системы снижали для отгонки избытка 2-этил-1-бутилового спирта. После дистилляции из колбы собирали 300 г компонента с высокой температурой кипения (композиции). Согласно результатам проведенной спектроскопии  $^{119}\text{Sn}$ -ЯМР композиции содержание 1,1,3,3-тетрабутил-1,3-бис-(2-этилбутилокси)дистанноксана в композиции составило 295 г.

Пример синтеза 11. Синтез композиции дибутыл-бис-(2-этилбутокси)олова.

В круглодонную колбу объемом 1 л помещали 20,1 г (0,081 моль) оксида дибутилолова (продукт Aldrich) и 835 г (8,2 моль) 2-этил-1-бутилового спирта (продукт Aldrich). Колбу, содержащую белую шламopodobную смесь, помещали на испаритель, соединенный с масляной ванной с регулятором температуры, вакуумным насосом и регулятором вакуума. Температуру масляной ванны устанавливали на уровне 150°C, колбу погружали в масляную ванну и начинали вращение испарителя. После вращательного перемешивания и нагревания в течение приблизительно 20 мин при обычном давлении с оставленным открытым воздуховыпускным клапаном воздуховыпускной клапан испарителя закрывали и давление внутри системы постепенно снижали с использованием вакуумного насоса и регулятора вакуума с 54 до 75 кПа. Это состояние поддерживали в течение 1,5 ч, а затем колбу вынимали из масляной ванны. Реакционная смесь представляла собой прозрачную жидкость. Воздуховыпускной клапан постепенно открывали для введения в систему сухого газообразного азота для восстановления обычного давления в системе. Количество дистиллированной жидкости составляло 99,2 г, и она была прозрачной, и ее разделяли на 2 слоя. Согласно анализу дистиллята с помощью анализатора микровлажности содержание влаги составляло 1,5 г (0,083 моль). Затем температуру масляной ванны понижали до 100°C, колбу снова погружали в масляную ванну при вращательном перемешивании и обычном вращении в течение приблизительно 20 мин при обычном давлении, а затем с целью удаления избытка 2-этил-1-бутилового спирта, воздуховыпускной клапан закрывали, и вакуумный насос и регулятор вакуума использовали для постепенного снижения давления в системе с 1,8 до 2,5 кПа. Это состояние поддерживали в течение 3 ч, а затем колбу вынимали из масляной ванны и воздуховыпускной клапан медленно открывали для восстановления обычного давления внутри системы. После дистилляции из колбы собирали 36 г компонента (композиции) с высокой температурой кипения. Согласно результатам проведенной спектроскопии  $^{119}\text{Sn}$ -ЯМР композиции содержание дибутыл-бис-(2-этилбутокси)олова композиции составляло 35,5 г.

Пример 1.

Циркуляционный реактор непрерывного действия, включающий корпусной реактор, трубчатый реактор и башенный реактор для проведения реакции переэтерификации.

Композицию тетра(алкил(замещенный циклической группой))диалкоксидистанноксана вводили в циркуляционный реактор непрерывного действия и осуществляли циркуляцию для проведения пробного испытания. Приблизительно 50 кг композиции 1,1,3,3-тетрабензил-1,3-бис-(3-метилбутилокси)-дистанноксана, полученной посредством способа примера синтеза 5 (с концентрацией атомов олова (в активном компоненте) композиции: 2,49 моль/кг), помещали в бак с катализатором SUS316 130, оснащенный нагревательной рубашкой и насосом для перемещения жидкости через линию поставки 15. Осуществляли циркуляцию композиции в баке с катализатором 130 в течение приблизительно 10 ч. Затем с использованием химического шестереночного насоса композицию 1,1,3,3-тетрабензил-1,3-бис-(3-метилбутилокси)дистанноксана переносили из бака с катализатором 130 в корпусной реактор 140 при 15 кг/ч через линию транспортировки 14, поточный смеситель 141, оснащенный нагревательной рубашкой, и линию транспортировки 5. Корпусной реактор 140 представлял собой реактор объемом 15 л, включающий мешалку, нагревательную рубашку и насос для перемещения жидкости, и нагревательную рубашку нагревали паром приблизительно при 155°C. Трубчатый реактор 150 с внешним диаметром 200 мм и длиной 1000 мм также включал нагревательную рубашку, которую нагревали паром приблизительно при 160°C. Башенный реактор SUS316 160 с внутренним диаметром 75 мм и расчетной длиной 4500 мм, оснащенный 30 ситчатыми тарелками, нагревали и теплоизолировали с помощью обогревателя по всей площади башенного реактора для предотвращения потери излучаемого тепла, обогреватель установили на уровне приблизительно 150°C. Насос для перемещения жидкости и ребойлер 163 помещали на дно башенного реактора 160 и ребойлер 163 нагревали паром приблизительно при 160°C. Тонкопленочный испаритель 170 с теплопередающей поверхностью 0,1 м<sup>2</sup> был оснащен нагревательной рубашкой и химическим шестереночным насосом для перемещения жидкости компонента с высокой температурой кипения, нагревательную рубашку нагревали паром при 160°C, и давление тонкопленочного испарителя 170 было установлено на уровне 115 кПа абс. Бак и трубу обогревали паром для сохранения реологического свойства. Композицию переносили в корпусной реактор 140, затем переносили в трубчатый реактор 150 через линию транспортировки 6, затем переносили в башенный реактор 160 через линию транспортировки 7, а затем переносили в тонкопленочный испаритель 170 через линию транспортировки 9,

после чего ее переносили в бак с катализатором 130 через линию транспортировки 11. Таким образом, осуществляли непрерывную циркуляцию композиции через корпусной реактор 140, трубчатый реактор 150, башенный реактор 160, тонкоплочный испаритель 170 и бак с катализатором 130 через линию транспортировки 14, поточный смеситель 141, линию транспортировки 5, линию транспортировки 6, линию транспортировки 7, линию транспортировки 9 и линию транспортировки 11 и этот процесс продолжали в течение приблизительно 5 суток. Затем из трубопровода отбора пара 16 брали образец раствора в баке с катализатором 130, и в результате проведенной спектроскопии  $^{119}\text{Sn}$ -ЯМР подтверждалось присутствие 1,1,3,3-тетрабензил-1,3-бис-(3-метилбутилокси)дистанноксана и трибензил-(3-метилбутокси)олова после пробного испытания. Согласно расчету концентрации атомов олова, исходя из концентрации 1,1,3,3-тетрабензил-1,3-бис-(3-метилбутилокси)дистанноксана в композиции в баке с катализатором 130 после пробного испытания, определенной с помощью результатов проведенного анализа, она составляла 2,33 моль/кг, что является снижением на 6,4% по сравнению с моментом до начала пробного испытания. С другой стороны, получали 3,9 моль трибензил-(3-метилбутокси)олова, что составляет 3,1% по отношению к числу моль атомов олова (в активном компоненте) композиции, помещенной в бак с катализатором до начала пробного испытания.

#### Пример 2.

На фиг. 2 представлен циркуляционный реактор непрерывного действия, включающий трубчатый реактор для проведения реакции переэтерификации и башенный реактор. Композицию диалкоксида ди(алкил(замещенный циклической группой))олова помещали в циркуляционный реактор непрерывного действия и осуществляли циркуляцию для проведения пробного испытания. После помещения приблизительно 45 кг композиции дибензил-бис-(3-метилбутилокси)олова, полученной посредством способа примера синтеза 4 (с концентрацией атомов олова (в активном компоненте) композиции 2,07 моль/кг), в бак с катализатором SUS316 230, оснащенный нагревательной рубашкой и насосом для перемещения жидкости, через линию поставки 33 осуществляли циркуляцию композиции в баке с катализатором 230 в течение приблизительно 10 ч. Затем с использованием химического шестереночного насоса композицию переносили из бака с катализатором 230 в трубчатый реактор 240 при 8,5 кг/ч, через линию транспортировки 34, поточный смеситель 241, оснащенный нагревательной рубашкой, и линию транспортировки 25. Трубчатый реактор 240 с внешним диаметром 250 мм и длиной 1500 мм также включал нагревательную рубашку, которую нагревали паром приблизительно при 140°C. Башенный реактор SUS316 250 с внутренним диаметром 75 мм и расчетной длиной 4500 мм, оснащенный 30 ситчатыми тарелками, нагревали и теплоизолировали с помощью обогревателя по всей площади башенного реактора для предотвращения потери излучаемого тепла, обогреватель установили на уровне приблизительно 150°C. На дно башенного реактора 250 помещали насос для перемещения жидкости и ребойлер 253 и ребойлер 253 нагревали паром приблизительно при 160°C. Кроме того, тонкоплочный испаритель 260 (с теплопередающей поверхностью 0,1 м<sup>2</sup>) оснащали нагревательной рубашкой и химическим шестереночным насосом для перемещения жидкости для переноса компонента с высокой температурой кипения, нагревали до 170°C и давление устанавливали на уровне 115 кПа абс. Бак и трубу обогревали паром для сохранения реологического свойства. Композицию переносили в трубчатый реактор 240, затем переносили в башенный реактор 250 через линию транспортировки 26, затем переносили в тонкоплочный испаритель 260 через линию транспортировки 28, а затем переносили в бак с катализатором 230 через линию транспортировки 30. Таким образом, осуществляли непрерывную циркуляцию композиции через трубчатый реактор 240, башенный реактор 250, тонкоплочный испаритель 260 и бак с катализатором 230 через линию транспортировки 34, поточный смеситель 241, линию транспортировки 25, линию транспортировки 26, линию транспортировки 28 и линию транспортировки 30 и этот процесс продолжали в течение приблизительно 6 суток. Затем из трубопровода отбора пара 35 брали образец жидкости в баке с катализатором 230, и в результате проведенной спектроскопии  $^{119}\text{Sn}$ -ЯМР подтверждалось присутствие дибензил-бис-(3-метилбутилокси)олова и трибензил-(3-метилбутокси)олова после пробного испытания. Рассчитанная концентрация атомов олова, исходя из концентрации дибензил-бис-(3-метилбутилокси)олова композиции в баке с катализатором 230 после пробного испытания, согласно результатам проведенного анализа, составляла 1,95 моль/кг, что является снижением на 5,9% по сравнению с моментом до начала пробного испытания. С другой стороны, получали 2,6 моль трибензил-(3-метилбутокси)олова, что составляло 2,8% по отношению к числу моль атомов олова (в активном компоненте) композиции, помещенной в бак с катализатором до начала пробного испытания.

#### Пример 3.

На фиг. 3 представлен циркуляционный реактор непрерывного действия, включающий корпусной реактор и башенный реактор для проведения реакции переэтерификации. Композицию алкоксида алкил(замещенный циклической группой)олова помещали в циркуляционный реактор непрерывного действия и осуществляли циркуляцию для проведения пробного испытания. Дибензил-бис-(3-метилбутилокси)олова и 1,1,3,3-тетрабензил-1,3-бис-(3-метилбутилокси)дистанноксан, полученные способами примера синтеза 4 и примера синтеза 5, смешивали для получения композиции алкоксида алкил(замещенный циклической группой)олова. Ее получали таким образом, чтобы молярное соотношение

атомов олова дибензил-бис-(3-метилбутилокси)олова и 1,1,3,3-тетрабензил-1,3-бис-(3-метилбутилокси)-дистанноксана по отношению к числу моль атомов олова (в активном компоненте) в композиции алкоксида алкил(замещенный циклической группой)олова составляло 65:35. Концентрация атомов олова (в активном компоненте) композиции алкоксида алкил(замещенный циклической группой)олова, рассчитанная с помощью математической формулы (3), составляла 2,22 моль/кг. Приблизительно 60 кг композиции алкоксида алкил(замещенный циклической группой)олова вводили в бак с катализатором SUS316 330, оснащенный нагревательной рубашкой и насосом для перемещения жидкости, через линию поставки 53. Сначала осуществляли циркуляцию композиции алкоксида алкил(замещенный циклической группой)олова в баке с катализатором 330 в течение приблизительно 10 ч. Затем с использованием химического шестереночного насоса композицию алкоксида алкил(замещенный циклической группой)олова переносили из бака с катализатором 330 в корпусной реактор 340 при 11 кг/ч, через линию транспортировки 54, поточный смеситель 341 и линию транспортировки 45. Корпусной реактор 340 представлял собой реактор объемом 15 л, включающий мешалку, нагревательную рубашку и насос для перемещения жидкости, и нагревательную рубашку нагревали паром приблизительно при 150°C. Башенный реактор SUS316 350 с внутренним диаметром 76 мм и расчетной длиной 3500 мм, оснащенный 25 ситчатыми тарелками, нагревали и теплоизолировали с помощью обогревателя по всей площади башенного реактора для предотвращения потери излучаемого тепла, обогреватель установили на уровне приблизительно 150°C. Насос для перемещения жидкости и ребойлер 353 помещали на дно башенного реактора 350 и ребойлер 353 нагревали паром приблизительно при 160°C. Кроме того, тонкопленочный испаритель 360 (с теплопередающей поверхностью: 0,1 м<sup>2</sup>), оснащали нагревательной рубашкой и насосом для перемещения жидкости для переноса компонента с высокой температурой кипения, нагревали до 165°C и давление устанавливали на уровне 115 кПа абс. Бак и трубу обогревали паром для сохранения реологического свойства. Композицию алкоксида алкил(замещенный циклической группой)олова переносили в корпусной реактор 340, затем переносили в башенный реактор 350 через линию транспортировки 46, затем переносили в тонкопленочный испаритель 360 через линию транспортировки 48, а затем переносили в бак с катализатором 330 через линию транспортировки 50. Таким образом, осуществляли непрерывную циркуляцию композиции алкоксид алкил(замещенный циклической группой)олова через корпусной реактор 340, башенный реактор 350, тонкопленочный испаритель 360 и бак с катализатором 330 через линию транспортировки 54, поточный смеситель 341, линию транспортировки 45, линию транспортировки 46, линию транспортировки 48 и линию транспортировки 50, и этот процесс продолжали в течение приблизительно 5 суток. Затем из трубопровода отбора пара 55 брали образец раствора в баке с катализатором 330, и в результате проведенной спектроскопии <sup>119</sup>Sn-ЯМР подтверждалось присутствие дибензил-бис-(3-метилбутилокси)олова, 1,1,3,3-тетрабензил-1,3-бис-(3-метилбутилокси)дистанноксана и трибензил(3-метилбутокси)олова после пробного испытания. Концентрация атомов олова композиции после пробного испытания, рассчитанная посредством определения концентрации дибензил-бис-(3-метилбутилокси)олова и концентрации 1,1,3,3-тетрабензил-1,3-бис-(3-метилбутилокси)дистанноксана в баке с катализатором 330 после пробного испытания, на основе результатов проведенного анализа составляла 2,09 моль/кг, что является снижением на 5,8% по сравнению с моментом до начала пробного испытания. С другой стороны, получали 3,9 моль трибензил-(3-метилбутокси)олова, что составляло 2,9% по отношению к числу моль атомов олова (в активном компоненте) композиции алкоксид алкил(замещенный циклической группой)олова до начала пробного испытания.

#### Пример 4.

На фиг. 4 представлен циркуляционный реактор непрерывного действия для синтеза сложного эфира угольной кислоты с использованием композиции алкоксида алкил(замещенный циклической группой)олова. Композицию алкоксида алкил(замещенный циклической группой)олова помещали в циркуляционный реактор непрерывного действия и осуществляли циркуляцию для проведения пробного испытания.

Композицию, содержащую алкоксид три(алкил(замещенный циклической группой))олова (композицию алкоксида алкил(замещенный циклической группой)олова, содержащую 1,1,3,3-тетраakis-(2-фенилэтил)-1,3-бис-(3-метилбутилокси)дистанноксан, бис-(2-фенилэтил)-бис-(3-метилбутилокси)олова и трис-(2-фенилэтил)(3-метилбутилокси)олова), получали посредством способа примера синтеза 9. Рассчитанная концентрация атомов олова (в активном компоненте) композиции, исходя из концентрации 1,1,3,3-тетраakis-(2-фенилэтил)-1,3-бис-(3-метилбутилокси)дистанноксана и концентрации бис-(2-фенилэтил)-бис-(3-метилбутилокси)олова, определенной на основании результатов проведенного анализа, составляла 1,91 моль/кг. Концентрация трис-(2-фенилэтил)(3-метилбутилокси)олова составляла 0,13 моль/кг. Приблизительно 60 кг композиции алкоксида алкил(замещенный циклической группой)олова вводили в бак с катализатором SUS316 660, оснащенный нагревательной рубашкой и насосом для перемещения жидкости через линию поставки 78. Сначала осуществляли циркуляцию композиции в баке с катализатором 660 в течение приблизительно 10 ч. Затем с использованием химического шестереночного насоса композицию переносили из бака с катализатором 660 в башенный реактор 620 при 11 кг/ч, через линию транспортировки 74, поточный смеситель 621, оснащенный нагревательной рубаш-

кой, и линию транспортировки 65. Башенный реактор SUS316 620 с внутренним диаметром 76 мм и расчетной длиной 4500 мм, оснащенный 30 ситчатыми тарелками, нагревали и теплоизолировали с помощью обогревателя по всей площади башенного реактора для предотвращения потери излучаемого тепла, обогреватель установили на уровне приблизительно 150°C. Насос для перемещения жидкости и ребойлер 622 помещали на дно башенного реактора 620 и ребойлер 622 нагревали паром приблизительно при 155°C. Использованный автоклав 630 представлял собой реактор объемом 15 л, включающий мешалку, нагревательную рубашку и насос для перемещения жидкости, и нагревательную рубашку нагревали паром приблизительно при 150°C. Тонкопленочный испаритель 640 (с теплопередающей поверхностью 0,1 м<sup>2</sup>) и тонкопленочный испаритель 650 (с теплопередающей поверхностью: 0,2 м<sup>2</sup>) с установленным давлением 115 кПа абс. оснащали нагревательной рубашкой и насосом для перемещения жидкости для переноса компонента с высокой температурой кипения и для нагревания использовали пар приблизительно при 160°C. Бак и трубу обогревали паром для сохранения реологического свойства. Композицию, ранее перенесенную в башенный реактор 620, переносили в автоклав 630 через линию транспортировки 67, а затем переносили в тонкопленочный испаритель 640 через линию транспортировки 69 и также переносили в тонкопленочный испаритель 650 через линию транспортировки 71, после этого ее переносили в бак с катализатором 660 через линию транспортировки 73. Таким образом, осуществляли непрерывную циркуляцию композиции через башенный реактор 620, автоклав 630, тонкопленочный испаритель 640, тонкопленочный испаритель 650 и бак с катализатором 660 через линию транспортировки 74, поточный смеситель 621, линию транспортировки 65, линию транспортировки 67, линию транспортировки 69, линию транспортировки 71 и линию транспортировки 73 и этот процесс продолжали в течение приблизительно 5 суток. Затем из трубопровода отбора пара 79 брали образец жидкости в баке с катализатором 660 и проводили спектроскопию <sup>119</sup>Sn-ЯМР. Концентрация атомов олова (в активном компоненте) в композиции, исходя из концентрации 1,1,3,3-тетраakis-(2-фенилэтил)-1,3-бис-(3-метилбутилокси)-дистанноксана и концентрации бис-(2-фенилэтил)-бис-(3-метилбутилокси)олова, в баке с катализатором 660 после пробного испытания, рассчитанная с помощью результатов проведенного анализа, составляла 1,79 моль/кг, что является снижением на 6,2% по сравнению с моментом до начала пробного испытания. С другой стороны, получали 3,4 моль трис-(2-фенилэтил)(3-метилбутилокси)олова, что составляло приблизительно 3% по отношению к числу моль атомов олова (в активном компоненте), исходя из расчета количества, введенного в бак с катализатором до начала пробного испытания, концентрации 1,1,3,3-тетраakis-(2-фенилэтил)-1,3-бис-(3-метилбутилокси)дистанноксана и концентрации бис-(2-фенилэтил)-бис-(3-метилбутилокси)олова в композиции.

#### Пример 5.

На фиг. 5 представлен циркуляционный реактор непрерывного действия для синтеза сложного эфира угольной кислоты с использованием композиции алкоксида алкил(замещенный циклической группой)олова. Композицию диалкоксида ди(алкил(замещенный циклической группой)олова) помещали в циркуляционный реактор непрерывного действия и осуществляли циркуляцию для проведения пробного испытания. Приблизительно 60 кг композиции ди(циклогексилметил)диэтоксиолова, полученной посредством способа, как в примере синтеза 1 (с концентрацией атомов олова (в активном компоненте) композиции: 2,44 моль/кг), вводили в бак с катализатором SUS316 770, оснащенный нагревательной рубашкой и насосом для перемещения жидкости, через линию поставки 107. Сначала осуществляли циркуляцию композиции в баке с катализатором 770 в течение приблизительно 12 ч. Затем композицию переносили из бака с катализатором 770 в корпусной реактор 710 при 12 кг/ч через линию транспортировки 109, поточный смеситель 711, оснащенный нагревательной рубашкой и линию транспортировки 110. Корпусной реактор 710 представлял собой реактор объемом 10 л, включающий мешалку, нагревательную рубашку и насос для перемещения жидкости и нагревательную рубашку нагревали паром приблизительно при 150°C. Башенный реактор SUS316 730 с внутренним диаметром 76 мм и расчетной длиной 3500 мм, оснащенный 25 ситчатыми тарелками, нагревали и теплоизолировали с помощью обогревателя по всей площади башенного реактора для предотвращения потери излучаемого тепла, обогреватель установили на уровне приблизительно 150°C. Насос для перемещения жидкости и ребойлер 733 помещали на дно башенного реактора 730 и ребойлер 733 нагревали паром приблизительно при 160°C. Использованный автоклав 740 представлял собой реактор объемом 15 л, включающий мешалку, нагревательную рубашку и насос для перемещения жидкости и нагревательную рубашку нагревали паром приблизительно при 140°C. Тонкопленочный испаритель 750 (с теплопередающей поверхностью 0,1 м<sup>2</sup>) и тонкопленочный испаритель 760 (с теплопередающей поверхностью 0,2 м<sup>2</sup>) с установленным давлением 85 кПа абс. оснащали нагревательной рубашкой и насосом для перемещения жидкости компонента с высокой температурой кипения и для нагревания использовали пар при 160°C. Композицию переносили в корпусной реактор 710, затем переносили в башенный реактор 730 через линию транспортировки 95, затем переносили в автоклав 740 через линию транспортировки 97, затем переносили в тонкопленочный испаритель 750 через линию транспортировки 99 и также переносили в тонкопленочный испаритель 760 через линию транспортировки 101, после этого ее переносили в бак с катализатором 770 через линию транспортировки 103. Таким образом, осуществляли непрерывную циркуляцию композиции через корпусной ре-



актор 710, башенный реактор 730, автоклав 740, тонкопленочный испаритель 750, тонкопленочный испаритель 760 и бак с катализатором 770 через линию транспортировки 109, поточный смеситель 711, линию транспортировки 110, линию транспортировки 95, линию транспортировки 97, линию транспортировки 99, линию транспортировки 101 и линию транспортировки 103 и этот процесс продолжали в течение приблизительно 5 суток. Затем из трубопровода отбора пара 108 брали образец раствора в баке с катализатором 770 и согласно результатам спектроскопии  $^{119}\text{Sn}$ -ЯМР подтверждалось присутствие ди(циклогексилметил)диэтоксиолова и три(циклогексилметил)этоксиолова после пробного испытания. Рассчитанная концентрация атомов олова (в активном компоненте) в композиции, исходя из концентрации ди(циклогексилметил)диэтоксиолова композиции в баке с катализатором после пробного испытания, согласно результатам проведенного анализа, составляла 2,32 моль/кг, что является снижением на 5,1% по сравнению с моментом до начала пробного испытания. С другой стороны, получали 3,7 моль трис-(циклогексилметил)этоксиолова, что составляло 2,5% по отношению к числу моль атомов олова (в активном компоненте) композиции до начала пробного испытания.

Примеры 6-38.

Композиции тетра(алкил(замещенный циклической группой))диалкоксидистанноксана, перечисленные в табл. 25, получали аналогичными способами, как в примерах синтеза 2, 5 и 8, и пробное испытание циркуляционного реактора непрерывного действия проводили аналогичным способом, как в примере 1, с подтверждением реакции модификации во время термоциркуляции. Из числа этих композиций тетра(алкил(замещенный циклической группой))диалкоксидистанноксана некоторые имеют низкое реологическое свойство при температуре окружающей среды в начале реакции (приблизительно от 15 до 35°C), в этом случае добавляли тетралин (продукт Wako Pure Chemical Industries), простой дифениловый эфир (продукт Wako Pure Chemical Industries) или ундекан (продукт Wako Pure Chemical Industries) в качестве разбавителя для получения жидкой смеси с концентрацией разбавителя от 10 до 35% по массе, вводили в бак с катализатором и проводили пробное испытание (циркуляционный процесс) с использованием циркуляционного реактора непрерывного действия, как показано на фиг. 1, аналогичным образом, как в примере 1. Масса композиции, загруженной в бак с катализатором, составляла приблизительно 50 кг, аналогично примеру 1, вне зависимости от использования разбавителя. Концентрацию тетра(алкил(замещенный циклической группой))диалкоксидистанноксана в композиции определяли с помощью спектроскопии  $^{119}\text{Sn}$ -ЯМР и рассчитывали концентрацию атомов олова (в активном компоненте) композиции перед циркуляционным процессом. Из бака с катализатором брали образец раствора после циркуляционного процесса и подвергали спектроскопии  $^{119}\text{Sn}$ -ЯМР. Концентрацию атомов олова (в активном компоненте) композиции рассчитывали, исходя из концентрации тетра(алкил(замещенный циклической группой))диалкоксидистанноксана после пробного испытания в соответствии с результатами анализа и рассчитывали процент снижения от момента, предшествующего началу пробного испытания. Число моль алкоксида три(алкил(замещенный циклической группой))олова также определяли, исходя из результатов анализа, и рассчитывали полученное количество по отношению к числу моль атомов олова (в активном компоненте) композиции до начала пробного испытания. Процент снижения концентрации атомов олова (в активном компоненте) композиций и полученное количество алкоксида три(алкил(замещенный циклической группой))олова показаны в табл. 25.

Таблица 25

Пример	Тetraalkyldialkoxystannoxane		Длительность непрерывного процесса [в сутках]	Процент снижения концентрации атомов олова (в активном компоненте) [%] *1)	Полученное количество алкоксида триалкилолова [%] *2)
	R' (алкильная группа)	OR'' (алкокси-группа)			
6	Циклогексилметил	3-метилбутилокси	5	5,6	2,8
7	2-циклогексилэтил	3-метилбутилокси	5	6,7	3,4
8	Циклопентилметил	Этокси	5	5,3	2,6
9	3-циклопентилпропил	3-метилбутилокси	5	7,0	3,5
10	Фенэтил	2-метилпропилокси	4	6,8	3,4
11	Бензил	2-этилбутилокси	6	6,3	3,2
12	2-циклогексилэтил	Этокси	4	6,8	3,3
13	2-циклогексилэтил	2-этилбутилокси	5	6,7	3,4
14	3-фенилпропил	2-этилбутилокси	6	7,0	3,5
15	Циклогексилметил	N-бутокси	4	5,4	2,7
16	Циклогексилметил	2-этилбутилокси	6	5,3	2,7
17	Фенэтил	2-этилбутилокси	5	6,7	3,3
18	Циклогексилметил	Этокси	5	5,5	2,7
19	3-циклопентилпропил	N-бутокси	5	7,1	3,5
20	3-Фенилпропил	2-метилпропилокси	5	7,0	3,5
21	Циклогексилметил	2-метилпропилокси	5	5,3	2,7
22	Бензил	N-бутокси	4	6,6	3,3
23	Циклопентилметил	2-этилбутилокси	5	5,2	2,6
24	Фенэтил	N-бутокси	5	6,9	3,5
25	3-фенилпропил	3-метилбутилокси	6	7,3	3,6
26	3-фенилпропил	N-бутокси	5	7,1	3,5
27	Циклопентилметил	2-метилпропилокси	5	5,2	2,6
28	Циклопентилметил	3-метилбутилокси	5	5,3	2,6
29	3-Фенилпропил	Этокси	5	7,2	3,6
30	3-циклопентилпропил	2-этилбутилокси	5	6,9	3,5
31	Фенэтил	Этокси	4	6,9	3,4
32	Бензил	Этокси	5	6,5	3,2
33	2-циклогексилэтил	2-метилпропилокси	5	6,7	3,4
34	3-циклопентилпропил	2-метилпропилокси	5	6,9	3,4
35	Бензил	2-метилпропилокси	5	6,3	3,1
36	Фенэтил	3-метилбутилокси	5	6,9	3,5
37	Циклопентилметил	N-бутокси	4	5,3	2,7
38	3-циклопентилпропил	Этокси	4	7,1	3,5

\*1) Процент снижения концентрации атомов олова (в активном компоненте) для композиций тетра(алкил(замещенный циклической группой))диалкоксидистанноксана рассчитывали с помощью математической формулы (4).

\*2) Полученное количество алкоксида три(алкил(замещенный циклической группой))олова рассчитывали с помощью математической формулы (5).

[Математическая формула 36]

$$\text{Процент снижения концентрации атомов олова (в активном компоненте)} = (S_2^0 - S_2^t) / S_2^0 \times 100\% \quad (4)$$

где "процент снижения концентрации атомов олова (в активном компоненте)" представляет собой процент снижения [%] концентрации атомов олова (в активном компоненте) композиции после циркуляционного процесса;

$S_2^0$  представляет собой концентрацию атомов олова (в активном компоненте) [моль/кг] композиции перед циркуляционным процессом;

$S_2^t$  представляет собой концентрацию атомов олова (в активном компоненте) [моль/кг] композиции после циркуляционного процесса;

$S_2^0$  и  $S_2^t$  рассчитывали, исходя из концентрации тетра(алкил(замещенный циклической группой))диалкоксидистанноксана композиции в соответствии с определением спектроскопии  $^{119}\text{Sn}$ -ЯМР.

[Математическая формула 37]

$$\text{Полученное количество алкоксида три(алкил(замещенный циклической группой))олова} = T / (W_2^0 \times S_2^0) \times 100\% \quad (5)$$

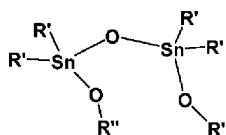
где "полученное количество алкоксида три (алкил(замещенный циклической группой))олова" представляет собой количество алкоксида три(алкил(замещенный циклической группой))олова [%], полученного после циркуляционного процесса;

T представляет собой число моль [моль] алкоксида три(алкил(замещенный циклической группой))олова, полученного после циркуляционного процесса;

$W_2^0$  представляет собой массу [кг] композиции, введенной в бак с катализатором перед циркуляционным процессом; и

$S_2^0$  представляет собой концентрацию атомов олова (в активном компоненте) [моль/кг] композиции перед циркуляционным процессом.

Структурная формула тетра(алкил(замещенный циклической группой))диалкоксидистанноксана. [Химическая формула 87]



где R' представляет собой  $C_{3-16}$ алициклическую углеводородную группу или  $C_{6-16}$ ароматическую углеводородную группу и R'' представляет собой  $C_{1-8}$ алкильную группу.

Примеры 39-71.

Композиции диалкоксида ди(алкил(замещенный циклической группой))олова, перечисленные в табл. 26 получали аналогичными способами, как в примерах синтеза 1, 4 и 7, и пробное испытание циркуляционного реактора непрерывного действия проводили аналогичным способом, как в примере 2, с подтверждением реакции модификации во время термо циркуляции. Приблизительно 45 кг композиции вводили в бак с катализатором и пробное испытание (циркуляционный процесс) композиции проводили аналогичным образом, как в примере 2, с использованием циркуляционного реактора непрерывного действия, как показано на фиг. 2. Из бака с катализатором брали образец раствора после циркуляционного процесса и подвергали спектроскопии  $^{119}\text{Sn}$ -ЯМР.

Концентрацию атомов олова (в активном компоненте) композиции рассчитывали, исходя из концентрации диалкоксида ди(алкил(замещенный циклической группой))олова композиции после пробного испытания в соответствии с результатами анализа, и рассчитывали процент снижения от момента, предшествующего началу пробного испытания. Число моль алкоксида три(алкил(замещенный циклической группой))олова также определяли, исходя из результатов анализа, и рассчитывали полученное количество по отношению к числу моль атомов олова (в активном компоненте) композиции до начала пробного испытания. Процент снижения концентрации атомов олова (в активном компоненте) композиций и полученное количество алкоксида три(алкил(замещенный циклической группой))олова показаны в табл. 26.

Таблица 26

Пример	Диалкоксид диалкилолова		Длительность непрерывного процесса [в сутках]	Процент снижения концентрации атомов олова (в активном компоненте) [%] *3)	Полученное количество алкоксида триалкилолова [%] *4)
	R' (алкильная группа)	OR'' (алкокси-группа)			
39	3-фенилпропил	Этокси	4	6,6	6,7
40	Циклогексилметил	N-бутоксн	5	5,1	5,0
41	Фенэтил	N-бутоксн	5	6,4	6,3
42	Циклогексилэтил	2-этилбутилоскн	5	6,2	6,2
43	Бензил	Этокси	5	5,9	6,0
44	Циклогексилметил	3-метилбутилоскн	5	5,1	5,1
45	3-циклопентилпропил	2-этилбутилоскн	4	6,5	6,5
46	3-фенилпропил	2-метилпропилоскн	4	6,4	6,5
47	3-фенилпропил	2-этилбутилоскн	4	6,6	6,6
48	Циклопентилметил	3-Метилбутилоскн	5	4,9	4,8
49	Фенэтил	2-метилпропилоскн	5	6,2	6,2
50	Циклогексилметил	2-метилпропилоскн	4	4,9	4,9
51	Циклопентилметил	N-бутоксн	5	4,8	4,8
52	Фенэтил	3-метилбутилоскн	5	6,3	6,3
53	3-циклопентилпропил	N-бутоксн	4	6,5	6,5
54	Бензил	2-этилбутилоскн	4	6,0	5,9
55	Циклопентилметил	Этокси	5	4,9	5,0
56	Циклогексилэтил	N-бутоксн	5	6,3	6,3
57	Циклогексилэтил	2-метилпропилоскн	5	6,2	6,3

58	Фенэтил	2-этилбутилокси	4	6,4	6,3
59	Бензил	N-бутокси	5	6,0	6,0
60	Циклопентилметил	2-метилпропилокси	4	4,7	4,8
61	Циклогексилэтил	3-метилбутилокси	5	6,2	6,2
62	Циклопентилметил	2-этилбутилокси	5	4,9	4,8
63	3-фенилпропил	3-метилбутилокси	5	6,7	6,7
64	Циклогексилметил	2-этилбутилокси	5	5,1	5,2
65	Фенэтил	Этокси	4	6,4	6,3
66	3-циклопентилпропил	Этокси	4	6,5	6,6
67	3-циклопентилпропил	2-метилпропилокси	4	6,4	6,5
68	Циклогексилэтил	Этокси	5	6,3	6,1
69	Бензил	2-метилпропилокси	5	5,7	5,8
70	3-циклопентилпропил	3-метилбутилокси	4	6,5	6,6
71	3-фенилпропил	N-бутокси	4	6,6	6,5

\*3) Процент снижения концентрации атомов олова (в активном компоненте) композиции диалкоксида ди(алкил(замещенный циклической группой))олова определяли с помощью следующей математической формулы (6).

\*4) Полученное количество алкоксида три(алкил(замещенный циклической группой))олова рассчитывали с помощью математической формулы (7).

[Математическая формула 38]

Процент снижения концентрации атомов олова (в активном компоненте) =  $(S_1^0 - S_1^t) / S_1^0 \times 100\%$  (6)

где "процент снижения концентрации атомов олова" представляет собой процент снижения [%] концентрации атомов олова (в активном компоненте) композиции после циркуляционного процесса;

$S_1^0$  представляет собой концентрацию атомов олова (в активном компоненте) [моль/кг] композиции перед циркуляционным процессом;

$S_1^t$  представляет собой концентрацию атомов олова (в активном компоненте) [моль/кг] композиции после циркуляционного процесса;

$S_1^0$  и  $S_1^t$  рассчитывали, исходя из концентрации диалкоксида ди(алкил(замещенный циклической группой))олова композиции в соответствии с определением спектроскопии  $^{119}\text{Sn}$ -ЯМР.

[Математическая формула 39]

Полученное количество алкоксида три(алкил(замещенный циклической группой))олова =  $T / (W_1^0 \times S_1^0) \times 100\%$  (7)

где "полученное количество алкоксида три(алкил(замещенный циклической группой))олова" представляет собой количество алкоксида три(алкил(замещенный циклической группой))олова, полученного [%] после циркуляционного процесса;

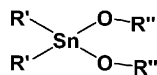
T представляет собой число моль [моль] алкоксида три(алкил(замещенный циклической группой))олова, полученного после циркуляционного процесса;

$W_1^0$  представляет собой массу [кг] композиции, введенной в бак с катализатором перед циркуляционным процессом; и

$S_1^0$  представляет собой концентрацию атомов олова (в активном компоненте) [моль/кг] композиции перед циркуляционным процессом.

Структурная формула диалкоксида ди(алкил(замещенный циклической группой))олова.

[Химическая формула 88]



где R' представляет собой  $\text{C}_{3-16}$ алициклическую углеводородную группу или  $\text{C}_{6-16}$ ароматическую углеводородную группу и R'' представляет собой  $\text{C}_{1-8}$ алкильную группу.

Примеры 72-105.

Композиции содержащие алкоксид алкил(замещенный циклической группой)олова, диалкоксиды ди(алкил(замещенный циклической группой))олова и тетра(алкил(замещенный циклической группой))диалкоксидистанноксаны, перечисленные в табл. 27, получали аналогичными способами, как в примерах синтеза 1, 2, 4, 5, 7 и 8, и пробное испытание циркуляционного реактора непрерывного действия проводили аналогичным способом, как в примере 3, с подтверждением реакции модификации во время термоциркуляции. Композиции получали таким образом, что молярное соотношение атомов олова диалкоксидов ди(алкил(замещенный циклической группой))олова и тетра(алкил(замещенный циклической группой))диалкоксидистанноксанов по отношению к числу моль атомов олова (в активном компоненте) композиций алкоксида алкил(замещенный циклической группой)олова, содержащих диалкоксиды ди(алкил(замещенный циклической группой))олова и тетра(алкил(замещенный циклической группой))диалкоксидистанноксаны со структурами, перечисленными в табл. 27, составляло 65:35, и прибли-

зительно 60 кг вводили в бак с катализатором. Концентрацию атомов олова (в активном компоненте) каждой композиции определяли с помощью математической формулы (3). Пробное испытание (циркуляционный процесс) композиции проводили аналогичным образом, как в примере 3, с использованием циркуляционного реактора непрерывного действия, как показано на фиг. 3. Из бака с катализатором брали образец раствора после циркуляционного процесса и подвергали спектроскопии  $^{119}\text{Sn}$ -ЯМР. Концентрацию атомов олова в композиции рассчитывали, исходя из концентрации тетра(алкил(замещенный циклической группой))диалкоксидистанноксана и концентрации диалкоксида ди(алкил(замещенный циклической группой))олова композиции после пробного испытания в соответствии с результатами анализа, и рассчитывали процент снижения от момента, предшествующего началу пробного испытания. Число моль алкоксида три(алкил(замещенный циклической группой))олова, полученного после пробного испытания, также определяли, исходя из результатов анализа, и рассчитывали полученное количество по отношению к числу моль атомов олова (в активном компоненте) композиции до начала пробного испытания. Процент снижения концентрации атомов олова (в активном компоненте) композиций и полученное количество алкоксида три(алкил(замещенный циклической группой))олова показаны в табл. 27.

Таблица 27

Пример	Алкоксид алкилолова		Длительность непрерывного процесса [в сутках]	Процент снижения концентрации атомов олова (в активном компоненте) [%] *5)	Полученное количество алкоксида триалкилолова [%] *6)
	R' (алкильная группа)	OR'' (алкокси-группа)			
72	Фенэтил	3-метилбутилокси	6	6,3	6,3
73	Циклогексилметил	3-метилбутилокси	5	4,9	5,0
74	Циклогексилэтил	Этокси	5	6,2	6,2
75	Циклогексилэтил	2-метилпропилокси	5	6,0	5,8
76	3-фенилпропил	3-метилбутилокси	5	6,4	6,5
77	Фенэтил	2-метилпропилокси	5	6,0	6,1
78	3-фенилпропил	2-метилпропилокси	6	6,3	6,2
79	3-циклопентилпропил	2-этилбутилокси	5	6,3	6,3
80	Фенэтил	N-бутоксид	4	6,3	6,1
81	3-циклопентилпропил	2-метилпропилокси	5	6,2	6,3
82	3-циклопентилпропил	3-метилбутилокси	5	6,3	6,3
83	Бензил	2-этилбутилокси	6	5,8	5,8
84	Циклогексилэтил	2-этилбутилокси	6	6,0	6,1
85	3-циклопентилпропил	N-бутоксид	5	6,3	6,2
86	Циклогексилметил	N-бутоксид	5	5,0	4,9
87	3-Циклопентилпропил	Этоксид	4	6,4	6,3
88	Циклогексилэтил	N-бутоксид	5	6,2	6,2
89	Циклопентилметил	Этоксид	5	4,8	4,7
90	Циклопентилметил	N-бутоксид	5	4,7	4,8
91	циклогексилметил	2-метилпропилокси	6	4,7	4,8
92	Фенэтил	Этоксид	5	6,3	6,4
93	Бензил	Этоксид	5	5,8	5,9
94	Бензил	N-бутоксид	4	5,9	6,0
95	Бензил	2-метилпропилокси	6	5,5	5,6
96	Циклогексилметил	2-этилбутилокси	5	5,0	4,9
97	Фенэтил	2-этилбутилокси	5	6,2	6,1
98	3-фенилпропил	Этоксид	4	6,5	6,5
99	Циклогексилметил	Этоксид	4	5,0	4,9
100	3-фенилпропил	N-бутоксид	4	6,4	6,4
101	3-фенилпропил	2-этилбутилокси	5	6,5	6,5
102	Циклопентилметил	3-метилбутилокси	6	4,7	4,7
103	Циклогексилэтил	3-метилбутилокси	5	6,2	6,1
104	Циклопентилметил	2-этилбутилокси	6	4,7	4,7
105	Циклопентилметил	2-метилпропилокси	6	4,6	4,6

\*5) Процент снижения концентрации атомов олова (в активном компоненте) композиции алкоксида алкил(замещенный циклической группой)олова определяли с помощью следующей математической формулы (8).

\*6) Полученное количество алкоксида три(алкил(замещенный циклической группой))олова рассчитывали с помощью математической формулы (9).

## [Математическая формула 40]

Процент снижения концентрации атомов олова (в активном компоненте) =  $(S_3^0 - S_3^t) / S_3^0 \times 100\%$  (8)

где "процент снижения концентрации атомов олова (в активном компоненте)" представляет собой процент снижения [%] концентрации атомов олова (в активном компоненте) композиции после циркуляционного процесса;

$S_3^0$  представляет собой концентрацию атомов олова (в активном компоненте) [моль/кг] композиции перед циркуляционным процессом;

$S_3^t$  представляет собой концентрацию атомов олова (в активном компоненте) [моль/кг] композиции после циркуляционного процесса;

$S_3^0$  и  $S_3^t$  рассчитывали, исходя из концентрации тетра(алкил(замещенный циклической группой))диалкоксидистанноксана и концентрации диалкоксида ди(алкил(замещенный циклической группой))олова композиции в соответствии с определением спектроскопии  $^{119}\text{Sn}$ -ЯМР.

## [Математическая формула 41]

Полученное количество алкоксида три(алкил(замещенный циклической группой))олова =  $T / (W_3^0 \times S_3^0) \times 100\%$

где "полученное количество алкоксида три(алкил(замещенный циклической группой))олова" представляет собой количество алкоксида три(алкил(замещенный циклической группой))олова, полученного [%] после циркуляционного процесса;

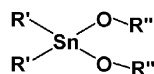
T представляет собой а три(алкил(замещенный циклической группой))олова, полученного после циркуляционного процесса;

$W_3^0$  представляет собой массу [кг] композиции алкоксида алкил(замещенный циклической группой)олова, введенной в бак с катализатором перед циркуляционным процессом; и

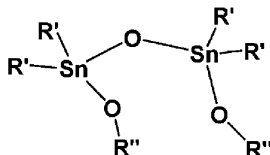
$S_3^0$  представляет собой концентрацию атомов олова (в активном компоненте) [моль/кг] композиции перед циркуляционным процессом.

Структурные формулы тетра(алкил(замещенный циклической группой))диалкоксидистанноксана и диалкоксида ди(алкил(замещенный циклической группой))олова в композиции алкоксида алкил(замещенный циклической группой)олова.

## [Химическая формула 89]



## [Химическая формула 90]



где R' представляет собой  $\text{C}_{3-16}$ алициклическую углеводородную группу или  $\text{C}_{6-16}$ ароматическую углеводородную группу и R'' представляет собой  $\text{C}_{1-8}$ алкильную группу.

## Примеры 106-139.

Использовали композиции алкоксида алкил(замещенный циклической группой)олова, содержащие диалкоксиды ди(алкил(замещенный циклической группой))олова, тетра(алкил(замещенный циклической группой))диалкоксидистанноксаны и алкоксиды три(алкил(замещенный циклической группой))олова, перечисленные в табл. 28, полученные аналогичными способами, как в примерах синтеза 3, 6 и 9, и пробное испытание(циркуляционный процесс) в циркуляционном реакторе непрерывного действия, как показано на фиг. 4, проводили аналогичным способом, как в примере 4, с подтверждением реакции модификации во время термоциркуляции. Приблизительно 60 кг каждой из композиций алкоксида алкил(замещенный циклической группой)олова, содержащей диалкоксиды ди(алкил(замещенный циклической группой))олова, тетра(алкил(замещенный циклической группой))диалкоксидистанноксаны и алкоксиды три(алкил(замещенный циклической группой))олова, перечисленные в табл. 28, полученные аналогичными способами, как в примерах синтеза 3, 6 и 9, вводили в бак с катализатором и подвергали циркуляции в циркуляционном реакторе непрерывного действия. Из бака с катализатором брали образец раствора после циркуляционного процесса и подвергали спектроскопии  $^{119}\text{Sn}$ -ЯМР. Концентрацию атомов олова (в активном компоненте) композиции рассчитывали, исходя из концентрации тетра(алкил(замещенный циклической группой))диалкоксидистанноксана и концентрация диалкоксида ди(алкил(замещенный циклической группой))олова композиции после пробного испытания в соответствии с результатами анализа, и рассчитывали процент снижения от момента, предшествующего началу пробного испытания. Число моль алкоксида три(алкил замещенный циклической группой)олова также определяли, исходя из результатов проведенного анализа, и рассчитывали полученное количество по

отношению к числу моль атомов олова (в активном компоненте) композиции до начала пробного испытания. Процент снижения концентрации атомов олова (в активном компоненте) композиций и полученное количество алкоксида три(алкил(замещенный циклической группой)олова) показаны в табл. 28.

Таблица 28

Пример	Алкоксид алкилолова		Длительность непрерывного процесса [в сутках]	Процент снижения концентрации атомов олова (в активном компоненте) [%] *7)	Полученное количество алкоксида триалкилолова [%] *8)
	R' (алкильная группа)	OR'' (алкокси-группа)			
106	Циклогексилметил	2-метилпропилокси	5	4,6	4,7
107	3-фенилпропил	2-метилпропилокси	5	6,2	6,0
108	Циклопентилметил	3-метилбутилокси	6	4,5	4,4
109	Циклогексилметил	3-метилбутилокси	6	4,8	4,6
110	Циклопентилметил	2-этилбутилокси	6	4,6	4,6
111	Циклогексилметил	Этокси	5	4,9	4,8
112	3-фенилпропил	3-метилбутилокси	6	6,3	6,1
113	Фенэтил	2-этилбутилокси	5	6,0	6,1
114	Циклогексилэтил	N-бутокси	5	6,1	6,2
115	Циклопентилметил	2-метилпропилокси	6	4,4	4,5
116	Циклопентилметил	N-бутокси	6	4,6	4,6
117	3-циклопентилпропил	3-метилбутилокси	5	6,1	6,2
118	Фенэтил	Этокси	6	6,1	6,2
119	Бензил	N-бутокси	5	5,7	5,6
120	Циклогексилэтил	2-метилпропилокси	5	5,8	6,0
121	Циклопентилметил	Этокси	6	4,7	4,8
122	3-фенилпропил	Этокси	6	6,3	6,2
123	Циклогексилметил	N-бутокси	5	4,8	4,8
124	Бензил	2-этилбутилокси	5	5,7	5,7
125	3-циклопентилпропил	2-этилбутилокси	5	6,1	6,1
126	Циклогексилэтил	Этокси	6	6,1	6,2
127	Бензил	2-метилпропилокси	5	5,5	5,5
128	Фенэтил	N-бутокси	5	6,1	6,0
129	Циклогексилметил	2-этилбутилокси	6	4,9	4,9
130	Бензил	Этокси	5	5,7	5,7
131	3-циклопентилпропил	Этокси	5	6,2	6,2
132	3-циклопентилпропил	2-метилпропилокси	6	6,1	6,0
133	3-фенилпропил	N-бутокси	5	6,3	6,4
134	циклогексилэтил	3-метилбутилокси	6	6,0	6,1
135	3-циклопентилпропил	N-бутокси	5	6,3	6,4
136	Бензил	3-метилбутилокси	5	5,9	5,9
137	Циклогексилэтил	2-этилбутилокси	5	5,9	6,0
138	3-фенилпропил	2-этилбутилокси	6	6,2	6,2
139	Фенэтил	2-метилпропилокси	6	6,0	5,9

\*7) Процент снижения концентрации атомов олова (в активном компоненте) композиции алкоксида алкил(замещенный циклической группой)олова определяли с помощью следующей математической формулы (8).

\*8) Полученное количество алкоксида три(алкил(замещенный циклической группой)олова) рассчитывали с помощью математической формулы (9).

[Математическая формула 42]

$$\text{Процент снижения концентрации атомов олова (в активном компоненте)} = (S_3^0 - S_3^t) / S_3^0 \times 100\% \quad (8)$$

где "процент снижения концентрации атомов олова (в активном компоненте)" представляет собой процент снижения [%] концентрации атомов олова (в активном компоненте) композиции после циркуляционного процесса;

$S_3^0$  представляет собой концентрацию атомов олова (в активном компоненте) [моль/кг] композиции перед циркуляционным процессом;

$S_3^t$  представляет собой концентрацию атомов олова (в активном компоненте) [моль/кг] композиции после циркуляционного процесса;

$S_3^0$  и  $S_3^t$  рассчитывали, исходя из концентрации тетра(алкил(замещенный циклической группой)олова).

пой))диалкоксидистанноксана и концентрации диалкоксида ди(алкил(замещенный циклической группой))олова композиции в соответствии с определением спектроскопии  $^{119}\text{Sn}$ -ЯМР.

[Математическая формула 43]

$$\text{Полученное количество алкоксида три (алкил (замещенный циклической группой))олова} = T / (W_3^0 \times S_3^0) \times 100\% \quad (9)$$

где "полученное количество алкоксида три (алкил(замещенный циклической группой))олова" представляет собой количество алкоксида три(алкил(замещенный циклической группой))олова, полученного [%] после циркуляционного процесса;

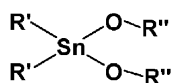
T представляет собой число моль [моль] алкоксида три(алкил(замещенный циклической группой))олова, полученного после циркуляционного процесса;

$W_3^0$  представляет собой массу [кг] композиции алкоксида алкил(замещенный циклической группой)олова, введенной в бак с катализатором перед циркуляционным процессом; и

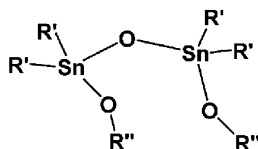
$S_3^0$  представляет собой концентрацию атомов олова (в активном компоненте) [моль/кг] композиции перед циркуляционным процессом.

Структурные формулы тетра(алкил(замещенный циклической группой))диалкоксидистанноксана и диалкоксида ди(алкил(замещенный циклической группой))олова в композиции алкоксида алкил(замещенный циклической группой))олова.

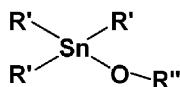
[Химическая формула 91]



[Химическая формула 92]



[Химическая формула 93]



где R' представляет собой  $\text{C}_{3-16}$ алициклическую углеводородную группу или  $\text{C}_{6-16}$ ароматическую углеводородную группу и R'' представляет собой  $\text{C}_{1-8}$ алкильную группу.

Примеры 140-187.

Диалкоксиды ди(алкил(замещенный циклической группой))олова и диалкоксидистанноксаны тетраалкилолова со структурами, перечисленными в табл. 29, получали такими же способами, как указано в примерах синтеза 1, 2, 4, 5, 7 и 8, и получали композиции алкоксида алкил(замещенный циклической группой)олова, содержащие диалкоксиды ди(алкил(замещенный циклической группой))олова и тетраалкилдиалкоксидистанноксаны. Композиции алкоксида алкил(замещенный циклической группой)олова, содержащие диалкоксиды ди(алкил(замещенный циклической группой))олова и тетраалкилдиалкоксидистанноксаны, получали таким образом, чтобы молярное соотношение атомов олова диалкоксидов ди(алкил(замещенный циклической группой))олова и тетраалкилдиалкоксидистанноксанов по отношению к числу моль атомов олова (в активном компоненте) композиций составляло от 5:95 до 50:50. Композиции использовали аналогичным способом, как в примере 5, для пробного испытания (циркуляционного процесса) в циркуляционном реакторе непрерывного действия, как показано на фиг. 5, с подтверждением реакции модификации во время термоциркуляции. Приблизительно 60 кг каждой композиции вводили в бак с катализатором и осуществляли циркуляцию в циркуляционном реакторе непрерывного действия, как показано на фиг. 5, аналогичным способом. Из бака с катализатором брали образец каждой композиции после циркуляционного процесса и подвергали спектроскопии  $^{119}\text{Sn}$ -ЯМР. Концентрацию атомов олова (в активном компоненте) композиции рассчитывали, исходя из концентрации тетра(алкил(замещенный циклической группой))диалкоксидистанноксана и концентрации диалкоксида ди(алкил(замещенный циклической группой))олова композиции после пробного испытания в соответствии с результатами анализа, и рассчитывали процент снижения от момента, предшествующего началу пробного испытания. Число моль алкоксида три(алкил(замещенный циклической группой))олова также определяли, исходя из результатов, и рассчитывали полученное количество по отношению к числу моль атомов олова (в активном компоненте) композиции до начала пробного испытания. Процент снижения концентрации атомов олова (в активном компоненте) композиций и полученное количество алкоксида триалкилолова показаны в табл. 29.



Таблица 29

Пример	Композиция алкоксида алкилолова		Молярное соотношение атомов олова диалкоксида диалкилолова и тетраалкилдиалкокси-диэтаноксана	Длительность непрерывного процесса [в сутках]	Процент снижения концентрации атомов олова (в активном компоненте) [%] *9)	Полученное количество алкоксида триалкилолова [%] *10)
	R' (алкильная группа)	OR'' (алкокси- группа)				
140	Циклопентилметил	N-бутокси	5:95	6	5,2	5,1
141	2-циклогексилэтил	N-бутокси	5:95	5	6,5	6,5
142	3-циклопентилпропил	N-бутокси	5:95	5	6,9	7,0
143	Бензил	N-бутокси	5:95	5	6,4	6,4
144	Фенэтил	N-бутокси	5:95	6	6,8	6,6
145	3-фенилпропил	N-бутокси	5:95	6	7,0	6,9
146	Циклопентилметил	2-этилбутилокси	5:95	5	5,1	4,9
147	2-циклогексилэтил	2-этилбутилокси	5:95	6	6,6	6,5
148	3-циклопентилпропил	2-этилбутилокси	5:95	6	6,8	6,9
149	Бензил	2-этилбутилокси	5:95	6	6,2	6,1
150	Фенэтил	2-этилбутилокси	5:95	6	6,6	6,6
151	3-фенилпропил	2-этилбутилокси	5:95	5	6,8	7,0
152	Циклопентилметил	N-бутокси	15:85	6	5,1	5,1
153	2-циклогексилэтил	N-бутокси	15:85	6	6,4	6,2
154	3-циклопентилпропил	N-бутокси	15:85	5	6,8	6,9
155	Бензил	N-бутокси	15:85	5	6,3	6,4
156	Фенэтил	N-бутокси	15:85	5	6,7	6,7
157	3-фенилпропил	N-бутокси	15:85	5	6,8	6,9
158	Циклопентилметил	2-этилбутилокси	15:85	6	5,0	4,9
159	2-циклогексилэтил	2-этилбутилокси	15:85	6	6,4	6,3
160	3-циклопентилпропил	2-этилбутилокси	15:85	5	6,6	6,4

161	Бензил	2-этилбутилокси	15:85	6	6,0	6,0
162	Фенэтил	2-этилбутилокси	15:85	6	6,4	6,3
163	3-фенилпропил	2-этилбутилокси	15:85	5	6,7	6,6
164	Циклопентилметил	N-бутокс	35:65	5	5,1	5,0
165	2-циклогексилэтил	N-бутокс	35:65	6	6,3	6,3
166	3-циклопентилпропил	N-бутокс	35:65	5	6,7	6,6
167	Бензил	N-бутокс	35:65	5	6,2	6,1
168	Фенэтил	N-бутокс	35:65	5	6,6	6,4
169	3-фенилпропил	N-бутокс	35:65	6	6,7	6,6
170	Циклопентилметил	2-этилбутилокси	35:65	6	4,9	5,0
171	2-циклогексилэтил	2-этилбутилокси	35:65	6	6,3	6,2
172	3-циклопентилпропил	2-этилбутилокси	35:65	6	6,4	6,4
173	Бензил	2-этилбутилокси	35:65	6	5,9	5,8
174	Фенэтил	2-этилбутилокси	35:65	5	6,3	6,3
175	3-фенилпропил	2-этилбутилокси	35:65	5	6,6	6,4
176	Циклопентилметил	N-бутокс	50:50	5	4,8	4,8
177	2-циклогексилэтил	N-бутокс	50:50	5	6,1	6,2
178	3-циклопентилпропил	N-бутокс	50:50	6	6,4	6,6
179	Бензил	N-бутокс	50:50	6	6,0	5,9
180	Фенэтил	N-бутокс	50:50	5	6,3	6,3
181	3-фенилпропил	N-бутокс	50:50	6	6,4	6,2
182	Циклопентилметил	2-этилбутилокси	50:50	6	4,7	4,6
183	2-циклогексилэтил	2-этилбутилокси	50:50	5	6,0	6,2
184	3-циклопентилпропил	2-этилбутилокси	50:50	5	6,2	6,2
185	Бензил	2-этилбутилокси	50:50	6	5,6	5,6
186	Фенэтил	2-этилбутилокси	50:50	6	6,0	6,1
187	3-фенилпропил	2-этилбутилокси	50:50	6	6,3	6,2

\*9) Процент снижения концентрации атомов олова (в активном компоненте) композиции алкоксида алкил(замещенный циклической группой)олова определяли с помощью следующей математической формулы (8).

\*10) Полученное количество алкоксида три(алкил(замещенный циклической группой)олова рассчитывали с помощью математической формулы (9).

[Математическая формула 44]

Процент снижения концентрации атомов олова (в активном компоненте) =  $(S_3^0 - S_3^t) / S_3^0 \times 100\%$  (8)

где "процент снижения концентрации атомов олова (в активном компоненте)" представляет собой процент снижения [%] концентрацию атомов олова (в активном компоненте) композиции после циркуляционного процесса;

$S_3^0$  представляет собой концентрацию атомов олова (в активном компоненте) [моль/кг] композиции перед циркуляционным процессом;

$S_3^t$  представляет собой концентрацию атомов олова (в активном компоненте) [моль/кг] композиции после циркуляционного процесса;

$S_3^0$  и  $S_3^t$  рассчитывали, исходя из концентрации тетра(алкил(замещенный циклической группой))диалкоксидистанноксана и концентрации диалкоксида ди(алкил(замещенный циклической группой))

пой))олова композиции в соответствии с определением спектроскопии  $^{119}\text{Sn}$ -ЯМР.

[Математическая формула 45]

$$\text{Полученное количество алкоксида три(алкил(замещенный циклической группой))олова} = T / (W_3^0 \times S_3^0) \times 100\% \quad (9)$$

где "полученное количество алкоксид три(алкил(замещенный циклической группой))олова" представляет собой количество алкоксида три(алкил(замещенный циклической группой))олова, полученного [%] после циркуляционного процесса;

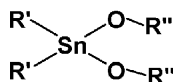
T представляет собой число моль [моль] алкоксида три(алкил(замещенный циклической группой))олова, полученного после циркуляционного процесса;

$W_3^0$  представляет собой массу [кг] композиции алкоксида алкил(замещенный циклической группой))олова, введенной в бак с катализатором перед циркуляционным процессом; и

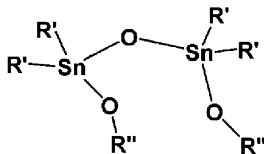
$S_3^0$  представляет собой концентрацию атомов олова (в активном компоненте) [моль/кг] композиции перед циркуляционным процессом.

Структурные формулы тетра(алкил(замещенный циклической группой))диалкоксидистанноксана и диалкоксида ди(алкил(замещенный циклической группой))олова в композиции алкоксида алкил(замещенный циклической группой))олова.

[Химическая формула 94]



[Химическая формула 95]



где R' представляет собой  $\text{C}_{3-16}$ алициклическую углеводородную группу или  $\text{C}_{6-16}$ ароматическую углеводородную группу и R'' представляет собой  $\text{C}_{1-8}$ алкильную группу.

Примеры 188-229.

Диалкоксиды ди(алкил(замещенный циклической группой))олова и тетраалкилдиалкоксидистанноксаны со структурами, перечисленными в табл. 30, получали такими же способами, как указано в примерах синтеза 1, 2, 4, 5, 7 и 8, и получали композиции алкоксида алкил(замещенный циклической группой)олова, содержащие диалкоксиды ди(алкил(замещенный циклической группой))олова и тетра(алкил(замещенный циклической группой))диалкоксидистанноксаны. Композиции получали таким образом, чтобы молярное соотношение атомов олова диалкоксидов ди(алкил(замещенный циклической группой))олова и тетра(алкил(замещенный циклической группой))диалкоксидистанноксана по отношению к числу моль атомов олова (в активном компоненте) составляло 65:35. Затем добавляли алкоксиды триалкилолова со структурами, перечисленными в табл. 30, к композициям алкоксида алкил(замещенный циклической группой))олова для получения композиций алкоксида алкил(замещенный циклической группой))олова, содержащих алкоксиды триалкилолова. Композиции получали таким образом, чтобы число моль атомов олова в алкоксидах триалкилолова по отношению к числу моль атомов олова композиций алкоксида алкил(замещенный циклической группой))олова, содержащих алкоксиды триалкилолова, составляло от 11 до 13 мол. %.

Композиции использовали аналогичным способом, как в примере 5, для пробного испытания (циркуляционного процесса) в циркуляционном реакторе непрерывного действия, как показано на фиг. 5, с подтверждением реакции модификации во время термо циркуляции. Приблизительно 60 кг каждой композиции вводили в бак с катализатором и осуществляли циркуляцию в циркуляционном реакторе непрерывного действия, как показано на фиг. 5 аналогичным способом. Из бака с катализатором брали образец каждой композиции после циркуляционного процесса и подвергали спектроскопии  $^{119}\text{Sn}$ -ЯМР. Концентрацию атомов олова в композиции рассчитывали, исходя из концентрации тетра(алкил(замещенный циклической группой))диалкоксидистанноксана и концентрации диалкоксида ди(алкил(замещенный циклической группой))олова композиции после пробного испытания в соответствии с результатами анализа, и рассчитывали процент снижения от момента, предшествующего началу пробного испытания. Число моль алкоксида три(алкил(замещенный циклической группой))олова также определяли, исходя из результатов анализа, и рассчитывали полученное количество п отношению к числу моль атомов олова (в активном компоненте) композиции до начала пробного испытания. Процент снижения концентрации атомов олова (в активном компоненте) композиций и полученное количество алкоксида три(алкил(замещенный циклической группой))олова показаны в табл. 30.

Таблица 30

Пример	Композиция алкоксида алкилолова		Алкоксид триалкилолова		Непрерывное время [в сутках]	Процент снижения концентрации атомов олова (в активном компоненте) [%] * 11)	Полученное количество алкоксида триалкилолова [%] * 12)
	R <sup>i</sup> (алкильная группа)	OR <sup>i</sup> (алкокси- группа)	R <sup>iii</sup> (алкильная группа)	Концентрация [атомов олова в моль-процентах]			
188	Циклопентилметил	3-метилбутилокси	N-октил	12	5	4,5	4,6
189	2-циклогексилэтил	3-метилбутилокси	N-октил	11	5	5,9	6,1
190	3-циклопентилпропил	3-метилбутилокси	N-октил	12	4	6,0	5,8
191	Бензил	3-метилбутилокси	N-октил	13	4	5,8	5,9
192	Фенэтил	3-метилбутилокси	N-октил	12	5	6,1	6,3
193	3-фенилпропил	3-метилбутилокси	N-октил	11	5	6,2	6,0
194	Циклопентилметил	3-метилбутилокси	Циклопентилметил	11	5	4,2	4,2
195	2-циклогексилэтил	3-метилбутилокси	Циклопентилметил	12	5	5,4	5,2
196	3-циклопентилпропил	3-метилбутилокси	Циклопентилметил	11	4	5,5	5,2
197	Бензил	3-метилбутилокси	Циклопентилметил	12	5	5,4	5,4
198	Фенэтил	3-метилбутилокси	Циклопентилметил	12	4	5,6	5,5
199	3-фенилпропил	3-метилбутилокси	Циклопентилметил	12	5	5,7	5,7
200	Циклопентилметил	3-метилбутилокси	Бензил	12	4	4,1	4,2
201	2-циклогексилэтил	3-метилбутилокси	Бензил	13	5	5,5	5,5
202	3-циклопентилпропил	3-метилбутилокси	Бензил	11	5	5,5	5,4
203	Бензил	3-метилбутилокси	Бензил	12	5	5,3	5,3
204	Фенэтил	3-метилбутилокси	Бензил	12	5	5,6	5,7

205	3-фенилпропил	3-метилбутилокси	Бензил	12	5	5,7	5,6
206	Циклопентилметил	3-метилбутилокси	2-циклогексилэтил	12	5	4,2	4,1
207	2-циклогексилэтил	3-метилбутилокси	2-циклогексилэтил	11	5	5,5	5,5
208	3-циклопентилпропил	3-метилбутилокси	2-циклогексилэтил	12	4	5,5	5,4
209	Бензил	3-метилбутилокси	2-циклогексилэтил	12	5	5,4	5,4
210	Фенэтил	3-метилбутилокси	2-циклогексилэтил	11	5	5,7	5,7
211	3-фенилпропил	3-метилбутилокси	2-циклогексилэтил	11	4	5,7	5,8
212	Циклопентилметил	3-метилбутилокси	Фенэтил	12	5	4,1	4,1
213	2-циклогексилэтил	3-метилбутилокси	Фенэтил	12	4	5,4	5,3
214	3-циклопентилпропил	3-метилбутилокси	Фенэтил	11	4	5,6	5,7
215	Бензил	3-метилбутилокси	Фенэтил	13	4	5,3	5,2
216	Фенэтил	3-метилбутилокси	Фенэтил	12	5	5,6	5,8
217	3-фенилпропил	3-метилбутилокси	Фенэтил	12	5	5,7	5,6
218	Циклопентилметил	3-метилбутилокси	3-циклопентилпропил	12	5	4,1	4,2
219	2-циклогексилэтил	3-метилбутилокси	3-циклопентилпропил	11	5	5,4	5,5
220	3-циклопентилпропил	3-метилбутилокси	3-циклопентилпропил	12	4	5,6	5,5
221	Бензил	3-метилбутилокси	3-циклопентилпропил	12	4	5,3	5,3
222	Фенэтил	3-метилбутилокси	3-циклопентилпропил	12	5	5,6	5,7
223	3-фенилпропил	3-метилбутилокси	3-циклопентилпропил	11	4	5,7	5,6
224	Циклопентилметил	3-метилбутилокси	3-фенилпропил	12	4	4,1	4,2
225	2-циклогексилэтил	3-метилбутилокси	3-фенилпропил	12	5	5,5	5,6
226	3-циклопентилпропил	3-метилбутилокси	3-фенилпропил	11	4	5,6	5,7
227	Бензил	3-метилбутилокси	3-фенилпропил	11	5	5,3	5,3
228	Фенэтил	3-метилбутилокси	3-фенилпропил	12	4	5,6	5,4
229	3-фенилпропил	3-метилбутилокси	3-фенилпропил	12	5	5,8	6,0

\*11) Процент снижения концентрации атомов олова (в активном компоненте) композиции алкоксида алкил(замещенный циклической группой)олова определяли с помощью следующей математической формулы (8).

\*12) Полученное количество алкоксида три(алкил(замещенный циклической группой)олова) рассчитывали с помощью математической формулы (9).

[Математическая формула 46]

Процент снижения концентрации атомов олова (в активном компоненте) =  $(S_3^0 - S_3^t) / S_3^0 \times 100\%$  (8)

где "процент снижения концентрации атомов олова (в активном компоненте)" представляет собой процент снижения [%] концентрации атомов олова (в активном компоненте) композиции после циркуляционного процесса;

$S_3^0$  представляет собой концентрацию атомов олова (в активном компоненте) [моль/кг] композиции перед циркуляционным процессом;

$S_3^1$  представляет собой концентрацию атомов олова (в активном компоненте) [моль/кг] композиции после циркуляционного процесса;

$S_3^0$  и  $S_3^1$  рассчитывали, исходя из концентрации тетра(алкил(замещенный циклической группой))диалкоксидистанноксана и концентрации диалкоксид ди(алкил(замещенный циклической группой))олова композиции в соответствии с определением спектроскопии  $^{119}\text{Sn}$ -ЯМР.

[Математическая формула 47]

$$\text{Полученное количество алкоксида три(алкил(замещенный циклической группой))олова} = T / (W_3^0 \times S_3^0) \times 100\% \quad (9)$$

где "полученное количество алкоксида три(алкил(замещенный циклической группой))олова" представляет собой количество алкоксида три(алкил(замещенный циклической группой))олова, полученного [%] после циркуляционного процесса;

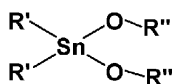
T представляет собой число моль [моль] алкоксида три(алкил(замещенный циклической группой))олова, полученного после циркуляционного процесса;

$W_3^0$  представляет собой массу [кг] композиции алкоксида алкил(замещенный циклической группой))олова, введенной в бак с катализатором перед циркуляционным процессом; и

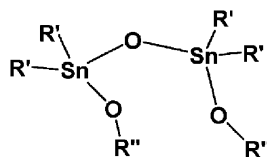
$S_3^0$  представляет собой концентрацию атомов олова (в активном компоненте) [моль/кг] композиции перед циркуляционным процессом.

Структурные формулы тетра(алкил(замещенный циклической группой))диалкоксидистанноксана, диалкоксида ди(алкил(замещенный циклической группой))олова и алкоксида три(алкил(замещенный циклической группой))олова в композиции алкоксида алкил(замещенный циклической группой))олова.

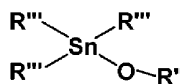
[Химическая формула 96]



[Химическая формула 97]



[Химическая формула 98]



где R' представляет собой  $C_{3-16}$ алициклическую углеводородную группу или  $C_{6-16}$ ароматическую углеводородную группу и R'' представляет собой  $C_{1-8}$ алкильную группу.

Примеры 230-265.

Композиции алкоксида алкил(замещенный циклической группой)олова, содержащие диалкоксиды ди(алкил(замещенный циклической группой))олова, тетраалкилдиалкоксидистанноксаны и алкоксиды три(алкил(замещенный циклической группой))олова со структурами, перечисленными в табл. 31, получали такими же способами, как указано в примерах синтеза 3, 6 и 9. Затем использовали композиции алкоксида алкил(замещенный циклической группой)олова, содержащие диалкоксиды ди(алкил(замещенный циклической группой))олова, тетраалкилдиалкоксидистанноксаны и алкоксиды три(алкил(замещенный циклической группой))олова, в соответствии с аналогичным способом, как в примере 1, и проводили пробное испытание (циркуляционный процесс) с помощью циркуляционного реактора непрерывного действия, как показано на фиг. 1, с подтверждением реакции модификации во время термоциркуляции. Приблизительно 50 кг каждой композиции вводили в бак с катализатором и осуществляли циркуляцию в циркуляционном реакторе непрерывного действия, как показано на фиг. 1, аналогичным способом. Из бака с катализатором брали образец каждой композиции после циркуляционного процесса и подвергали спектроскопии  $^{119}\text{Sn}$ -ЯМР. Концентрацию атомов олова в композиции рассчитывали, исходя из концентрации тетра(алкил(замещенный циклической группой))диалкоксидистанноксана и концентрации диалкоксида ди(алкил(замещенный циклической группой))олова композиции после пробного испытания в соответствии с результатами анализа, и рассчитывали процент снижения от момента, предшествующего началу пробного испытания. Число моль алкоксида три(алкил(замещенный циклической группой))олова также определяли, исходя из результатов анализа, и рассчитывали полученное количество по отношению к числу моль атомов олова (в активном компоненте) композиции до начала пробного испытания. Процент снижения концентрации атомов олова (в активном компоненте) композиций и полученное количество алкоксида три(алкил(замещенный циклической группой))олова показаны в табл. 31.

Таблица 31

Пример	Композиция алкоксида алкилолова		Алкоксид триалкилолова		Непрерывное время [в сутках]	Процент снижения концентрации атомов олова (в активном компоненте) [%] * 13)	Полученное количество алкоксида триалкилолова [%] * 14)
	R' (алкильная группа)	OR'' (алкокси-группа)	R''' (алкильная группа)	Концентрация [атомов олова в моль-процентах]			
230	Циклопентилметил	N-бутоксид	Циклопентилметил	12	5	4,4	4,4
231	Циклогексилэтил	N-бутоксид	Циклогексилэтил	11	5	5,9	6,0
232	3-циклопентилпропил	N-бутоксид	3-циклопентилпропил	12	4	6,1	6,2
233	Бензил	N-бутоксид	Бензил	12	5	5,5	5,3
234	Фенэтил	N-бутоксид	Фенэтил	12	4	5,9	5,9
235	3-фенилпропил	N-бутоксид	3-фенилпропил	12	4	6,1	6,1
236	Циклопентилметил	N-бутоксид	Циклопентилметил	24	4	4,3	4,3
237	Циклогексилэтил	N-бутоксид	Циклогексилэтил	25	4	5,7	5,6
238	3-циклопентилпропил	N-бутоксид	3-циклопентилпропил	25	4	5,8	5,7
239	Бензил	N-бутоксид	Бензил	25	5	5,3	5,2
240	Фенэтил	N-бутоксид	Фенэтил	25	4	5,7	5,6
241	3-фенилпропил	N-бутоксид	3-фенилпропил	25	5	5,8	5,8
242	Циклопентилметил	N-бутоксид	Циклопентилметил	45	5	4,1	4,1
243	Циклогексилэтил	N-бутоксид	Циклогексилэтил	46	4	5,5	5,3
244	3-циклопентилпропил	N-бутоксид	3-циклопентилпропил	45	5	5,6	5,4
245	Бензил	N-бутоксид	Бензил	45	4	5,1	5,1
246	Фенэтил	N-бутоксид	Фенэтил	45	5	5,4	5,4
247	3-фенилпропил	N-бутоксид	3-фенилпропил	45	4	5,6	5,5
248	Циклопентилметил	2-этилбутилоксид	Циклопентилметил	12	5	4,4	4,5
249	Циклогексилэтил	2-этилбутилоксид	Циклогексилэтил	12	5	5,6	5,6
250	3-циклопентилпропил	2-этилбутилоксид	3-циклопентилпропил	12	4	5,9	6,0
251	Бензил	2-этилбутилоксид	Бензил	11	5	5,5	5,4
252	Фенэтил	2-этилбутилоксид	Фенэтил	11	4	5,7	5,7

253	3-фенилпропил	2-этилбутилокси	3-фенилпропил	12	5	6,0	5,8
254	Циклопентилметил	2-этилбутилокси	Циклопентилметил	25	5	4,2	4,2
255	Циклогексилэтил	2-этилбутилокси	Циклогексилэтил	24	4	5,4	5,2
256	3-циклопентилпропил	2-этилбутилокси	3-циклопентилпропил	24	4	5,6	5,4
257	Бензил	2-этилбутилокси	Бензил	25	5	5,3	5,3
258	Фенэтил	2-этилбутилокси	Фенэтил	24	5	5,4	5,4
259	3-фенилпропил	2-этилбутилокси	3-фенилпропил	25	4	5,9	6,0
260	Циклопентилметил	2-этилбутилокси	Циклопентилметил	46	4	4,1	4,0
261	Циклогексилэтил	2-этилбутилокси	Циклогексилэтил	46	4	5,1	5,0
262	3-циклопентилпропил	2-этилбутилокси	3-циклопентилпропил	45	4	5,3	5,2
263	Бензил	2-этилбутилокси	Бензил	45	4	5,1	5,0
264	Фенэтил	2-этилбутилокси	Фенэтил	45	5	5,2	5,3
265	3-фенилпропил	2-этилбутилокси	3-фенилпропил	46	5	5,5	5,6

\*7) Процент снижения концентрации атомов олова (в активном компоненте) композиции алкоксида алкил(замещенный циклической группой)олова определяли с помощью следующей математической формулы (8).

\*8) Полученное количество алкоксида три(алкил(замещенный циклической группой)олова) рассчитывали с помощью математической формулы (9).

[Математическая формула 48]

$$\text{Процент снижения концентрации атомов олова (в активном компоненте)} = (S_3^0 - S_3^t) / S_3^0 \times 100\% \quad (8)$$

где "процент снижения концентрации атомов олова (в активном компоненте)" представляет собой процент снижения [%] концентрации атомов олова (в активном компоненте) композиции после циркуляционного процесса;

$S_3^0$  представляет собой концентрацию атомов олова (в активном компоненте) [моль/кг] композиции перед циркуляционным процессом;

$S_3^t$  представляет собой концентрацию атомов олова (в активном компоненте) [моль/кг] композиции после циркуляционного процесса;

$S_3^0$  и  $S_3^t$  рассчитывали, исходя из концентрации тетра(алкил(замещенный циклической группой))диалкоксидистанноксана и концентрации диалкоксида ди(алкил(замещенный циклической группой)олова) композиции в соответствии с определением спектроскопии  $^{119}\text{Sn}$ -ЯМР.

[Математическая формула 49]

$$\text{Полученное количество алкоксида три(алкил(замещенный циклической группой)олова)} = T / (W_3^0 \times S_3^0) \times 100\% \quad (9)$$

где "полученное количество алкоксида три(алкил(замещенный циклической группой)олова)" представляет собой количество алкоксида три(алкил(замещенный циклической группой)олова), полученного [%] после циркуляционного процесса;

T представляет собой число моль [моль] алкоксида три(алкил(замещенный циклической группой)олова), полученного после циркуляционного процесса;

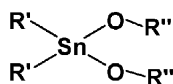
$W_3^0$  представляет собой массу [кг] композиции алкоксида алкил(замещенный циклической группой)олова, введенной в бак с катализатором перед циркуляционным процессом; и

$S_3^0$  представляет собой концентрацию атомов олова (в активном компоненте) [моль/кг] композиции перед циркуляционным процессом.

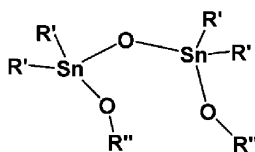
Структурные формулы тетра(алкил(замещенный циклической группой))диалкоксидистанноксана, диалкоксида ди(алкил(замещенный циклической группой)олова) и алкоксида три(алкил(замещенный циклической группой)олова) в композиции алкоксида алкил(замещенный циклической группой)олова.



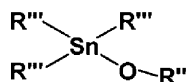
[Химическая формула 99]



[Химическая формула 100]



[Химическая формула 101]



где R' представляет собой C<sub>3-16</sub>алициклическую углеводородную группу или C<sub>6-16</sub>ароматическую углеводородную группу и R'' представляет собой C<sub>1-8</sub>алкильную группу.

Пример 266.

Циркуляционный реактор непрерывного действия, включающий корпусной реактор, трубчатый реактор и башенный реактор, такой как показан на фиг. 1, использовали при проведении реакции переэтерификации. Приблизительно 20 кг композицииди(циклогексилметил)-бис-(3-метилбутокс)олова, полученной аналогичным способом, как в примере синтеза 1 (с концентрацией атомов олова (в активном компоненте) композиции: 2,02 моль/кг), вводили в бак с катализатором SUS316 130, оснащенный нагревательной рубашкой и насосом для перемещения жидкости через линию поставки 15. Затем сложный эфир н-пропил-2-этилгексаноата (продукт Wako Pure Chemical Industries) вводили в бак с исходным веществом 110 через линию поставки 1 и 3-метил-1-бутиловый спирт (продукт Kuragay Co., Ltd.) вводили в бак с исходным веществом 120 через линию поставки 2. Бак и трубу обогревали паром для сохранения реологического свойства. В корпусной реактор 140 переносили сложный эфир н-пропил-2-этилгексаноата при скорости потока приблизительно 10 кг/ч через линию транспортировки 3, поточный смеситель 141 и линию транспортировки 5 и 3-метил-1-бутиловый спирт при скорости потока приблизительно 12 кг/ч - через линию транспортировки 4, поточный смеситель 141 и линию транспортировки 5. Композицию переносили из бака с катализатором 130 в корпусной реактор 140 при 1,6 кг/ч через линию транспортировки 14, поточный смеситель 141, оснащенный нагревательной рубашкой, и линию транспортировки 5. В поточном смесителе 141 композицию ди(циклогексилметил)-бис-(3-метилбутокс)олова, н-пропил 2-сложный эфир н-пропил-2-этилгексаноата и 3-метил-1-бутиловый спирт смешивали и нагревали. Концентрация атомов олова в смеси в корпусном реакторе составляла 1,8 мол.%. Корпусной реактор 140 представлял собой реактор объемом 15 л, включающий мешалку, нагревательную рубашку и насос для перемещения жидкости, и нагревательную рубашку нагревали паром для контроля смеси в реакторе приблизительно до 160°C. Трубчатый реактор 150 с внешним диаметром 200 мм и длиной 1000 мм также включал нагревательную рубашку, которую нагревали паром приблизительно при 160°C. Сложный эфир н-пропил-2-этилгексаноата и 3-метил-1-бутиловый спирт, перенесенные в корпусной реактор 140, подвергали реакции переэтерификации с использованием композиции ди(циклогексилметил)-бис-(3-метилбутокс)олова в качестве катализатора, а затем переносили в трубчатый реактор 150 через линию транспортировки 6 для проведения реакции и также переносили в башенный реактор 160 через линию транспортировки 7 для проведения реакции.

Башенный реактор SUS316 160 с внутренним диаметром 75 мм и расчетной длиной 4500 мм, оснащенный 30 ситчатыми тарелками, нагревали и теплоизолировали с помощью обогревателя по всей площади башенного реактора для предотвращения потери излучаемого тепла, обогреватель установили на уровне приблизительно 160°C. Насос для перемещения жидкости и ребойлер 163 помещали на дно башенного реактора 160, и ребойлер 163 нагревали паром приблизительно при 165°C. Далее проводили реакцию переэтерификации в башенном реакторе 160, н-пропанол и 3-метил-1-бутиловый спирт, полученные посредством реакции отделяли посредством дистилляции, и собирали фракцию, состоящую в основном из н-пропанола, из коллекторной линии 8. Смесь, содержащую продукт реакции сложного эфира 3-метилбутил-2-этилгексаноата, переносили из башенного реактора 160 через линию транспортировки 9 в тонкоплочный испаритель 170 с установленной температурой 180°C и давлением приблизительно 40 кПа абс., а затем компонент с низкой температурой кипения, содержащий сложный эфир 3-метилбутил-2-этилгексаноата, переносили через линию транспортировки 10 в дистилляционную колонку 180 (колонку, заполненную наполнителем MetalGauze CY, с внутренним диаметром 83 мм, расчетной длиной 2800 мм) и очищали. В отдельности компонент с высокой температурой кипения компонент, содержащий композицию ди(циклогексилметил)-бис-(3-метилбутокс)олова, переносили в бак с катализатором 130 через линию транспортировки 11, а затем подвергали циркуляции в циркуляционном реакторе непрерывного действия через линию транспортировки 14, поточный смеситель 141 и линию

транспортировки 5. При необходимости, поставку из бака с исходным веществом и бака с катализатором в корпусной реактор уменьшали или прерывали для установления стабильного состояния внутри системы. Процесс продолжали и после достижения стабильного состояния системы со дна башенного реактора 160 брали образец смеси и подвергали его количественному анализу с помощью газовой хроматографии, выход сложного эфира 3-метилбутил-2-этилгексаноата составил 18,8% на основании сложного эфира *n*-пропил-2-этилгексаноата. Это состояние поддерживали в течение приблизительно 15 суток, после этого снова брали образец смеси со дна башенного реактора 160 и подвергали его количественному анализу с помощью газовой хроматографии, и выход сложного эфира 3-метилбутил-2-этилгексаноата составил 18,3%. Было возможно получение сложного эфира 3-метилбутил-2-этилгексаноата приблизительно при 1,9 кг/ч из коллекторной линии 13 во время непрерывного процесса. Компонент с высокой температурой кипения, содержащий композицию ди(циклогексилметил)-бис-(3-метилбутокс)олова, в циркуляционном реакторе непрерывного действия после непрерывного процесса отделяли с использованием тонкоплочного испарителя 170, собирали в баке с катализатором 130 и измеряли массу. Из бака с катализатором 130 брали образец через трубопровод отбора пара 16, и в результате проведенной спектроскопии  $^{119}\text{Sn}$ -ЯМР подтверждалось присутствие ди(циклогексилметил)-бис-(3-метилбутокс)олова и три(циклогексилметил)(3-метилбутокс)олова после непрерывного процесса. Исходя из результатом проведенного анализа, получали приблизительно 0,34 моль три(циклогексилметил)(3-метилбутокс)олова через 15 суток непрерывного процесса, количество составляло приблизительно 0,7% по отношению к числу моль атомов олова (в активном компоненте) композиции, введенной в бак с катализатором 130 до начала непрерывного процесса.

Пример 267.

Циркуляционный реактор непрерывного действия, включающий корпусной реактор, трубчатый реактор и башенный реактор, как показано на фиг. 1, использовали для проведения реакции переэтерификации. Приблизительно 20 кг композиции ди(циклогексилметил)-бис-(3-метилбутокс)олова, полученной аналогичным способом, как в примере синтеза 1 (с концентрацией атомов олова (в активном компоненте) композиции 2,26 моль/кг), вводили в бак с катализатором SUS316 130, оснащенный нагревательной рубашкой и насосом для перемещения жидкости, через линию поставки 15. Затем сложный эфир 3-метилбутил-2-этилгексаноата, полученный в примере 306, вводили в бак с исходным веществом 110 через линию поставки 1 и сложный эфир этил-2-метилпропаноат (продукт Aldrich) вводили в бак с исходным веществом 120 через линию поставки 2. Бак и трубу обогревали паром для сохранения реологического свойства. Сложный эфир 3-метилбутил-2-этилгексаноата переносили при скорости потока приблизительно 12 кг/ч через линию транспортировки 3, поточный смеситель 141 и линию транспортировки 5 и сложный эфир этил-2-метилпропаноата переносили в корпусной реактор 140 при скорости потока приблизительно 10 кг/ч через линию транспортировки 4, поточный смеситель 141 и линию транспортировки 5. В отдельности бак с катализатором 130 нагревали паром для сохранения реологического свойства содержимого и композицию ди(циклогексилметил)-бис-(3-метилбутокс)олова в таком состоянии переносили при 1,3 кг/ч через линию транспортировки 14, поточный смеситель 141, оснащенный нагревательной рубашкой, и линию транспортировки 5. В поточном смесителе 141 композицию ди(циклогексилметил)-бис-(3-метилбутокс)олова, сложный эфир 3-метилбутил-2-этилгексаноата и сложный эфир этил-2-метилпропаноата смешивали и нагревали. Концентрация атомов олова в смеси в корпусном реакторе 140 составляла 1,9 мол.%. Корпусной реактор 140 представлял собой реактор объемом 15 л, включающий мешалку, нагревательную рубашку и насос для перемещения жидкости, и нагревательную рубашку нагревали паром для контроля смеси в реакторе приблизительно до 160°C. Трубчатый реактор 150 также включал нагревательную рубашку, которую нагревали паром приблизительно при 160°C. Сложный эфир 3-метилбутил-2-этилгексаноата и сложный эфир этил-2-метилпропаноата, ранее перенесенные в корпусной реактор 140, подвергали реакции переэтерификации с использованием композиции ди(циклогексилметил)-бис-(3-метилбутокс)олова в качестве катализатора, а затем переносили в трубчатый реактор 150 через линию транспортировки 6 для проведения реакции и затем переносили в башенный реактор 160 через линию транспортировки 7 для проведения реакции.

Башенный реактор SUS316 160 с внутренним диаметром 75 мм и расчетной длиной 4500 мм, оснащенный 30 ситчатыми тарелками, нагревали и теплоизолировали с помощью обогревателя по всей площади башенного реактора для предотвращения потери излучаемого тепла, обогреватель установили на уровне приблизительно 160°C. Насос для перемещения жидкости и ребойлер 163 помещали на дно башенного реактора 160 и ребойлер 163 нагревали паром приблизительно при 165°C. После проведения реакции переэтерификации в башенном реакторе 160 сложный эфир 3-метилбутил-2-метилпропаноата, собранный посредством реакции, и не вступивший в реакцию сложный эфир этил-2-метилпропаноата отделяли посредством дистилляции и фракцию, содержащую сложный эфир этил-2-метилпропаноата и сложный эфир 3-метилбутил-2-метилпропаноата, собирали из коллекторной линии 8.

Смесь, содержащую продукт реакции сложного эфира этил-2-этилгексаноата и не вступивший в реакцию сложный эфир 3-метилбутил-2-этилгексаноата, переносили из башенного реактора 160 через линию транспортировки 9 в тонкоплочный испаритель 170 с установленной температурой 180°C и дав-

лением приблизительно 30 кПа абс., а затем компонент с низкой температурой кипения, содержащий сложный эфир этил-2-этилгексаноата и сложный эфир 3-метилбутил-2-этилгексаноата, переносили через линию транспортировки 11 в дистилляционную колонку 180 (колонку, заполненную наполнителем MetalGauze CY, с внутренним диаметром 83 мм, расчетной длиной 2800 мм) и очищали. В отдельности компонент с высокой температурой кипения, содержащий композицию ди(циклогексилметил)-бис-(3-метилбутокс)олова, переносили в бак с катализатором 130 через линию транспортировки 11, а затем осуществляли циркуляцию в циркуляционном реакторе непрерывного действия через линию транспортировки 14, поточный смеситель 141 и линию транспортировки 5. При необходимости, поставку из бака с исходным веществом и бака с катализатором в корпусной реактор уменьшали или прерывали до достижения стабильного состояния внутри системы. Процесс продолжали и после достижения стабильного состояния внутри системы со дна башенного реактора 160 брали образец смеси и проводили количественный анализ посредством газовой хроматографии, выход сложного эфира этил-2-этилгексаноата составлял 31,1% (на основании групп сложного эфира 3-метилбутил-2-этилгексаноата). Это состояние сохранялось в течение приблизительно 15 суток, после этого со дна башенного реактора 160 снова брали образец смеси и проводили количественный анализ посредством газовой хроматографии, и выход сложного эфира этил-2-этилгексаноата составлял 30,5%. Было возможно стабильное получение сложного эфира этил-2-этилгексаноата в собранной фракции приблизительно при 2,6 кг/ч из коллекторной линии 12 в течение непрерывного процесса. Компонент с высокой температурой кипения, содержащий композицию ди(циклогексилметил)-бис-(3-метилбутокс)олова, в циркуляционном реакторе непрерывного действия после непрерывного процесса отделяли с использованием тонкопленочного испарителя 170, собирали в баке с катализатором 130 и измеряли массу. Из бака с катализатором 130 брали образец через трубопровод отбора пара 16, и в результате проведенной спектроскопии  $^{119}\text{Sn}$ -ЯМР подтверждалось присутствие ди(циклогексилметил)-бис-(3-метилбутокс)олова, ди(циклогексилметил)диэтоксиолова, три(циклогексилметил)(3-метилбутокс)олова и три(циклогексилметил)этоксиолова после непрерывного процесса. Исходя из результатов проведенного анализа, получали общее количество три(циклогексилметил)(3-метилбутокс)олова и три(циклогексилметил)этоксиолова, составившее 0,36 моль, через 15 суток непрерывного процесса это количество составляло приблизительно 0,9% по отношению к числу моль атомов олова (в активном компоненте)композиции, введенной в бак с катализатором 130 до начала непрерывного процесса.

Пример 268.

Циркуляционный реактор непрерывного действия, включающий корпусной реактор, трубчатый реактор и башенный реактор, как показано на фиг. 1, использовали для проведения реакции перэтерификации. Приблизительно 20 кг композиции 1,1,3,3-тетра(циклогексилметил)-1,3-диэтоксидистанноксана, полученной аналогичным способом, как в примере синтеза 2 (с концентрацией атомов олова (в активном компоненте) композиции 2,68 моль/кг), вводили в бак с катализатором SUS316 130, оснащенный нагревательной рубашкой и насосом для перемещения жидкости, через линию поставки 15. Затем сложный эфир 3-метилбутил-2-этилгексаноата вводили в бак с исходным веществом 110 через линию поставки 1 и сложный эфир этил-2-метилпропаноата (продукт Aldrich) вводили в бак с исходным веществом 120 через линию поставки 2. Бак и трубу обогревали паром для сохранения реологического свойства. Сложный эфир 3-метилбутил-2-этилгексаноата переносили при скорости потока приблизительно 12 кг/ч через линию транспортировки 3, поточный смеситель 141 и линию транспортировки 5 и сложный эфир этил-2-метилпропаноата переносили в корпусной реактор 140 при скорости потока приблизительно 10 кг/ч через линию транспортировки 4, поточный смеситель 141 и линию транспортировки 5. Кроме того, бак с катализатором 130 нагревали паром для сохранения реологического свойства содержимого и композицию в таком состоянии переносили при 0,9 кг/ч через линию транспортировки 14, поточный смеситель 141 оснащенный, нагревательной рубашкой, и линию транспортировки 5. В поточном смесителе 141 композицию, сложный эфир 3-метилбутил-2-этилгексаноата и сложный эфир этил-2-метилпропаноат смешивали и нагревали. Концентрация атомов олова в смеси в корпусном реакторе 140 составила 1,8 мол.%. Корпусной реактор 140 представлял собой реактор объемом 15 л, включающий мешалку, нагревательную рубашку и насос для перемещения жидкости, и нагревательную рубашку нагревали паром для контроля смеси в реакторе приблизительно до 160°C. Трубчатый реактор 150 также включал нагревательную рубашку, которую нагревали паром приблизительно при 160°C. Сложный эфир 3-метилбутил-2-этилгексаноата и сложный эфир этил-2-метилпропаноата переносили в корпусной реактор 140 и подвергали реакции перэтерификации с использованием 1,1,3,3-тетра(циклогексилметил)-1,3-диэтоксидистанноксана в качестве катализатора, а затем переносили в трубчатый реактор 150 через линию транспортировки 6 для проведения реакции, и также переносили в башенный реактор 160 через линию транспортировки 7 для проведения реакции. Башенный реактор SUS316 160 с внутренним диаметром 75 мм и расчетной длиной 4500 мм, оснащенный 30 ситчатыми тарелками, нагревали и теплоизолировали с помощью обогревателя по всей площади башенного реактора для предотвращения потери излучаемого тепла, обогреватель установили на уровне приблизительно 160°C. Насос для перемещения жидкости и ребойлер 163 помещали на дно башенного реактора 160 и ребойлер 163 нагревали паром прибли-

зительно при 165°C. После проведения реакции переэтерификации в башенном реакторе 160 сложный эфир 3-метилбутил-2-метилпропаноата, собранный посредством реакции, и не вступивший в реакцию сложный эфир этил-2-метилпропаноата отделяли посредством дистилляции и фракцию, содержащую сложный эфир этил-2-метилпропаноата и сложный эфир 3-метилбутил-2-метилпропаноата, собирали из коллекторной линии 8. Смесь, содержащую продукт реакции сложного эфира этил-2-этилгексаноата и не вступивший в реакцию сложный эфир 3-метилбутил-2-этилгексаноат, переносили из башенного реактора 160 через линию транспортировки 9 в тонкоплочный испаритель 170 с установленной температурой 180°C и давлением приблизительно 30 кПа абс., а затем компонент с низкой температурой кипения, содержащий сложный эфир этил-2-этилгексаноата и сложный эфир 3-метилбутил-2-этилгексаноата, переносили через линию транспортировки 10 в дистилляционную колонку 180 (колонку, заполненную наполнителем MetalGauze CY, с внутренним диаметром 83 мм, расчетной длиной 2800 мм) и очищали. В отдельности компонент с высокой температурой кипения, содержащий композицию 1,1,3,3-тетра(циклогексилметил)-1,3-диэтоксидистанноксана, переносили в бак с катализатором 130 через линию транспортировки 11, а затем осуществляли циркуляцию в циркуляционном реакторе непрерывного действия через линию транспортировки 14, поточный смеситель 141 и линию транспортировки 5. При необходимости, поставку из бака с исходным веществом и бака с катализатором в корпусной реактор уменьшали или прерывали до достижения стабильного состояния внутри системы. Процесс продолжали и после достижения стабильного состояния внутри системы брали образец смеси со дна башенного реактора 160 и проводили количественный анализ посредством газовой хроматографии, выход сложного эфира этил-2-этилгексаноата составил 27,5% (на основании групп сложного эфира 3-метилбутил-2-этилгексаноата). Это состояние сохранялось в течение приблизительно 15 суток, после этого снова брали образец смеси со дна башенного реактора 160 и проводили количественный анализ посредством газовой хроматографии, выход сложного эфира этил-2-этилгексаноата составил 26,9%. Было возможно стабильное получение сложного эфира этил-2-этилгексаноата в собранной фракции приблизительно при 2,3 кг/ч из коллекторной линии 12 в течение непрерывного процесса. Компонент с высокой температурой кипения, содержащий композицию 1,1,3,3-тетра(циклогексилметил)-1,3-диэтоксидистанноксана, в циркуляционном реакторе непрерывного действия после непрерывного процесса отделяли с использованием тонкоплочного испарителя 170, собирали в баке с катализатором 130 и измеряли массу. Брали образец из трубопровода отбора пара 16 бака с катализатором 130, и согласно результатам проведенной спектроскопии <sup>119</sup>Sn-ЯМР бак с катализатором 130 содержал 1,1,3,3-тетра(циклогексилметил)-1,3-бис-(3-метилбутоксидистанноксан, 1,1,3,3-тетра(циклогексилметил)-1,3-диэтоксидистанноксан, три(циклогексилметил)(3-метилбутоксидистанноксана)олова и три(циклогексилметил)этоксидистанноксана. Исходя из результатов проведенного анализа, получали общее количество три(циклогексилметил)(3-метилбутоксидистанноксана)олова и три(циклогексилметил)этоксидистанноксана, составившее 0,59 моль через 15 суток непрерывного процесса, это количество составляло приблизительно 1,1% по отношению к числу моль атомов олова (в активном компоненте), введенному в бак с катализатором 130 до начала непрерывного процесса.

Пример 269.

Циркуляционный реактор непрерывного действия, включающий трубчатый реактор и башенный реактор, как показано на фиг. 2, использовали для проведения реакции переэтерификации.

Приблизительно 20 кг композиции 1,1,3,3-тетра(циклогексилметил)-1,3-бис-(3-метилбутилокси)-дистанноксана, полученной аналогичным способом, как в примере синтеза 2 (с концентрацией атомов олова (в активном компоненте) композиции: 2,41 моль/кг), вводили в бак с катализатором SUS316 230, оснащенный нагревательной рубашкой и насосом для перемещения жидкости, через линию поставки 33. Затем сложный эфир 3-метилбутил-2-этилгексаноата вводили в бак с исходным веществом 210 через линию поставки 21 и сложный эфир этил-2-метилпропаноата вводили в бак с исходным веществом 220 через линию поставки 22. Бак и трубу обогревали паром для сохранения реологического свойства. Сложный эфир 3-метилбутил-2-этилгексаноата переносили через линию транспортировки 23, поточный смеситель 241 и линию транспортировки 25 при скорости потока приблизительно 12 кг/ч и сложный эфир этил-2-метилпропаноата переносили в трубчатый реактор 240, оснащенный нагревательной рубашкой, через линию транспортировки 24, поточный смеситель 241 и линию транспортировки 25 при скорости потока приблизительно 10 кг/ч. Кроме того, бак с катализатором 230 нагревали паром для сохранения реологического свойства содержимого, и композицию в таком состоянии переносили при 1,0 кг/ч через линию транспортировки 34, поточный смеситель 241 и линию транспортировки 25. В поточном смесителе 241 композицию, сложный эфир 3-метилбутил-2-этилгексаноата и сложный эфир этил-2-метилпропаноата смешивали и нагревали. Сложный эфир 3-метилбутил-2-этилгексаноата и сложный эфир этил-2-метилпропаноата, ранее перенесенные в трубчатый реактор 240, подвергали реакции переэтерификации с использованием 1,1,3,3-тетра(циклогексилметил)-1,3-бис-(3-метилбутилокси)-дистанноксана в качестве катализатора и переносили в башенный реактор 250 через линию транспортировки 26 для дальнейшей реакции. Башенный реактор SUS316 250 с внутренним диаметром 130 мм и расчетной длиной 4500 мм, оснащенный 30 ситчатыми тарелками, оснащали нагревателем, ребойлером 253 и насосом для перемещения жидкости и температуру внутри реактора контролировали на уровне

приблизительно 160°C с помощью нагревателя и ребойлера 253. С верха башенного реактора 250 фракцию, содержащую сложный эфир 3-метилбутил-2-метилпропаноата, полученный посредством реакции переэтерификации и не вступивший в реакцию сложный эфир этил-2-метилпропаноата, конденсировали с помощью конденсатора 251 и собирали с помощью коллекторной линии 27 посредством бака конденсата 252. Смесь, содержащую продукт реакции сложного эфира этил-2-этилгексаноата и не вступивший в реакцию сложный эфир 3-метилбутил-2-этилгексаноата, переносили со дна башенного реактора 250 через линию транспортировки 28 в тонкопленочный испаритель 260 с установленной температурой 180°C и давлением приблизительно 30 кПа абс., а затем компонент с низкой температурой кипения, содержащий сложный эфир этил-2-этилгексаноата и не вступивший в реакцию сложный эфир 3-метилбутил-2-этилгексаноата, переносили через линию транспортировки 29 в дистилляционную колонку 270 (колонку, заполненную наполнителем MetalGauze CY, с внутренним диаметром 83 мм, расчетной длиной 2800 мм) и очищали. В отдельности компонент с высокой температурой кипения, содержащий композицию 1,1,3,3-тетра(циклогексилметил)-1,3-бис-(3-метилбутилокси)дистанноксана, переносили в бак с катализатором 230 через линию транспортировки 30, а затем осуществляли циркуляцию в циркуляционном реакторе непрерывного действия через линию транспортировки 34, поточный смеситель 241 и линию транспортировки 25. При необходимости, поставку из бака с исходным веществом и бака с катализатором в трубчатый реактор уменьшали или прерывали для установления стабильного состояния внутри системы. Процесс продолжали и после достижения стабильного состояния внутри системы брали образец смеси со дна башенного реактора 250 и проводили количественный анализ посредством газовой хроматографии, выход сложного эфира этил-2-этилгексаноата составил 27,1% на основании групп сложного эфира 3-метилбутил-2-этилгексаноата. Это состояние сохранялось в течение приблизительно 15 суток, после этого снова брали образец смеси со дна башенного реактора 250 и проводили количественный анализ посредством газовой хроматографии, выход сложного эфира этил-2-этилгексаноата составил 26,5%.

Было возможно стабильное получение сложного эфира этил-2-этилгексаноата в собранной фракции приблизительно при 2,6 кг/ч из коллекторной линии 31 в течение непрерывного процесса. Компонент с высокой температурой кипения, содержащий композицию 1,1,3,3-тетра(циклогексилметил)-1,3-бис-(3-метилбутилокси)дистанноксана, в циркуляционном реакторе непрерывного действия после непрерывного процесса отделяли с использованием тонкопленочного испарителя 260, собирали в баке с катализатором 230 и измеряли массу. Из трубопровода отбора пара 35 бака с катализатором 230 брали образец, и согласно результатам проведенной спектроскопии <sup>119</sup>Sn-ЯМР бак с катализатором содержал 1,1,3,3-тетра(циклогексилметил)-1,3-бис-(3-метилбутилокси)дистанноксан, 1,1,3,3-тетра(циклогексилметил)-1,3-диэтокси-дистанноксан, три(циклогексилметил)(3-метилбутоксид)олова и три(циклогексилметил)этоксидолова. Исходя из результатов проведенного анализа, получали общее количество три(циклогексилметил)(3-метилбутоксид)олова и три(циклогексилметил)этоксидолова, составившее 0,58 моль через 15 суток непрерывного процесса, это количество составило приблизительно 1,2% по отношению к числу моль атомов олова (в активном компоненте), введенному в бак с катализатором 230 до начала непрерывного процесса.

Пример 270.

Циркуляционный реактор непрерывного действия, включающий корпусной реактор и башенный реактор, как показано на фиг. 3, использовали для проведения реакции переэтерификации.

Ди(циклогексилметил)-бис-(3-метилбутоксид)олова и 1,1,3,3-тетра(циклогексилметил)-1,3-бис-(3-метилбутоксид)дистанноксан, полученные аналогичным способом, как в примере синтеза 1 и примере синтеза 2, смешивали для получения композиции алкоксида алкил(замещенный циклической группой)олова. Композицию получали таким образом, чтобы молярное соотношение атомов олова ди(циклогексилметил)-бис-(3-метилбутоксид)олова и 1,1,3,3-тетра(циклогексилметил)-1,3-бис-(3-метилбутоксид)дистанноксана по отношению к числу моль атомов олова (в активном компоненте) в композиции составляло 65:35. Концентрация атомов олова (в активном компоненте) композиции составила 2,31 моль/кг, согласно определению, исходя из концентрации ди(циклогексилметил)-бис-(3-метилбутоксид)олова и концентрации 1,1,3,3-тетра(циклогексилметил)-1,3-бис-(3-метилбутоксид)дистанноксана композиции. Приблизительно 20 кг композиции вводили в бак с катализатором SUS316 330, оснащенный нагревательной рубашкой и насосом для перемещения жидкости, через линию поставки 53. Затем сложный эфир 3-метилбутил-2-этилгексаноата вводили в бак с исходным веществом через линию поставки 41 и сложный эфир этил-2-метилпропаноата вводили в бак с исходным веществом 320 через линию поставки 42. Бак и трубу обогревали паром для сохранения реологического свойства. Сложный эфир 3-метилбутил-2-этилгексаноата переносили при скорости потока приблизительно 12 кг/ч через линию транспортировки 43, поточный смеситель 341 и линию транспортировки 45 и сложный эфир этил-2-метилпропаноата переносили в корпусной реактор 340 при скорости потока приблизительно 10 кг/ч через линию транспортировки 44, поточный смеситель 341 и линию транспортировки 45. Кроме того, бак с катализатором 330 нагревали паром для сохранения реологического свойства содержимого и композицию в таком состоянии переносили при 1,3 кг/ч через линию транспортировки 54, поточный смеситель 341, оснащенный нагревательной рубашкой, и линию транспортировки 45. В поточном смесителе 341

композицию алкоксида алкил(замещенный циклической группой)олова, содержащую бис-(3-метилбутил)диэтоксиолова и тетракис-(3-метилбутил)диэтоксидистанноксан, смешивали со сложным эфиром 3-метилбутил-2-этилгексаноата и сложным эфиром этил-2-метилпропаноата и смесь нагревали. Корпусной реактор 340 представлял собой реактор объемом 15 л, включающий мешалку, нагревательную рубашку и насос для перемещения жидкости, и нагревательную рубашку нагревали паром для контроля смеси в реакторе приблизительно до 160°C. Сложный эфир 3-метилбутил-2-этилгексаноата и сложный эфир этил-2-метилпропаноата, предварительно перенесенные в корпусной реактор 340, подвергли реакции переэтерификации с использованием композиции в качестве катализатора, а затем перенесли в башенный реактор 350 через линию транспортировки 46 для проведения реакции. Башенный реактор SUS316 350 с внутренним диаметром 130 мм и расчетной длиной 4500 мм, оснащенный 25 ситчатыми тарелками, оснащали нагревателем, ребойлером 353 и насосом для перемещения жидкости и температуру внутри реактора контролировали приблизительно до 160°C с помощью нагревателя и ребойлера 353. С верха башенного реактора 350 фракцию, содержащую сложный эфир 3-метилбутил-2-метилпропаноата, полученную посредством реакции переэтерификации и не вступившую в реакцию со сложным эфиром этил-2-метилпропаноата, подвергли конденсации с помощью конденсатора 351 и собирали из коллекторной линии 47 в бак конденсата 352. Смесь, содержащую продукт реакции сложного эфира этил-2-этилгексаноата и не вступивший в реакцию сложный эфир 3-метилбутил-2-этилгексаноата, перенесли со дна башенного реактора 350 через линию транспортировки 48 в тонкоплочный испаритель 360 с установленной температурой 180°C и давлением приблизительно 30 кПа абс., а затем компонент с низкой температурой кипения, содержащий сложный эфир этил-2-этилгексаноата и сложный эфир 3-метилбутил-2-этилгексаноата, перенесли через линию транспортировки 49 в дистилляционную колонку 370 (колонку, заполненную наполнителем MetalGauze CY, с внутренним диаметром 83 мм, расчетной длиной 2800 мм) и очищали. В отдельности компонент с высокой температурой кипения, содержащий композицию, перенесли в бак с катализатором 330 через линию транспортировки 50, а затем подвергли циркуляции в циркуляционном реакторе непрерывного действия через линию транспортировки 54, поточный смеситель 341 и линию транспортировки 45. При необходимости, поставку из бака с исходным веществом и бака с катализатором в корпусной реактор уменьшали или прерывали для установления стабильного состояния внутри системы. Процесс продолжали и после достижения стабильного состояния внутри системы брали образец смеси со дна башенного реактора 350 и проводили количественный анализ посредством газовой хроматографии, выход сложного эфира этил-2-этилгексаноата составил 30,5%, исходя из групп сложного эфира 3-метилбутил-2-этилгексаноата. Это состояние сохранялось в течение приблизительно 15 суток, после этого снова брали образец смеси со дна башенного реактора 350 и проводили количественный анализ посредством газовой хроматографии, выход сложного эфира 2-метилпропил-2-этилгексаноата составил 29,7%.

Было возможно стабильное получение сложного эфира этил-2-этилгексаноата в собранной фракции приблизительно при 2,6 кг/ч из коллекторной линии 51 во время непрерывного процесса. Компонент с высокой температурой кипения компонент, содержащий композицию, в циркуляционном реакторе непрерывного действия после непрерывного процесса отделяли с использованием тонкоплочного испарителя 360, собирали в баке с катализатором 330 и измеряли массу. Брали образец из трубопровода отбора пара 55 бака с катализатором 330, и согласно результатам проведенной спектроскопии  $^{119}\text{Sn}$ -ЯМР бак с катализатором 330 содержал ди(циклогексилметил)-бис-(3-метилбутоксидистанноксан, 1,1,3,3-тетра(циклогексилметил)-1,3-бис-(3-метилбутоксидистанноксан, 1,1,3,3-тетра(циклогексилметил)-1,3-диэтоксидистанноксан, три(циклогексилметил)(3-метилбутоксидистанноксан)олова и три(циклогексилметил)этоксиолова. Исходя из результатов проведенного анализа, получали общее количество три(циклогексилметил)(3-метилбутоксидистанноксан)олова и три(циклогексилметил)этоксиолова, составившее 0,46 моль через 15 суток непрерывного процесса, это количество составило приблизительно 1% по отношению к числу моль атомов олова (в активном компоненте композиции, введенной в бак с катализатором 330 до начала непрерывного процесса).

Примеры 271-304.

Композиции диалкоксида ди(алкил(замещенный циклической группой)олова, перечисленные в табл. 32, полученные аналогичными способами, как в примерах синтеза 1, 4 и 7, использовали для реакции переэтерификации с помощью циркуляционного реактора непрерывного действия аналогичным способом, как в примере 269. Каждый из сложных эфиров карбоновых кислот и спиртов, используемых в качестве исходных веществ для реакции переэтерификации, перечисленных в табл. 32, вводили в бак с исходным веществом и перенесли в корпусной реактор и реакцию переэтерификации проводили диалкоксидом ди(алкил(замещенный циклической группой)олова в качестве катализатора. Скорость потока композиции, переносимой из бака с катализатором, корректировали таким образом, чтобы концентрация атомов олова в реакционной смеси в корпусном реакторе составляла от 1,5 до 2,5 мол.%, и реакцию переэтерификации проводили при температурах, перечисленных в табл. 32. В табл. 32 показан выход реакции (первоначальный выход) незамедлительно после достижения стабильного состояния и выход реакции, а также полученное количество алкоксида три(алкил(замещенный циклической группой)олова (по-

лученное количество по отношению к числу моль атомов олова (в активном компоненте), введенному в бак с катализатором до непрерывного процесса) через 15 суток непрерывного процесса.

Таблица 32

Пример	Диалкоксид диалкилолова		Исходные вещества для реакции перэтерификации		Температура [°C]	Первоначальный выход [в моль-процентах]	Выход [в моль-процентах] (через 15 суток непрерывного процесса)	Концентрация алкоксида триалкилолова [в моль-процентах] (через 15 суток непрерывного процесса) *15)
	R' (алкильная группа)	OR'' (алкокси- группа)	Сложный эфир карбоновой кислоты	Спирт				
271	Циклопентилметил	Этокси	Метил 2-этилгексаноат	Этанол	150	33,3	32,3	1,4
272	Циклогексилэтил	Этокси	Метил-2-этилгексаноат	Этанол	150	23,9	23,1	1,6
273	3-Циклопентилпропил	Этокси	Метил-2-этилгексаноат	Этанол	150	23,4	22,4	2,2
274	Бензил	Этокси	Метил-2-этилгексаноат	Этанол	150	25,6	24,9	1,4
275	Фенэтил	Этокси	Метил-2-этилгексаноат	Этанол	150	23,4	22,3	2,5
276	3-Фенилпропил	Этокси	Метил-2-этилгексаноат	Этанол	150	23,1	22,5	1,4
277	Циклопентилметил	N-бутокси	Метил-2-этилгексаноат	Этанол	150	33,0	31,8	1,9
278	Циклогексилметил	N-бутокси	Метил-2-этилгексаноат	Этанол	150	31,3	30,6	1,2
279	Циклогексилэтил	N-бутокси	Метил-2-этилгексаноат	Этанол	150	23,7	23,1	1,3
280	3-циклопентилпропил	N-бутокси	Метил-2-этилгексаноат	Этанол	150	22,5	22,2	0,7
281	Бензил	N-бутокси	Метил 2-этилгексаноат	Этанол	150	25,2	24,2	2,2
282	Фенэтил	N-бутокси	Метил 2-этилгексаноат	Этанол	150	22,9	22,3	1,5
283	3-фенилпропил	N-бутокси	Метил-2-этилгексаноат	Этанол	150	22,7	21,8	2,1
284	Циклопентилметил	2-метилпропилокси	Пропил-2-этилгексаноат	2-метил-1-пропанол	160	32,9	31,8	1,7

285	Циклогексилметил	2-метилпропилокси	Пропил-2-этилгексаноат	2-метил-1-пропанол	160	31,9	30,5	2,3
286	Циклогексилэтил	2-метилпропилокси	Пропил-2-этилгексаноат	2-метил-1-пропанол	160	23,5	23,1	0,9
287	3-циклопентилпропил	2-метилпропилокси	Пропил-2-этилгексаноат	2-метил-1-пропанол	160	22,9	21,9	2,4
288	Бензил	2-метилпропилокси	Пропил-2-этилгексаноат	2-метил-1-пропанол	160	25,4	24,8	1,2
289	Фенэтил	2-метилпропилокси	Пропил-2-этилгексаноат	2-Метил-1-пропанол	160	22,7	22,1	1,4
290	3-фенилпропил	2-метилпропилокси	Пропил-2-этилгексаноат	2-метил-1-пропанол	160	22,8	22,1	1,7
291	Циклопентилметил	3-метилбутилокси	Пропил-2-этилгексаноат	3-метил-1-бутанол	160	32,8	31,2	2,4
292	Циклогексилметил	3-метилбутилокси	Пропил-2-этилгексаноат	3-метил-1-бутанол	160	31,7	30,6	1,8
293	Циклогексилэтил	3-метилбутилокси	Пропил-2-этилгексаноат	3-метил-1-бутанол	160	23,4	22,5	2,2
294	3-циклопентилпропил	3-метилбутилокси	Пропил-2-этилгексаноат	3-метил-1-бутанол	160	23,1	22,3	1,9
295	Бензил	3-метилбутилокси	Пропил-2-этилгексаноат	3-метил-1-бутанол	160	25,2	24,5	1,5
296	Фенэтил	3-метилбутилокси	Пропил-2-этилгексаноат	3-метил-1-бутанол	160	22,8	22,1	1,7
297	3-фенилпропил	3-метилбутилокси	Пропил-2-этилгексаноат	3-метил-1-бутанол	160	22,8	21,9	2,1
298	Циклопентилметил	2-этилбутилокси	Пропил-2-этилгексаноат	3-метил-1-бутанол	160	32,7	31,6	1,9
299	Циклогексилметил	2-этилбутилокси	Пропил-2-этилгексаноат	3-метил-1-бутанол	160	31,8	30,4	2,4
300	Циклогексилэтил	2-этилбутилокси	Пропил-2-этилгексаноат	3-метил-1-бутанол	160	23,5	22,8	1,7
301	3-циклопентилпропил	2-этилбутилокси	Пропил-2-этилгексаноат	3-метил-1-бутанол	160	22,9	22,4	1,1
302	Бензил	2-этилбутилокси	Пропил 2-этилгексаноат	3-метил-1-бутанол	160	25,4	24,1	2,8
303	Фенэтил	2-этилбутилокси	Пропил 2-этилгексаноат	3-метил-1-бутанол	160	22,9	22,1	1,7
304	3-фенилпропил	2-этилбутилокси	Пропил 2-этилгексаноат	3-метил-1-бутанол	160	22,8	22,5	0,6

\*15) Полученное количество алкоксида три(алкил(замещенный циклической группой))олова рассчитывали с помощью математической формулы (10).  
[Математическая формула 50]

$$\text{Полученное количество алкоксида три (алкил (замещенный циклической группой))олова} = T / (W_1^0 \times S_1^0) \times 100\% \quad (10)$$

где "полученное количество алкоксида три(алкил(замещенный циклической группой))олова" представляет собой количество алкоксида три(алкил(замещенный циклической группой))олова, полученного [%] после непрерывного процесса;

T представляет собой число моль [моль] алкоксида три(алкил(замещенный циклической группой))олова, полученного после непрерывного процесса;

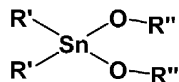
$W_1^0$  представляет собой массу [кг] композиции диалкоксида ди(алкил(замещенный циклической группой))олова, введенной в бак с катализатором до непрерывного процесса; и

$S_1^0$  представляет собой концентрацию атомов олова (в активном компоненте) [моль/кг] композиции до непрерывного процесса.



Число моль алкоксида три(алкил(замещенный циклической группой))олова Т рассчитывают, исходя из концентрации алкоксида три(алкил(замещенный циклической группой))олова, определенной с помощью спектроскопии  $^{119}\text{Sn}$ -ЯМР композиции, собранной после непрерывного процесса, и массы композиции диалкоксида ди(алкил(замещенный циклической группой))олова, собранной после непрерывного процесса.

Структурная формула диалкоксида ди(алкил(замещенный циклической группой))олова.  
[Химическая формула 102]



где R' представляет собой  $\text{C}_{3-16}$ алициклическую углеводородную группу или  $\text{C}_{6-16}$ ароматическую углеводородную группу и R'' представляет собой  $\text{C}_{1-8}$ алкильную группу.

Примеры 305-331.

Композиции диалкоксида ди(алкил(замещенный циклической группой))олова, перечисленные в табл. 33, полученные аналогичными способами, как в примерах синтеза 1, 4 и 7, использовали для реакции переэтерификации с помощью циркуляционного реактора непрерывного действия аналогичным способом, как в примере 267. Скорость потока композиции, переносимой из бака с катализатором, корректировали таким образом, чтобы концентрация атомов олова в реакционной смеси в корпусном реакторе составляла от 1,5 до 2,5 мол.%, и реакцию переэтерификации проводили при температурах, перечисленных в табл. 33, с использованием композиции в качестве катализатора. В табл. 33 показан выход реакции (первоначальный выход) незамедлительно после достижения стабильного состояния и выход реакции, а также полученное количество алкоксида (алкил(замещенный циклической группой))олова (полученное количество по отношению к числу моль атомов олова (в активном компоненте), введенному в бак с катализатором до непрерывного процесса) через 15 суток непрерывного процесса.

Таблица 33

Пример	Диалкоксид диалкилолова		Температура [°C]	Первоначальный выход [в моль- процентах]	Выход [в моль- процентах] (через 15 суток непрерывного процесса)	Полученное количество алкоксида триалкилолова [%] (через 15 суток непрерывного процесса) *16)
	R' (алкильная группа)	OR'' (алокси- группа)				
305	Циклопентилметил	Этокси	160	30,3	29,5	1,5
306	циклогексилэтил	Этокси	160	21,8	21,1	1,6
307	3- циклопентилпропил	Этокси	160	21,3	20,5	2,1
308	Бензил	Этокси	160	23,3	22,7	1,4
309	Фенэтил	Этокси	160	21,3	20,3	2,5
310	3-фенилпропил	Этокси	160	21,0	20,5	1,4
311	Циклопентилметил	N-бутокс	160	30,1	29,0	1,9
312	Циклогексилметил	N-бутокс	160	28,5	27,9	1,1
313	Циклогексилэтил	N-бутокс	160	21,6	21,1	1,3
314	3- циклопентилпропил	N-бутокс	160	20,5	20,3	0,6
315	Бензил	N-бутокс	160	23,0	22,0	2,2
316	Фенэтил	N-бутокс	160	20,9	20,3	1,5

317	3-фенилпропил	N-бутокси	160	20,7	19,9	2,1
318	Циклопентилметил	2-метилпропилокси	170	30,0	29,0	1,7
319	Циклогексилметил	2-метилпропилокси	170	29,1	27,8	2,3
320	Циклогексилэтил	2-метилпропилокси	170	21,4	21,0	0,9
321	3-циклопентилпропил	2-метилпропилокси	170	20,9	20,0	2,3
322	Бензил	2-метилпропилокси	170	23,2	22,6	1,2
323	Фенэтил	2-метилпропилокси	170	20,7	20,2	1,5
324	3-фенилпропил	2-метилпропилокси	170	20,8	20,2	1,7
325	Циклопентилметил	3-метилбутилокси	170	29,8	28,5	2,4
326	Циклогексилметил	3-метилбутилокси	170	28,9	27,9	1,8
327	Циклогексилэтил	3-метилбутилокси	170	21,4	20,5	2,2
328	3-циклопентилпропил	3-метилбутилокси	170	21,0	20,3	2,0
329	Бензил	3-метилбутилокси	170	23,0	22,3	1,5
330	Фенэтил	3-метилбутилокси	170	20,8	20,2	1,8
331	3-фенилпропил	3-метилбутилокси	170	20,8	20,0	2,0

\*16) Полученное количество алкоксида три(алкил(замещенный циклической группой))олова рассчитывали с помощью математической формулы (10).

[Математическая формула 51]

$$\text{Полученное количество алкоксида три(алкил(замещенный циклической группой))олова} = T / (W_1^0 \times S_1^0) \times 100\% \quad (10)$$

где "полученное количество алкоксида три(алкил(замещенный циклической группой))олова" представляет собой количество алкоксида три(алкил(замещенный циклической группой))олова, полученного [%] после непрерывного процесса;

T представляет собой число моль [моль] алкоксида три(алкил(замещенный циклической группой))олова, полученного после непрерывного процесса;

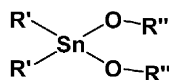
$W_1^0$  представляет собой массу [кг] композиции диалкоксида ди(алкил(замещенный циклической группой))олова, введенной в бак с катализатором до непрерывного процесса; и

$S_1^0$  представляет собой концентрацию атомов олова (в активном компоненте) [моль/кг] композиции до непрерывного процесса.

Число моль алкоксида три(алкил(замещенный циклической группой))олова T рассчитывают, исходя из концентрации алкоксида три(алкил(замещенный циклической группой))олова, определенной посредством спектроскопии  $^{119}\text{Sn}$ -ЯМР композиции, собранной после непрерывного процесса, и массы композиции диалкоксида ди(алкил(замещенный циклической группой))олова, собранной после непрерывного процесса.

Структурная формула диалкоксида ди(алкил(замещенный циклической группой))олова.

[Химическая формула 103]



где R' представляет собой  $\text{C}_{3-16}$ алициклическую углеводородную группу или  $\text{C}_{6-16}$ ароматическую углеводородную группу и R'' представляет собой  $\text{C}_{1-8}$ алкильную группу.

Примеры 332-359.

Композиции тетра(алкил(замещенный циклической группой))диалкоксидистанноксана, перечисленные в табл. 34, полученные аналогичными способами, как в примерах синтеза 2, 5 и 8, использовали в качестве катализаторов для реакции переэтерификации с помощью циркуляционного реактора непрерывного действия аналогичным способом, как в примере 270. Скорость потока композиции, переносимой из бака с катализатором, корректировали таким образом, чтобы концентрация атомов олова в реакционной смеси в трубчатом реакторе составляла от 1,5 до 2,5 мол.%, и реакцию переэтерификации проводили при температурах, перечисленных в табл. 34 В табл. 34 показан выход реакции (первоначальный выход) незамедлительно после достижения стабильного состояния и выход реакции, а также полученное количество алкоксида три(алкил(замещенный циклической группой))олова (полученное количество по отношению к числу моль атомов олова (в активном компоненте), введенному в бак с катализатором до

непрерывного процесса) через 15 суток непрерывного процесса.

Таблица 34

Пример	Тетраалкилдиалкоксидистанноксан		Температура [°C]	Первоначальный выход [в моль-процентах]	Выход [моль-процентов] (через 15 суток непрерывного процесса)	Полученное количество алкоксида триалкилолова [%] (через 15 суток непрерывного процесса) *17)
	R' (алкильная группа)	OR" (алкокси-группа)				
332	Циклопентилметил	Этокси	160	27,3	26,1	2,3
334	Циклогексилэтил	Этокси	160	19,5	18,5	2,7
335	3-циклопентилпропил	Этокси	160	19,0	18,5	1,4
336	Бензил	Этокси	160	21,0	19,9	2,9
337	Фенэтил	Этокси	160	19,0	18,5	1,4
338	3-фенилпропил	Этокси	160	18,9	18,4	1,7
339	Циклопентилметил	N-бутоксид	170	27,1	26,2	2,0
340	Циклогексилметил	N-бутоксид	170	25,7	25,3	0,7
341	Циклогексилэтил	N-бутоксид	170	19,4	18,8	1,6
342	3-Циклопентилпропил	N-бутоксид	170	18,6	18,2	1,1
343	Бензил	N-бутоксид	170	20,8	20,1	1,6
344	Фенэтил	N-бутоксид	170	18,6	18,0	1,6
345	3-фенилпропил	N-бутоксид	170	18,5	18,1	1,2
346	Циклопентилметил	2-метилпропилоксид	170	26,8	26,3	1,0
347	Циклогексилметил	2-метилпропилоксид	170	25,9	25,0	2,0
348	Циклогексилэтил	2-метилпропилоксид	170	19,3	18,6	2,1
349	3-циклопентилпропил	2-метилпропилоксид	170	18,6	17,9	2,2
350	Бензил	2-метилпропилоксид	170	20,8	19,8	2,5
351	Фенэтил	2-метилпропилоксид	170	18,6	18,1	1,4
352	3-Фенилпропил	2-метилпропилоксид	170	18,8	18,2	1,8
353	Циклопентилметил	3-метилбутилоксид	170	26,8	26,1	1,3
354	Циклогексилметил	3-метилбутилоксид	170	25,7	24,8	2,0
355	Циклогексилэтил	3-метилбутилоксид	170	19,0	18,7	0,9
356	3-циклопентилпропил	3-метилбутилоксид	170	18,7	18,3	1,3
357	Бензил	3-метилбутилоксид	170	20,6	20,4	0,5
358	Фенэтил	3-метилбутилоксид	170	18,7	18,3	1,3
359	3-фенилпропил	3-метилбутилоксид	170	18,7	18,1	1,7

\*17) Полученное количество алкоксида три(алкил(замещенный циклической группой))олова рассчитывали с помощью математической формулы (11).

[Математическая формула 52]

$$\text{Полученное количество алкоксида три(алкил(замещенный циклической группой))олова} = T / (W_2^0 \times S_2^0) \times 100\% \quad (11)$$

где "полученное количество алкоксида три(алкил(замещенный циклической группой))олова" представляет собой количество алкоксида три(алкил(замещенный циклической группой))олова, полученного [%] после непрерывного процесса;

T представляет собой общее число моль алкоксида три(алкил(замещенный циклической группой))олова [моль], полученного после непрерывного процесса;

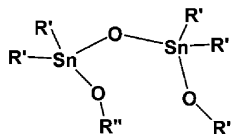
$W_2^0$  представляет собой массу [кг] композиции тетра(алкил(замещенный циклической группой))диалкоксидистанноксана, введенной в бак с катализатором до непрерывного процесса; и

$S_2^0$  представляет собой концентрацию атомов олова (в активном компоненте) [моль/кг] композиции

до непрерывного процесса.

Общее число моль алкоксида три(алкил(замещенный циклической группой))олова Т рассчитывают, исходя из каждой концентрации алкоксида три(алкил(замещенный циклической группой))олова, определенной с помощью спектроскопии  $^{119}\text{Sn}$ -ЯМР, и массы композиции тетра(алкил(замещенный циклической группой))диалкоксидистанноксана, собранной после непрерывного процесса.

Структурная формула тетра(алкил(замещенный циклической группой))диалкоксидистанноксана. [Химическая формула 104]



где R' представляет собой  $\text{C}_{3-16}$ алициклическую углеводородную группу или  $\text{C}_{6-16}$ ароматическую углеводородную группу и R'' представляет собой  $\text{C}_{1-8}$ алкильную группу.

Примеры 360-387.

Композиции алкоксида алкил(замещенный циклической группой)олова, содержащие диалкоксиды ди(алкил(замещенный циклической группой))олова и тетра(алкил(замещенный циклической группой))диалкоксидистанноксаны, перечисленные в табл. 35, полученные аналогичными способами, как в примерах синтеза 1, 2, 4, 5, 7 и 8, получали и использовали в качестве катализаторов для реакции переэтерификации с помощью циркуляционного реактора непрерывного действия аналогичным способом, как в примере 270. Композиции получали таким образом, чтобы молярное соотношение атомов олова диалкоксидов ди(алкил(замещенный циклической группой))олова и тетра(алкил(замещенный циклической группой))диалкоксидистанноксанов по отношению к числу моль атомов олова (в активном компоненте) композиций, используемых для реакции переэтерификации (атомов олова, полученных из диалкоксидов ди(алкил(замещенный циклической группой))олова и тетра(алкил(замещенный циклической группой))диалкоксидистанноксанов) составляло 65:35, и их вводили в бак с катализатором. Скорость потока композиции, переносимой из бака с катализатором, корректировали таким образом, чтобы концентрация атомов олова в корпусном реакторе составляла от 1,5 до 2,0 мол.%, и реакцию переэтерификации проводили при температурах, перечисленных в табл. 35. В табл. 35 показан выход реакции (первоначальный выход) незамедлительно после достижения стабильного состояния и выход реакции, а также полученное количество алкоксида три (алкил(замещенный циклической группой))олова (полученное количество по отношению к числу моль атомов олова (в активном компоненте), введенному в бак с катализатором до непрерывного процесса) через 15 суток непрерывного процесса.

Таблица 35

Пример	Композиция алкоксида алкилолова		Температура [°C]	Первоначальный выход [в моль-процентах]	Выход [в моль-процентах] (через 15 суток непрерывного процесса)	Полученное количество алкоксида триалкилолова [%] (через 15 суток непрерывного процесса) *18)
	R' (алкильная группа)	OR'' (алкокси-группа)				
360	Циклопентилметил	Этокси	160	29,8	29,0	1,4
362	Циклогексилэтил	Этокси	160	21,2	20,8	1,1
363	3-циклопентилпропил	Этокси	160	20,9	20,1	2,0
364	Бензил	Этокси	160	22,7	22,2	1,2
365	Фенэтил	Этокси	160	20,9	20,4	1,2
366	3-фенилпропил	Этокси	160	20,7	20,1	1,4
367	Циклопентилметил	N-бутокс	160	29,5	28,2	2,4
368	Циклогексилметил	N-бутокс	160	29,0	27,1	3,6
369	Циклогексилэтил	N-бутокс	160	21,4	20,6	1,9
370	3-циклопентилпропил	N-бутокс	160	21,0	19,4	4,1
371	Бензил	N-бутокс	160	22,9	22,2	1,5
372	Фенэтил	N-бутокс	160	20,9	19,7	3,2
373	3-фенилпропил	N-бутокс	160	20,7	19,6	2,8
374	Циклопентилметил	2-метилпропилокси	170	29,5	28,1	2,4
375	Циклогексилметил	2-метилпропилокси	170	28,5	28,0	0,9
376	Циклогексилэтил	2-метилпропилокси	170	21,2	20,1	2,8
377	3-циклопентилпропил	2-метилпропилокси	170	20,1	19,7	1,0
378	Бензил	2-метилпропилокси	170	22,6	22,3	0,8
379	Фенэтил	2-метилпропилокси	170	20,5	19,4	2,8
380	3-фенилпропил	2-метилпропилокси	170	20,3	19,5	2,1
381	Циклопентилметил	3-метилбутилокси	170	29,3	28,6	1,3
382	Циклогексилметил	3-метилбутилокси	170	28,7	27,5	2,2
383	Циклогексилэтил	3-метилбутилокси	170	21,1	20,5	1,4
384	3-циклопентилпропил	3-метилбутилокси	170	20,3	19,7	1,7
385	Бензил	3-метилбутилокси	170	22,6	21,7	2,1
386	Фенэтил	3-метилбутилокси	170	20,3	19,8	1,2
387	3-фенилпропил	3-метилбутилокси	170	20,3	19,9	1,0

\*18) Полученное количество алкоксида три(алкил(замещенный циклической группой))олова рассчитывали с помощью математической формулы (12).

[Математическая формула 53]

$$\text{Полученное количество алкоксида три (алкил (замещенный циклической группой))олова} = T / (W_3^0 \times S_3^0) \times 100\% \quad (12)$$

где "полученное количество алкоксида три(алкил(замещенный циклической группой))олова" представляет собой количество алкоксида три(алкил(замещенный циклической группой))олова, полученного [%] после непрерывного процесса;

T представляет собой общее число моль [моль] алкоксида три(алкил(замещенный циклической группой))олова, полученного после непрерывного процесса;

$W_3^0$  представляет собой массу [кг] композиции алкоксида алкил(замещенный циклической группой))олова, введенной в бак с катализатором до непрерывного процесса; и

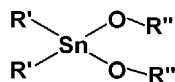
$S_3^0$  представляет собой концентрацию атомоволова (в активном компоненте) [моль/кг] композиции до непрерывного процесса (рассчитанную, исходя из концентрации тетра(алкил(замещенный циклической группой))диалкоксидистанноксана и концентрации диалкоксида ди(алкил(замещенный цикличе-

ской группой))олова композиции).

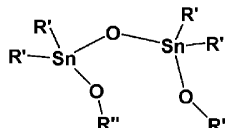
Общее число моль алкоксида три(алкил(замещенный циклической группой))олова Т рассчитывают, исходя из каждой концентрации алкоксида три(алкил(замещенный циклической группой))олова, определенной с помощью спектроскопии  $^{119}\text{Sn}$ -ЯМР, и массы композиции алкоксида алкил(замещенный циклической группой))олова, собранной после непрерывного процесса.

Структурные формулы диалкоксида ди(алкил(замещенный циклической группой))олова и тетра(алкил(замещенный циклической группой))диалкоксидистанноксана в композиции алкоксида алкил(замещенный циклической группой))олова.

[Химическая формула 105]



[Химическая формула 106]



где R' представляет собой  $\text{C}_{3-16}$ алициклическую углеводородную группу или  $\text{C}_{6-16}$ ароматическую углеводородную группу и R'' представляет собой  $\text{C}_{1-8}$ алкильную группу.

Примеры 388-415.

Композиции алкоксид алкил(замещенный циклической группой)олова, содержащие диалкоксиды ди(алкил(замещенный циклической группой)олова, тетра(алкил(замещенный циклической группой))диалкоксидистанноксаны и алкоксиды три(алкил(замещенный циклической группой))олова, перечисленные в табл. 36, полученные аналогичными способами, как в примерах синтеза 3, 6 и 9, использовали в качестве катализаторов для реакции переэтерификации с помощью циркуляционного реактора непрерывного действия аналогичным способом, как в примере 269. Концентрацию атомов олова (в активном компоненте) каждой композиции рассчитывали, исходя из концентрации диалкоксида ди(алкил(замещенный циклической группой))олова и концентрации тетра(алкил(замещенный циклической группой))диалкоксидистанноксана композиции. Скорость потока композиции, переносимой из бака с катализатором, корректировали таким образом, чтобы концентрация атомов олова в корпусном реакторе составляла от 1,5 до 2,0 мол.%, и реакцию переэтерификации проводили при температурах, перечисленных в табл. 36. В табл. 36 показан выход реакции (первоначальный выход) незамедлительно после достижения стабильного состояния и выход реакции, а также полученное количество алкоксида три(алкил(замещенный циклической группой))олова (полученное количество по отношению к числу моль атомов олова (в активном компоненте), введенному в бак с катализатором до непрерывного процесса) через 15 суток непрерывного процесса.

Таблица 36

Пример	Композиция алкоксида алкилолова		Температура [°C]	Выход [в моль-процентах]	Выход [в моль-процентах] (через 15 суток непрерывного процесса)	Полученное количество алкоксида триалкилолова [%] (через 15 суток непрерывного процесса) *19)
	R' (алкильная группа)	OR" (алокси-группа)				
388	Циклопентилметил	Этоксид	170	26,3	25,6	1,5
389	Циклогексилметил	Этоксид	170	25,2	24,9	0,8
390	Циклогексилэтил	Этоксид	170	18,7	18,3	1,2
391	3-циклопентилпропил	Этоксид	170	18,2	17,7	1,4
392	Бензил	Этоксид	170	20,2	19,7	1,5
393	Фенэтил	Этоксид	170	18,1	17,7	1,2
394	3-фенилпропил	Этоксид	170	18,3	17,5	2,4
395	Циклопентилметил	N-бутоксид	170	26,4	25,2	2,4
396	Циклогексилметил	N-бутоксид	170	25,4	24,9	1,0
397	Циклогексилэтил	N-бутоксид	170	18,7	18,4	0,8
398	3-циклопентилпропил	N-бутоксид	170	18,2	17,5	2,0
399	Бензил	N-бутоксид	170	20,1	19,7	1,1
400	Фенэтил	N-бутоксид	170	18,2	17,6	1,5
401	3-фенилпропил	N-бутоксид	170	18,1	17,8	1,1
402	Циклопентилметил	2-метилпропилоксид	170	26,7	26,4	0,7
403	Циклогексилметил	2-метилпропилоксид	170	26,6	24,6	4,1
404	циклогексилэтил	2-метилпропилоксид	170	19,5	18,6	2,3
405	3-циклопентилпропил	2-метилпропилоксид	170	19,1	18,1	2,8
406	Бензил	2-метилпропилоксид	170	20,9	20,3	1,7
407	Фенэтил	2-метилпропилоксид	170	19,0	18,3	2,0
408	3-фенилпропил	2-метилпропилоксид	170	18,8	18,1	1,9
409	Циклопентилметил	3-метилбутилоксид	170	26,7	25,4	2,6
410	Циклогексилметил	3-метилбутилоксид	170	26,0	25,4	1,1
411	Циклогексилэтил	3-метилбутилоксид	170	19,2	18,4	2,4
412	3-циклопентилпропил	3-метилбутилоксид	170	18,4	18,0	1,1
413	Бензил	3-метилбутилоксид	170	20,7	19,6	2,9
414	Фенэтил	3-метилбутилоксид	170	18,8	18,0	2,2
415	3-фенилпропил	3-метилбутилоксид	170	18,5	17,9	1,8

\*19) Полученное количество алкоксида три(алкил(замещенный циклической группой))олова рассчитывали с помощью математической формулы (12).

[Математическая формула 54]

$$\text{Полученное количество алкоксида три(алкил(замещенный циклической группой))олова} = T / (W_3^0 \times S_3^0) \times 100\% \quad (12)$$

где "полученное количество алкоксида три(алкил(замещенный циклической группой))олова" представляет собой количество алкоксида три(алкил(замещенный циклической группой))олова, полученного [%] после непрерывного процесса;

T представляет собой общее число моль [моль] алкоксида три(алкил(замещенный циклической группой))олова, полученного после непрерывного процесса;

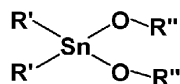
$W_3^0$  представляет собой массу [кг] композиции алкоксида алкил(замещенный циклической группой))олова, введенной в бак с катализатором до непрерывного процесса; и

$S_3^0$  представляет собой концентрацию атомов олова (в активном компоненте) [моль/кг] композиции до непрерывного процесса (рассчитанную концентрацию тетра(алкил(замещенный циклической группой))диалкоксидистанноксана и концентрацию диалкоксида ди(алкил(замещенный циклической группой))олова композиции).

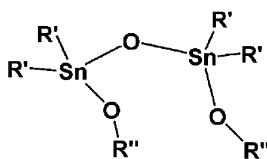
Общее число моль алкоксида три(алкил(замещенный циклической группой))олова T рассчитывают, исходя из каждой концентрации алкоксида три(алкил(замещенный циклической группой))олова, определенной с помощью спектроскопии  $^{119}\text{Sn}$ -ЯМР, и массы композиции алкоксида алкил(замещенный циклической группой))олова, собранной после непрерывного процесса.

Структурные формулы диалкоксида ди(алкил(замещенный циклической группой))олова, тетра(алкил(замещенный циклической группой))диалкоксидистанноксана и алкоксида три(алкил(замещенный циклической группой))олова в композиции алкоксида алкил(замещенный циклической группой))олова.

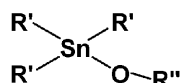
[Химическая формула 107]



[Химическая формула 108]



[Химическая формула 109]



где R' представляет собой C<sub>3-16</sub>алициклическую углеводородную группу или C<sub>6-16</sub>ароматическую углеводородную группу и R'' представляет собой C<sub>1-8</sub>алкильную группу.

Пример 416.

Циркуляционный реактор непрерывного действия, включающий корпусной реактор и башенный реактор, как показано на фиг. 4, использовали для синтеза сложного эфира угольной кислоты. Приблизительно 30 кг композиции 1,1,3,3-тетрабензил-1,3-бис-(3-метилбутилокси)дистанноксана, полученной посредством способа примера синтеза 5 (с концентрацией атомов олова (в активном компоненте) композиции: 2,49 моль/кг), вводили в бак с катализатором 660 SUS316, оснащенный нагревательной рубашкой и насосом для перемещения жидкости, через линию поставки 78. Бак с катализатором 660 нагревали паром для сохранения реологического свойства содержимого. Бак и трубы также обогревали паром для сохранения реологического свойства. Башенный реактор SUS316 620 с внутренним диаметром 76 мм и расчетной длиной 4500 мм, оснащенный 30 ситчатыми тарелками, нагревали и теплоизолировали с помощью обогревателя для предотвращения потери излучаемого тепла, обогреватель установили на уровне приблизительно 150°C. Насос для перемещения жидкости и ребойлер 622 поместили на дно башенного реактора 620 и ребойлер 622 нагревали паром от 155 до 160°C.

Композицию переносили в башенный реактор 620 из бака с катализатором 660 через линию транспортировки 74, поточный смеситель 621, оснащенный нагревательной рубашкой, и линию транспортировки 65 при 6,5 кг/ч и 3-метил-1-бутиловый спирт, очищенный на дистилляционной колонке 610, переносили при 25 кг/ч через линию транспортировки 63 и линию транспортировки 64. Фракцию, содержащую воду и 3-метил-1-бутиловый спирт, переносили с верха башенного реактора 620 в дистилляционную колонку 610 (дистилляционную колонку, заполненную наполнителем MetalGauze CY, с внутренним диаметром 83 мм, расчетной длиной 3000 мм) через линию транспортировки 66 приблизительно при 22 кг/ч и воду отделяли. Воду собирали из коллекторной линии 62 посредством конденсатора 611. Композицию алкоксида алкил(замещенный циклической группой)олова, содержащую дибензил-бис-(3-метилбутокси)олова и 1,1,3,3-тетрабензил-1,3-бис-(3-метилбутилокси)дистанноксан, получали со дна башенного реактора, и согласно результатам проведенного анализа образца композиции, взятого из линии транспортировки 67, содержание дибензил-бис-(3-метилбутокси)олова составляло 78% по массе.

Стадия (1). Получение сложного эфира угольной кислоты из реакции композиции алкоксида алкил(замещенный циклической группой)олова с диоксидом углерода.

Композицию алкоксида алкил(замещенный циклической группой)олова, содержащую дибензил-бис-(3-метилбутокси)олова и 1,1,3,3-тетрабензил-1,3-бис-(3-метилбутилокси)дистанноксан, переносили в автоклав 630 объемом 15 л, оснащенный нагревательной рубашкой и насосом для перемещения жидкости, через линию транспортировки 67 и подвергали реакции с диоксидом углерода, снабженным через линию поставки 68, при температуре 120°C и давлении 4 мПа-Г. Образец реакционной смеси, взятый из автоклава, был прозрачный, и согласно результатам проведенного анализа реакционной смеси выход бис-(3-метилбутил) карбоната составил 37%, исходя из дибензил-бис-(3-метилбутокси)олова.

Стадия (2). Отделение сложного эфира угольной кислоты от реакционной смеси для получения остаточного раствора.

Тонкопленочный испаритель 640 и тонкопленочный испаритель 650, оснащенный нагревательной рубашкой и насосом для перемещения жидкости, для переноса компонента с высокой температурой кипения нагревали паром при 150°C. Реакционную смесь, полученную на стадии (1), переносили через линию транспортировки 71 в тонкопленочный испаритель 640 с установленным давлением 26 кПа абс. и сначала избыток диоксида углерода отделяли и собирали из линии продувки 70. Реакционную смесь переносили через линию транспортировки 71 в тонкопленочный испаритель 650 с предварительно установленным давлением 1,3 кПа абс., фракцию, содержащую бис-(3-метилбутил)карбонат, собирали через линию транспортировки 72 и бис-(3-метилбутил)карбонат дополнительно очищали посредством дистилляционной колонки 670 (дистилляционной колонки, заполненной наполнителем MetalGauze CY, с внутрен-



ним диаметром 83 мм, расчетной длиной 2800 мм). В отдельности остаточный раствор, содержащий 1,1,3,3-тетрабензил-1,3-бис-(3-метилбутилокси)дистанноксан, собирали из линии транспортировки 73 и переносили в бак с катализатором 660.

Стадия (3). Получение алкоксида алкил(замещенный циклической группой)олова из реакции остаточного раствора со спиртом.

Остаточный раствор, полученный на стадии (2), снова переносили в башенный реактор 620 через линию транспортировки 74, поточный смеситель 621 и линию транспортировки 65 и подвергали реакции с 3-метил-1-бутиловым спиртом, перенесенным через линию транспортировки 63 и линию транспортировки 64. Фракцию, содержащую воду и 3-метил-1-бутиловый спирт, переносили с верха башенного реактора 620 в дистилляционную колонку 610 через линию транспортировки 66 приблизительно при 22 кг/ч и воду отделяли. Воду собирали из коллекторной линии 62 посредством конденсатора 611. Композицию алкоксида алкил(замещенный циклической группой)олова, содержащую дибензил-бис-(3-метилбутокси)олова и 1,1,3,3-тетрабензил-1,3-бис-(3-метилбутилокси)дистанноксан, получали со дна башенного реактора 620, и согласно результатам анализа образца композиции, взятого из линии транспортировки 67, содержание дибензил-бис-(3-метилбутокси)олова составило 77% по массе.

При необходимости, поставку из линии транспортировки 63 и линии транспортировки 65 в башенный реактор 620 уменьшали или прерывали для установления стабильного состояния внутри системы. Вышеуказанные стадии (1), (2) и (3) проводили непрерывно и после достижения стабильного состояния системы продолжали проведение стадий в течение 15 суток. Согласно результатам проведенного далее анализа образца реакционной смеси, взятого из автоклава 630, выход бис-(3-метилбутил)карбонат составил 37%, исходя из дибензил-бис-(3-метилбутокси)олова. В течение непрерывного процесса бис-(3-метилбутил)карбонат стабильно получали из коллекторной линии 76 приблизительно при 0,9 кг/ч. Компонент с высокой температурой кипения, включающий композицию алкоксида алкил(замещенный циклической группой)олова, в циркуляционном реакторе непрерывного действия после непрерывного процесса разделяли с использованием тонкопленочного испарителя 640 и тонкопленочного испарителя 650 и собирали в баке с катализатором 660.

Затем отбирали образец композиций в баке с катализатором 660 из трубопровода отбора пара 79, и согласно результатам спектроскопии  $^{119}\text{Sn}$ -ЯМР, было выявлено присутствие дибензил-бис-(3-метилбутокси)олова, 1,1,3,3-тетрабензил-1,3-бис-(3-метилбутилокси)дистанноксана и трибензил-(3-метилбутокси)олова после непрерывного процесса. Исходя из результатов проведенного анализа, получали приблизительно 0,75 моль трибензил-(3-метилбутокси)олова через 15 суток непрерывного процесса, количество, составляющее приблизительно 1,0% по отношению к числу моль атомов олова (в активном компоненте) композиции, введенной в бак с катализатором до непрерывного процесса.

Пример 417.

Циркуляционный реактор непрерывного действия, включающий корпусной реактор и башенный реактор, как показано на фиг. 5, использовали для синтеза сложного эфира угольной кислоты. Приблизительно 35 кг композиции 1,1,3,3-тетра(циклогексилметил)-1,3-бис-(3-метилбутокси)дистанноксана, полученной аналогичным способом, как в примере синтеза 2 (с концентрацией атомов олова (в активном компоненте) композиции: 2,41 моль/кг), вводили в бак с катализатором SUS316 770, оснащенный нагревательной рубашкой и насосом для перемещения жидкости, через линию поставки 107. Бак с катализатором 770 нагревали паром для сохранения реологического свойства содержимого. Бак и трубы также обогревали паром для сохранения реологического свойства.

Корпусной реактор 710 представлял собой реактор объемом 10 л, оснащенный нагревательной рубашкой и насосом для перемещения жидкости, композицию переносили в корпусной реактор 710 через линию транспортировки 109, поточный смеситель 711 и линию транспортировки 110 при 6,7 кг/ч и 3-метил-1-бутиловый спирт, очищенный на дистилляционной колонке 720, переносили при 28 кг/ч через линию транспортировки 93, сборный бак 724, линию транспортировки 94, поточный смеситель 711 и линию транспортировки 110. Реакционную смесь переносили с верха корпусного реактора 710 через линию транспортировки 95 в башенный реактор 730 и дополнительно подвергали реакции при одномоментной отгонке фракции, содержащей воду и 3-метил-1-бутиловый спирт на верху башенного реактора. Фракцию переносили через линию транспортировки 96 в дистилляционную колонку 720 (дистилляционную колонку, заполненную наполнителем MetalGauze CY, с внутренним диаметром 83 мм, расчетной длиной 3000 мм) приблизительно при 26 кг/ч и воду и 3-метил-1-бутиловый спирт отделяли. Воду собирали из коллекторной линии 92 посредством конденсатора 721. Композицию алкоксида алкил(замещенный циклической группой)олова, содержащую ди(циклогексилметил)-бис-(3-метилбутокси)олова и 1,1,3,3-тетра(циклогексилметил)-1,3-бис-(3-метилбутокси)дистанноксан, получали с верха башенного реактора 730, и согласно результатам анализа образца композиции, взятого из линии транспортировки 97, содержание ди(циклогексилметил)-бис-(3-метилбутокси)олова составило приблизительно 80% по массе.

Стадия (1). Получение сложного эфира угольной кислоты из реакции композиции алкоксида алкил(замещенный циклической группой)олова с диоксидом углерода.

Композицию алкоксида алкил(замещенный циклической группой)олова, содержащую

ди(циклогексилметил)-бис-(3-метилбутокс)олова и 1,1,3,3-тетра(циклогексилметил)-1,3-бис-(3-метилбутокс)дистанноксан, переносили в автоклав 740 объемом 15 л, оснащенный нагревательной рубашкой и насосом для перемещения жидкости, через линию транспортировки 97 и подвергали реакции с диоксидом углерода, снабженным через линию поставки 98, при температуре 140°C и давлении 4 мПа·Г. Образец реакционной смеси, взятый из автоклава 740, был прозрачный, и согласно результатам проведенного анализа реакционной смеси выход бис-(3-метилбутил)карбоната составил 41%, исходя из ди(циклогексилметил)-бис-(3-метилбутокс)олова.

Стадия (2). Отделение сложного эфира угольной кислоты от реакционной смеси для получения остаточного раствора.

Тонкоплочные испарители 750 и 760, оснащенные нагревательной рубашкой и насосом для перемещения жидкости для переноса компонента с высокой температурой кипения, нагревали паром при 140°C. Реакционную смесь, полученную на стадии (1), переносили через линию транспортировки 99 в тонкоплочный испаритель 750 с установленным давлением 26 кПа абс. и сначала избыток диоксида углерода отделяли и собирали из линии продувки 100. Реакционную смесь переносили через линию транспортировки 101 в тонкоплочный испаритель 760 с предварительно установленным давлением 2,6 кПа абс., фракцию, содержащую дибутилкарбонат, собирали через линию транспортировки 102 и дибутилкарбонат дополнительно очищали посредством дистилляционной колонки 780 (дистилляционной колонки, заполненной наполнителем MetalGauze CY, с внутренним диаметром 83 мм, расчетной длиной 2800 мм). В отдельности остаточный раствор, содержащий 1,1,3,3-тетра(циклогексилметил)-1,3-бис-(3-метилбутокс)дистанноксан, собирали из линии транспортировки 103 и переносили в бак с катализатором 770.

Стадия (3). Получение алкоксида алкил(замещенный циклической группой)олова из реакции остаточного раствора со спиртом.

Остаточный раствор, полученный на стадии (2), снова переносили в корпусной реактор 710 через линию транспортировки 109 при 6,5 кг/ч и подвергали реакции с н-бутиловым спиртом, перенесенным через линию транспортировки 94, поточный смеситель 711 и линию транспортировки 110.

Реакционную смесь переносили с верха корпусного реактора 710 через линию транспортировки 95 в башенный реактор 730 и дополнительно подвергали реакции при одномоментной отгонке фракции, содержащей воду и н-бутиловый спирт наверху башенного реактора. Фракцию переносили в дистилляционную колонку 720 через линию транспортировки 96 приблизительно при 28 кг/ч и воду и н-бутиловый спирт отделяли. Воду собирали из коллекторной линии 92 посредством конденсатора 721. Композицию алкоксида алкил(замещенный циклической группой)олова, содержащую ди(циклогексилметил)-бис-(3-метилбутокс)олова и 1,1,3,3-тетра(циклогексилметил)-1,3-бис-(3-метилбутокс)дистанноксан, получали с верха башенного реактора 730, и согласно результатам анализа образца композиции, взятого из линии транспортировки 97, содержание ди(циклогексилметил)-бис-(3-метилбутокс)олова составило приблизительно 80% по массе.

При необходимости, поставку из линии транспортировки 109 и линии транспортировки 94 в корпусной реактор 710 уменьшали или прерывали для установления стабильного состояния внутри системы. Вышеуказанные стадии (1), (2) и (3) проводили непрерывно и после достижения стабильного состояния системы продолжали проведение стадий в течение 15 суток. Согласно проведенному далее анализу образца реакционной смеси, взятого из автоклава 740, выход бис-(3-метилбутил)карбоната составил 41%, исходя из ди(циклогексилметил)-бис-(3-метилбутокс)олова. Кроме того, бис-(3-метилбутил)карбонат стабильно получали из коллекторной линии 105 приблизительно при 0,9 кг/ч. Компонент с высокой температурой кипения, включающий композицию алкоксида алкил(замещенный циклической группой)олова, в циркуляционном реакторе непрерывного действия после непрерывного процесса отделяли с использованием тонкоплочного испарителя 750 и тонкоплочного испарителя 760 и собирали в бак с катализатором 770. Затем из трубопровода отбора пара 108 брали образец композиции алкоксида алкилолова в баке с катализатором 770, и согласно результатам проведенной спектроскопии <sup>119</sup>Sn-ЯМР подтвердилось присутствие ди(циклогексилметил)-бис-(3-метилбутокс)олова, 1,1,3,3-тетра(циклогексилметил)-1,3-бис-(3-метилбутокс)дистанноксана и три(циклогексилметил)-(3-метилбутокс)олова после непрерывного процесса. Исходя из результатов анализа, три(циклогексилметил)-(3-метилбутокс)олова получали приблизительно при 0,87 моль через 15 суток непрерывного процесса, количество составило приблизительно 1,2% по отношению к числу моль атомов олова (в активном компоненте) композиции, введенной в бак с катализатором до непрерывного процесса.

Примеры 418-431.

Синтез сложного эфира угольной кислоты проводили с помощью циркуляционного реактора непрерывного действия аналогичным способом, как в примере 416. Композиции тетра(алкил(замещенный циклической группой))диалкоксидистанноксана, перечисленные в табл. 37, получали аналогичными способами получения, как в примерах синтеза 2, 5 и 8, и приблизительно 30 кг каждой вводили в бак с катализатором. Спирт с аналогичной алкоксигруппой в качестве алкоксигруппы тетра(алкил(замещенный циклической группой))диалкоксидистанноксана использовали для синтеза сложного эфира угольной ки-

слоты с помощью автоклава 630 при условиях температуры и давления, перечисленных в табл. 37. Стадии (1)-(3) непрерывно проводили в течение 15 суток аналогичным образом, как в примере 416. В табл. 37 показан первоначальный выход сложного эфира угольной кислоты незамедлительно после достижения стабильного состояния, выход сложного эфира угольной кислоты и полученное количество алкоксида три(алкил(замещенный циклической группой))олова (полученное количество по отношению к числу моль атомов олова (в активном компоненте)композиции, введенной в бак с катализатором до непрерывного процесса), через 15 суток непрерывного процесса.

Таблица 37

Пример	Тетраалкилдиалкоксидистанноксан		Температура [°C]	Давление CO <sub>2</sub> [МПа-Г]	Первоначальный выход сложного эфира угольной кислоты [в моль-процентах]	Выход сложного эфира угольной кислоты [в моль-процентах] (через 15 суток непрерывного процесса)	Полученное количество алкоксида триалкилолова [%] (через 15 суток непрерывного процесса) *20)
	R' (алкильная группа)	OR'' (алкокси- группа)					
418	Циклопентилметил	N-бутокси	125	4	40,3	39,6	0,7
419	Циклогексилметил	N-бутокси	125	4	41,7	40,5	0,8
420	Циклогексилэтил	N-бутокси	125	4	42,6	41,6	0,9
421	3-циклопентилпропил	N-бутокси	125	4	42,7	41,5	1,1
422	Бензил	N-бутокси	125	4	41,7	41,1	0,9
423	Фенэтил	N-бутокси	125	4	40,1	39,1	1,0
424	3-фенилпропил	N-бутокси	125	4	39,9	39,0	1,2
425	Циклопентилметил	2-метилпропилокси	110	4,5	39,3	38,7	0,5
426	Циклогексилметил	2-метилпропилокси	110	4,5	40,0	39,0	0,5
427	Циклогексилэтил	2-метилпропилокси	110	4,5	40,8	40,0	0,6
428	3-циклопентилпропил	2-метилпропилокси	110	4,5	40,7	40,2	0,8
429	Бензил	2-метилпропилокси	110	4,5	40,1	39,2	0,6
430	Фенэтил	2-метилпропилокси	110	4,5	40,8	40,0	0,7
431	3-фенилпропил	2-метилпропилокси	110	4,5	41,0	40,2	0,8

\*20) Полученное количество алкоксида три(алкил(замещенный циклической группой))олова рассчитывали с помощью математической формулы (11).

[Математическая формула 55]

$$\text{Полученное количество алкоксида три (алкил (замещенный циклической группой))олова} = T / (W_2^0 \times S_2^0) \times 100\% \quad (11)$$

где "полученное количество алкоксида три (алкил(замещенный циклической группой))олова" представляет собой количество алкоксида три(алкил(замещенный циклической группой))олова, полученного [%] после непрерывного процесса;

T представляет собой число моль алкоксида три(алкил(замещенный циклической группой))олова [моль], полученного после непрерывного процесса;

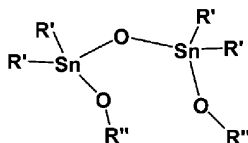
$W_2^0$  представляет собой массу [кг] композиции тетра(алкил(замещенный циклической группой))диалкоксидистанноксана, введенной в бак с катализатором до непрерывного процесса; и

$S_2^0$  представляет собой концентрацию атомов олова (в активном компоненте) [моль/кг] композиции до непрерывного процесса.

Число моль алкоксида три(алкил(замещенный циклической группой))олова T рассчитывают, исходя из концентрации алкоксида три(алкил(замещенный циклической группой))олова, определенной с помо-

щью спектроскопии  $^{119}\text{Sn}$ -ЯМР, и массы композиции, собранной после непрерывного процесса.

Структурная формула тетра(алкил(замещенный циклической группой))диалкоксидистанноксана.  
[Химическая формула 110]



где R' представляет собой  $\text{C}_{3-16}$ алициклическую углеводородную группу или  $\text{C}_{6-16}$ ароматическую углеводородную группу и R'' представляет собой  $\text{C}_{1-8}$ алкильную группу.

Примеры 432-443.

Синтез сложного эфира угольной кислоты проводили с помощью циркуляционного реактора непрерывного действия аналогичным способом, как в примере 417. Композиции тетра(алкил(замещенный циклической группой))диалкоксидистанноксана, перечисленные в табл. 38, получали аналогичными способами получения, как в примерах синтеза 2, 5 и 8, и приблизительно 35 кг каждой вводили в бак с катализатором. Спирт с аналогичной алкоксигруппой в качестве алкоксигруппы композиции тетра(алкил(замещенный циклической группой))диалкоксидистанноксана использовали для синтеза сложного эфира угольной кислоты и стадии (1)-(3) проводили непрерывно в течение 15 суток аналогичным образом, как в примере 417. В табл. 38 показан первоначальный выход сложного эфира угольной кислоты незамедлительно после достижения стабильного состояния, выход сложного эфира угольной кислоты и полученное количество алкоксида три(алкил(замещенный циклической группой))олова (полученное количество по отношению к числу моль атомов олова (в активном компоненте)композиции, введенной в бак с катализатором до непрерывного процесса), через 15 суток непрерывного процесса.

Таблица 38

Пример	Тетраалкилдиалкоксидистанноксан		Температура [°C]	Давление $\text{CO}_2$ [МПа-Г]	Первоначальный выход сложного эфира угольной кислоты [в моль-процентах]	Выход сложного эфира угольной кислоты [в моль-процентах] (через 15 суток непрерывного процесса)	Полученное количество алкоксида триалкилолова [%] (через 15 суток непрерывного процесса) *21)
	R' (алициклическая группа)	OR'' (алкокси- группа)					
32	Циклопентилметил	3-метилбутилокси	120	4	40,1	39,0	0,7
33	Циклогексилэтил	3-метилбутилокси	120	4	41,7	40,7	0,9
34	3-циклопентилпропил	3-метилбутилокси	120	4	41,4	40,6	1,1
35	Фенэтил	3-метилбутилокси	120	4	42,1	41,1	1,0
36	3-фенилпропил	3-метилбутилокси	120	4	40,6	39,6	1,1
37	Циклопентилметил	2-этилбутилокси	105	4,5	38,6	37,6	0,7
38	Циклогексилметил	2-этилбутилокси	105	4,5	37,8	37,3	0,7
39	Циклогексилэтил	2-этилбутилокси	105	4,5	39,8	38,6	0,9
	3-	2-	105	4,5	39,6	38,8	1,0
40	циклопентилпропил	этилбутилокси					
41	Бензил	2-этилбутилокси	105	4,5	38,4	37,6	0,9
42	Фенэтил	2-этилбутилокси	105	4,5	38,8	37,6	1,0
43	3-фенилпропил	2-этилбутилокси	105	4,5	39,7	38,8	1,2

\*21) Полученное количество алкоксида три(алкил(замещенный циклической группой))олова рассчитывали с помощью математической формулы (11).

## [Математическая формула 56]

$$\text{Полученное количество алкоксида три(алкил(замещенный циклической группой))олова} = T / (W_2^0 \times S_2^0) \times 100\% \quad (11)$$

где "полученное количество алкоксида три(алкил(замещенный циклической группой))олова" представляет собой количество алкоксида три(алкил(замещенный циклической группой))олова, полученного [%] после непрерывного процесса;

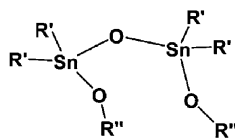
T представляет собой число моль алкоксида три(алкил(замещенный циклической группой))олова [моль], полученного после непрерывного процесса;

$W_2^0$  представляет собой массу [кг] композиции тетра(алкил(замещенный циклической группой))диалкоксидистанноксана, введенной в бак с катализатором до непрерывного процесса; и

$S_2^0$  представляет собой концентрацию атомов олова (в активном компоненте) [моль/кг] композиции до непрерывного процесса.

Число моль алкоксида три(алкил(замещенный циклической группой))олова T рассчитывают, исходя из концентрации алкоксида три(алкил(замещенный циклической группой))олова, определенной с помощью спектроскопии  $^{119}\text{Sn}$ -ЯМР, и массы композиции, собранной после непрерывного процесса.

Структурная формула тетра(алкил(замещенный циклической группой))диалкоксидистанноксана. [Химическая формула 111]



где R' представляет собой  $\text{C}_{3-16}$ алициклическую углеводородную группу или  $\text{C}_{6-16}$ ароматическую углеводородную группу и R'' представляет собой  $\text{C}_{1-8}$ алкильную группу.

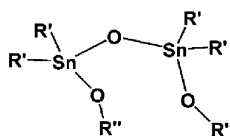
Сравнительные примеры 1-8.

Композиции тетраалкилдиалкоксидистанноксана со структурами, перечисленными в табл. 39, синтезировали аналогичным способом, как в примере синтеза 10. Затем композиции тетраалкилдиалкоксидистанноксана использовали для пробного испытания в циркуляционном реакторе непрерывного действия аналогичным способом, как в примере 3. Композицию тетраалкилдиалкоксидистанноксана помещали в бак с катализатором циркуляционного реактора непрерывного действия, показанного на фиг. 3, и проводили циркуляционный процесс. В табл. 39 показан процент снижения концентрации атомов олова композиций после циркуляционного процесса и полученное количество алкоксида три(алкил(замещенный циклической группой))олова (полученное количество по отношению к концентрации атомов олова композиций тетраалкилдиалкоксидистанноксана, введенных в бак с катализатором до непрерывного процесса).

Таблица 39

Сравнительный пример	Алкоксид алкилолова		Непрерывное время [в сутках]	Процент снижения концентрации атомов олова композиции тетраалкилдиалкоксидистанноксана [%]	Полученное количество алкоксида триалкилолова [в моль-процентах]
	R' (алкильная группа)	OR'' (алкоксигруппа)			
1	Метил	Этокси	2	95	47
2	Фенил	Этокси	3	82	41
3	N-бутил	Этокси	5	35	19
4	N-октил	Этокси	5	23	12
5	Метил	2-метилпропилокси	3	90	44
6	Фенил	2-метилпропилокси	3	76	39
7	N-бутил	2-метилпропилокси	5	30	15
8	N-октил	2-метилпропилокси	5	21	10

Структурная формула тетраалкилдиалкоксидистанноксана.  
[Химическая формула 112]



где R' представляет собой C<sub>1-8</sub>алкильную или фенильную группу и R'' представляет собой C<sub>1-8</sub>алкильную группу.

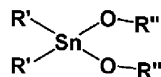
Сравнительные примеры 9-16.

Композиции диалкоксида ди(алкил(замещенный циклической группой))олова со структурами, перечисленными в табл. 40, синтезировали аналогичным способом, как в примере синтеза 11. Затем композиции диалкоксида ди(алкил(замещенный циклической группой))олова использовали для пробного испытания циркуляционного реактора непрерывного действия аналогичным способом, как в примере 2. Каждую композицию диалкоксида ди(алкил(замещенный циклической группой))олова вводили в бак с катализатором циркуляционного реактора непрерывного действия, показанного на фиг. 2 для циркуляционного процесса. В табл. 40 показан процент снижения концентрации атомов олова в композициях после циркуляционного процесса и количество алкоксида три(алкил(замещенный циклической группой))олова (полученное количество по отношению к концентрации атомов олова композиций диалкоксида ди(алкил(замещенный циклической группой))олова, введенных в бак с катализатором до непрерывного процесса).

Таблица 40

Сравнительный пример	Алкоксид алкилолова		Непрерывное время [суток]	Процент снижения концентрации диалкоксида диалкилолова [%]	Полученное количество алкоксида триалкилолова [в моль-процентах]
	R' (алкильная группа)	OR'' (алкокси-группа)			
9	Метил	Этокси	4	78	41
10	Фенил	Этокси	4	68	36
11	N-бутил	Этокси	5	27	14
12	N-октил	Этокси	5	17	8,8
13	Метил	2-метилпропилокси	4	68	37
14	Фенил	2-метилпропилокси	4	57	31
15	N-бутил	2-метилпропилокси	5	23	12
16	N-октил	2-метилпропилокси	5	15	7,5

Структурная формула диалкоксида ди(алкил(замещенный циклической группой))олова.  
[Химическая формула 113]



где R' представляет собой C<sub>1-8</sub>алкильную или фенильную группу и R'' представляет собой C<sub>1-8</sub>алкильную группу.

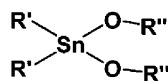
Сравнительные примеры 17-24.

Композиции диалкоксида ди(алкил(замещенный циклической группой))олова со структурами, перечисленными в табл. 41, синтезировали аналогичным способом, как в примере синтеза 11. Каждую композицию диалкоксида ди(алкил(замещенный циклической группой))олова использовали для реакции переэтерификации аналогичным способом, как в примере 266, с корректировкой, чтобы концентрация атомов олова реакционной смеси составляла приблизительно от 1,5 до 2,5 мол.%. В табл. 41 показан первоначальный выход и выход реакции после непрерывного процесса для реакции переэтерификации и полученное количество алкоксида три(алкил(замещенный циклической группой))олова (полученное количество по отношению к числу моль атомов композиций диалкоксида ди(алкил(замещенный циклической группой))олова, введенных в бак с катализатором до непрерывного процесса).

Таблица 41

Сравнительный пример	Алкоксид алкилолова		Исходные вещества для реакции переэтерификации		Температура [°C]	Первоначальный выход [в моль-процентах]	Выход [моль-процентов] (15 суток непрерывного процесса)	Полученное количество алкоксида триалкилолова [моль-процентов] (через 15 суток непрерывного процесса)
	R' (алкильная группа)	OR'' (алкокси- группа)	Сложный эфир карбоновой кислоты	Спирт				
17	Метил	Этокси	Сложный эфир метил-2-этилгексаноата	Этанол	150	20	7	32
18	Фенил	Этокси	Сложный эфир метил-2-этилгексаноата	Этанол	150	20	8	29
19	N-бутил	Этокси	Сложный эфир метил-2-этилгексаноата	Этанол	150	17	13	11
20	N-октил	Этокси	Сложный эфир метил-2-этилгексаноата	Этанол	150	21	18	10
21	Метил	2-метилпропилокси	Сложный эфир пропил-2-этилгексаноата	2-метил-1-пропанол	160	18	8	28
22	Фенил	2-метилпропилокси	Сложный эфир пропил-2-этилгексаноата	2-метил-1-пропанол	160	14	7	23
23	N-бутил	2-метилпропилокси	Сложный эфир пропил-2-этилгексаноата	2-метил-1-пропанол	160	20	16	9
24	N-октил	2-метилпропилокси	Сложный эфир пропил-2-этилгексаноата	2-метил-1-пропанол	160	19	16	9

Структурная формула диалкоксида ди(алкил(замещенный циклической группой))олова.  
[Химическая формула 114]



где R' представляет собой C<sub>1-8</sub>алкильную или фенильную группу и R'' представляет собой C<sub>1-8</sub>алкильную группу.

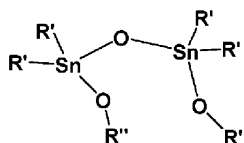
Сравнительные примеры 25-32.

Композиции тетраалкилдиалкоксидистанноксана со структурами, перечисленными в табл. 42, синтезировали аналогичным способом, как в примере синтеза 10. Затем каждую композицию тетраалкилдиалкоксидистанноксана использовали для реакции переэтерификации аналогичным способом, как в примере 269, с корректировкой, чтобы концентрация атомов олова в реакционной смеси составляла приблизительно от 1,5 до 2,5 мол.%. В табл. 42 показан первоначальный выход и выход реакции после непрерывного процесса для реакции переэтерификации и полученное количество алкоксида три(алкил(замещенный циклической группой))олова (полученное количество по отношению к числу моль атомов композиций тетраалкилдиалкоксидистанноксана, введенных в бак с катализатором до непрерывного процесса).

Таблица 42

Сравнительный пример	Алкоксид алкилолова		Температура [°C]	Первоначальный выход [в моль-процентах]	Выход [в моль-процентах] (15 суток непрерывного процесса)	Полученное количество алкоксида триалкилолова [в моль-процентах] (через 15 суток непрерывного процесса)
	R' (алкильная группа)	OR'' (алкокси-группа)				
25	Метил	Этоксид	150	16	3	40
26	Фенил	Этоксид	150	19	6	33
27	N-бутил	Этоксид	150	18	13	14
28	N-октил	Этоксид	150	14	12	10
29	Метил	2-метилпропилокси	160	20	5	37
30	Фенил	2-метилпропилокси	160	15	5	31
31	N-бутил	2-метилпропилокси	160	21	16	13
32	N-октил	2-метилпропилокси	160	21	18	10

Структурная формула тетраалкилдиалкоксидистанноксана.  
[Химическая формула 115]



где R' представляет собой C<sub>1-8</sub>алкильную или фенильную группу и R'' представляет собой C<sub>1-8</sub>алкильную группу.

Сравнительные примеры 33-40.

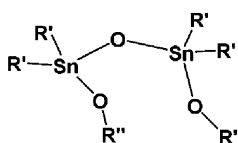
Композиции тетраалкилдиалкоксидистанноксана со структурами, перечисленными в табл. 43, синтезировали аналогичным способом, как в примере синтеза 10. Затем каждую композицию тетраалкилдиалкоксидистанноксана использовали для синтеза сложного эфира угольной кислоты аналогичным способом, как в примере 416. В табл. 43 показан первоначальный выход сложного эфира угольной кислоты и выход сложного эфира угольной кислоты после непрерывного процесса и полученное количество алкоксида три(алкил(замещенный циклической группой))олова (полученное количество по отношению к числу моль атомов олова композиций тетраалкилдиалкоксидистанноксана, введенных в бак с катализатором циркуляционного реактора непрерывного действия).

Таблица 43

Сравнительный пример	Алкоксид алкилолова		Температура [°C]	Давление CO <sub>2</sub> [МПа-Г]	Первоначальный выход сложного эфира угольной кислоты [в моль-процентах]	Выход сложного эфира угольной кислоты [в моль-процентах] (через 15 суток непрерывного процесса)	Полученное количество алкоксида триалкилолова [в моль-процентах] (через 15 суток непрерывного процесса)
	R' (алкильная группа)	OR'' (алкокси- группа)					
33	Метил	N-бутоксид	120	4,5	47,6	35,5	13,6
34	Фенил	N-бутоксид	120	4,5	32,8	25,6	12,0
35	N-бутил	N-бутоксид	120	4,5	48,2	41,3	7,5
36	N-октил	N-бутоксид	120	4,5	48,4	42,7	6,3
37	Метил	2-метилпропилокси	120	4,5	47,3	34,7	13,8
38	Фенил	2-метилпропилокси	120	4,5	31,8	24,5	12,2
39	N-бутил	2-метилпропилокси	120	4,5	47,6	41,7	6,5
40	N-октил	2-метилпропилокси	120	4,5	47,9	42,1	6,2



Структурная формула тетраалкилдиалкоксидистанноксана.  
[Химическая формула 116]



где R' представляет собой C<sub>1-8</sub>алкильную или фенильную группу и R'' представляет собой C<sub>1-8</sub>алкильную группу.

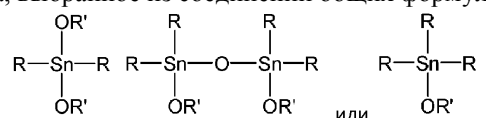
Список ссылочных позиций:

- 110, 120: реакторы с исходным веществом,
- 130: бак с катализатором,
- 140: корпусной реактор,
- 150: трубчатый реактор,
- 160: башенный реактор,
- 170: тонкоплочный испаритель,
- 180: дистиляционная колонка,
- 141: поточный смеситель,
- 161, 181: конденсаторы,
- 162, 182: баки конденсата,
- 163, 183: ребойлеры,
- 1, 2, 15: линии поставки,
- 3, 4, 5, 6, 7, 9, 10, 11, 14: линии транспортировки,
- 8, 12, 13: коллекторные линии,
- 16: трубопровод отбора пара.
- 210, 220: реакторы с исходным веществом,
- 230: бак с катализатором,
- 240: трубчатый реактор,
- 250: башенный реактор,
- 260: тонкоплочный испаритель,
- 270: дистиляционная колонка,
- 241: поточный смеситель,
- 251, 271: конденсаторы,
- 252, 272: баки конденсата,
- 253, 273: ребойлеры,
- 21, 22, 33: линии поставки,
- 23, 24, 25, 26, 28, 29, 30, 34: линии транспортировки,
- 27, 31, 32: коллекторные линии,
- 35: трубопровод отбора пара.
- 310, 320: реакторы с исходным веществом,
- 330: бак с катализатором,
- 340: корпусной реактор,
- 350: башенный реактор,
- 360: тонкоплочный испаритель,
- 370: дистиляционная колонка,
- 341: поточный смеситель,
- 351, 371: конденсаторы,
- 352, 372: баки конденсата,
- 353, 373: ребойлеры,
- 41, 42, 53: линии поставки,
- 43, 44, 45, 46, 48, 49, 50, 54: линии транспортировки,
- 47, 51, 52: коллекторные линии,
- 55: трубопровод отбора пара.
- 610, 670: дистиляционные колонки,
- 620: башенный реактор,
- 630: автоклав,
- 640, 650: тонкоплочные испарители,
- 660: бак с катализатором,
- 621: поточный смеситель,
- 611, 671, 673: конденсаторы,
- 612, 672: баки конденсата,
- 613, 622, 674: ребойлеры,

- 614: сборный бак,  
 61, 68, 78: линии поставки,  
 63, 64, 65, 66, 67, 69, 71, 72, 73, 74: линии транспортировки,  
 62, 75, 76, 77: коллекторные линии,  
 70: линия продувки,  
 79: трубопровод отбора пара.  
 710: корпусной реактор,  
 720, 780: дистилляционные колонки,  
 730: башенный реактор,  
 740: автоклав,  
 750, 760: тонкопленочные испарители,  
 770: бак с катализатором,  
 711: поточный смеситель,  
 721, 731, 781, 783: конденсаторы,  
 722, 732, 782: баки конденсата,  
 723, 733, 784: ребойлеры,  
 724: сборный бак,  
 91, 98, 107: линии поставки,  
 93, 94, 95, 96, 97, 99, 101, 102, 103, 109, 110: линии транспортировки,  
 92, 104, 105, 106: коллекторные линии,  
 100: линия продувки,  
 108: трубопровод отбора пара.

#### ФОРМУЛА ИЗОБРЕТЕНИЯ

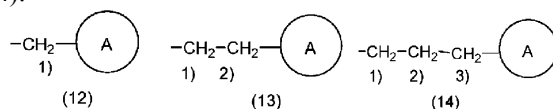
1. Соединение алкилолова, выбранное из соединений общих формул:



где каждый из множества R независимо представляет собой разветвленную алкильную группу или алкильную группу, замещенную циклической группой, а каждый из множества OR' независимо представляет собой C<sub>2-8</sub>алкоксигруппу, в котором

разветвленной алкильной группой является C<sub>5-18</sub>алкильная группа, разветвленная по меньшей мере на одном атоме углерода из числа атомов углерода с первого по третий с началом отсчета от атома олова; и

алкильной группой, замещенной циклической группой, является алкильная группа, представленная формулами (12), (13) или (14):



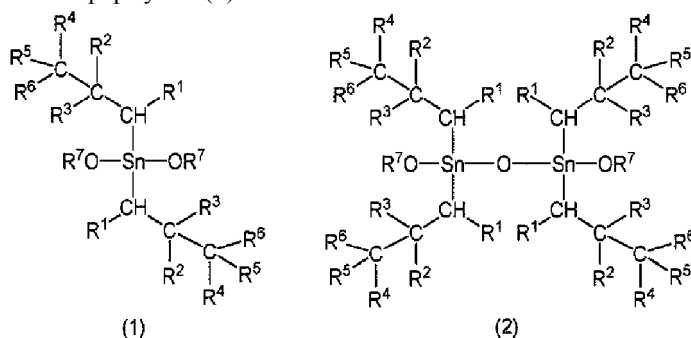
где кольцо A представляет собой C<sub>3-16</sub>алициклическую углеводородную группу или C<sub>6-16</sub>ароматическую углеводородную группу.

2. Соединение алкилолова по п.1, являющееся соединением алкилолова с двумя или тремя разветвленными алкильными группами, связанными с одним атомом олова, атом олова является четырехвалентным.

3. Соединение алкилолова по п.2, где разветвленной алкильной группой является C<sub>5-18</sub>разветвленная алкильная группа и C<sub>2-8</sub>алкоксигруппа также связана с атомом олова.

4. Соединение алкилолова по п.2 или 3, являющееся алкоксидом диалкилолова или тетраалкилдиалкоксидистанноксаном.

5. Соединение алкилолова по п.4, являющееся соединением, представленным формулой (1), или соединением, представленным формулой (2):



где каждый из  $R^1, R^2, R^3, R^4, R^5$  и  $R^6$  независимо представляет собой водород или  $C_{1-15}$ алкильную группу;

$R^7$  представляет собой  $C_{2-8}$ алкильную группу,

при условии, что не все из  $R^1, R^2, R^3, R^4, R^5$  и  $R^6$  являются водородом,

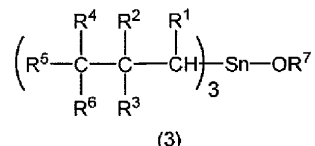
по меньшей мере один из  $R^1, R^2$  и  $R^3$  является алкильной группой или все из  $R^1, R^2$  и  $R^3$  являются водородом, и

по меньшей мере два из  $R^4, R^5$  и  $R^6$  являются алкильными группами, и

общее число атомов углерода  $R^1, R^2, R^3, R^4, R^5$  и  $R^6$  составляет от 2 до 15.

6. Соединение алкилолова по п.2 или 3, являющееся соединением триалкилолова.

7. Соединение алкилолова по п.6, являющееся соединением, представленным формулой (3)



где каждый из  $R^1, R^2, R^3, R^4, R^5$  и  $R^6$  независимо представляет собой водород или  $C_{1-15}$ алкильную группу;

$R^7$  представляет собой  $C_{2-8}$ алкильную группу,

при условии, что не все из  $R^1, R^2, R^3, R^4, R^5$  и  $R^6$  являются водородом,

по меньшей мере один из  $R^1, R^2$  и  $R^3$  является алкильной группой или все из  $R^1, R^2$  и  $R^3$  являются водородом, и

по меньшей мере два из  $R^4, R^5$  и  $R^6$  являются алкильными группами, и

общее число атомов углерода  $R^1, R^2, R^3, R^4, R^5$  и  $R^6$  составляет от 2 до 15.

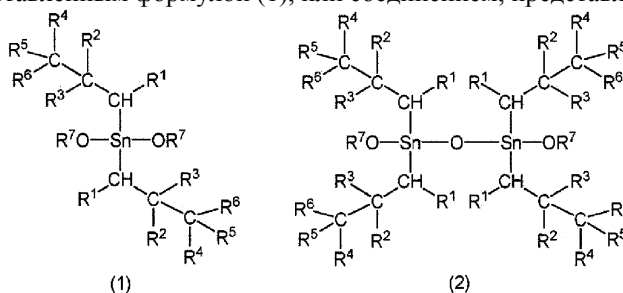
8. Соединение алкилолова по п.3, где алкоксигруппой является алкоксигруппа, выбранная из *n*-бутилокси, изобутилокси, втор-бутилокси и  $C_{5-8}$ алкоксигрупп.

9. Соединение алкилолова по п.3 или 8, где алкоксигруппой является разветвленная алкоксигруппа.

10. Соединение алкилолова по п.2, являющееся

алкоксидом алкилолова с  $C_{5-18}$ разветвленной алкильной группой и  $C_{4-8}$ разветвленной алкоксигруппой и

соединением, представленным формулой (1), или соединением, представленным формулой (2):



где каждый из  $R^1, R^2, R^3, R^4, R^5$  и  $R^6$  независимо представляет собой водород или  $C_{1-15}$ алкильную группу;

$R^7$  представляет собой  $C_{4-8}$ разветвленную алкильную группу,

при условии, что не все из  $R^1, R^2, R^3, R^4, R^5$  и  $R^6$  являются водородом,

по меньшей мере один из  $R^1, R^2$  и  $R^3$  является алкильной группой или все из  $R^1, R^2$  и  $R^3$  являются водородом, и

по меньшей мере два из  $R^4, R^5$  и  $R^6$  являются алкильными группами, и

общее число атомов углерода  $R^1, R^2, R^3, R^4, R^5$  и  $R^6$  составляет от 2 до 15.

11. Соединение алкилолова по п.1,

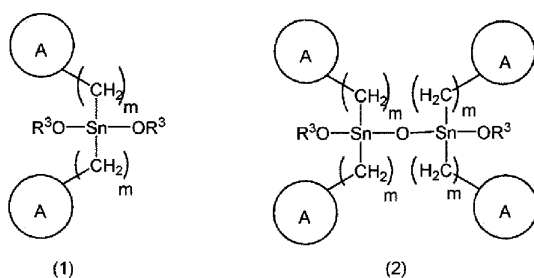
являющееся соединением алкилолова с алкильной группой, замещенной циклической группой, связанной с атомом олова,

алкильной группой, замещенной циклической группой, является алкильная группа, представленная формулами (12), (13) или (14), и

атом олова является четырехвалентным.

12. Соединение алкилолова по п.11, являющееся диалкоксидом ди(алкил(замещенный циклической группой))олова или тетра(алкил(замещенный циклической группой))диалкоксидистанноксаном.

13. Соединение алкилолова по п.12, являющееся соединением, представленным формулой (1), или соединением, представленным формулой (2):



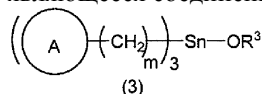
где кольцо А представляет собой C<sub>3-16</sub>алициклическую углеводородную группу или C<sub>6-16</sub>ароматическую углеводородную группу;

m является целым числом от 1 до 3;

R<sup>3</sup> представляет собой C<sub>2-8</sub>алкильную группу.

14. Соединение алкилолова по п.11, являющееся соединением три(алкил(замещенный циклической группой))олова.

15. Соединение алкилолова по п.14, являющееся соединением, представленным формулой (3)



где кольцо А представляет собой C<sub>3-16</sub>алициклическую углеводородную группу или C<sub>6-16</sub>ароматическую углеводородную группу;

m является целым числом от 1 до 3;

R<sup>3</sup> представляет собой C<sub>2-8</sub>алкильную группу.

16. Соединение алкилолова по п.4 или 12, где алкоксигруппой является C<sub>4-8</sub>алкоксигруппа и спиртом, соответствующим алкоксигруппе, является спирт с температурой кипения 100°C или выше при обычном давлении.

17. Соединение алкилолова по п.16, где спирт образует азеотропную смесь с водой.

18. Соединение алкилолова по п.16 или 17, где алкоксигруппой является разветвленная алкоксигруппа.

19. Каталитическая композиция, содержащая соединение алкилолова по п.4 или 5 и соединение алкилолова по п.6 или 7.

20. Каталитическая композиция, содержащая соединение алкилолова по п.12 или 13 и соединение алкилолова по п.14 или 15.

21. Катализатор для способа получения сложного эфира угольной кислоты из диоксида углерода и спирта, представляющий собой соединение алкилолова по любому из пп.1-10 и 11-18.

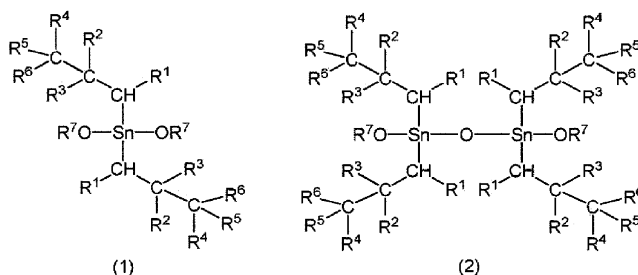
22. Способ получения сложного эфира угольной кислоты с использованием соединения алкилолова по любому из пп.1-10 и 11-18, включающий стадии с (1) по (3):

стадия (1): стадия реакции соединения алкилолова с диоксидом углерода с получением смеси, содержащей конъюгат диоксида углерода алкоксида алкилолова, и реагирования смеси при температуре реакции от 40 до 200°C в течение от 0,05 до 10 ч и давлении реакции от обычного давления до 20 МПа для получения реакционной смеси, содержащей сложный эфир угольной кислоты, имеющий алкильные группы, соответствующие алкильным группам соединения алкилолова;

стадия (2): стадия отделения сложного эфира угольной кислоты от реакционной смеси для получения сложного эфира угольной кислоты и остаточного раствора;

стадия (3): стадия реакции остаточного раствора со спиртом и удаления воды, полученной посредством реакции, для получения алкоксида алкилолова и повторного использования его на стадии (1).

23. Способ по п.22, где соединение алкилолова включает или любое из, или одновременно соединения, представленное формулой (1), и/или соединения, представленное формулой (2):



где каждый из R<sup>1</sup>, R<sup>2</sup>, R<sup>3</sup>, R<sup>4</sup>, R<sup>5</sup> и R<sup>6</sup> независимо представляет собой водород или C<sub>1-15</sub>алкильную группу;

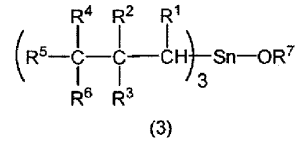
R<sup>7</sup> представляет собой C<sub>2-8</sub>алкильную группу,

при условии, что не все из R<sup>1</sup>, R<sup>2</sup>, R<sup>3</sup>, R<sup>4</sup>, R<sup>5</sup> и R<sup>6</sup> являются водородом,

по меньшей мере один из  $R^1$ ,  $R^2$  и  $R^3$  является алкильной группой или все из  $R^1$ ,  $R^2$  и  $R^3$  являются водородом, и

по меньшей мере два из  $R^4$ ,  $R^5$  и  $R^6$  являются алкильными группами, и общее число атомов углерода  $R^1$ ,  $R^2$ ,  $R^3$ ,  $R^4$ ,  $R^5$  и  $R^6$  составляет от 2 до 15.

24. Способ по п.23, где соединение алкилолова также включает соединение, представленное формулой (3)



где каждый из  $R^1$ ,  $R^2$ ,  $R^3$ ,  $R^4$ ,  $R^5$  и  $R^6$  независимо представляет собой водород или  $C_{1-15}$ алкильную группу;

$R^7$  представляет собой  $C_{2-8}$ алкильную группу,

при условии, что не все из  $R^1$ ,  $R^2$ ,  $R^3$ ,  $R^4$ ,  $R^5$  и  $R^6$  являются водородом,

по меньшей мере один из  $R^1$ ,  $R^2$  и  $R^3$  является алкильной группой или все из  $R^1$ ,  $R^2$  и  $R^3$  являются водородом, и

по меньшей мере два из  $R^4$ ,  $R^5$  и  $R^6$  являются алкильными группами, и

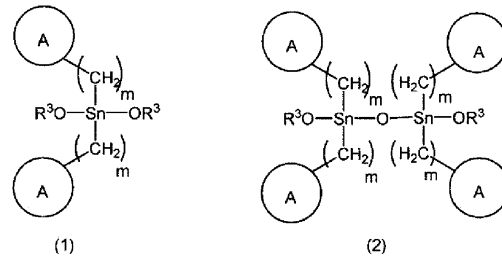
общее число атомов углерода  $R^1$ ,  $R^2$ ,  $R^3$ ,  $R^4$ ,  $R^5$  и  $R^6$  составляет от 2 до 15.

25. Способ по п.23 или 24, где алкоксигруппа соединения алкилолова выбрана из н-бутилокси, изобутилокси, втор-бутилокси и  $C_{5-8}$ алкоксигрупп.

26. Способ по любому из пп.23-25, где спиртом является спирт, выбранный из н-бутилового спирта, изобутилового спирта, втор-бутилового спирта и  $C_{5-8}$ алкильных спиртов.

27. Способ по любому из пп.23-26, где алкоксигруппой соединения алкилолова является разветвленная алкоксигруппа и спиртом является разветвленный спирт, соответствующий разветвленной алкоксигруппе.

28. Способ по п.22, где соединение алкилолова включает или любое из, или одновременно соединение, представленное формулой (1), и/или соединение, представленное формулой (2):

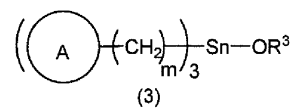


где кольцо A представляет собой  $C_{3-16}$ алициклическую углеводородную группу или  $C_{6-16}$ ароматическую углеводородную группу;

m является целым числом от 1 до 3;

$R^3$  представляет собой  $C_{2-8}$ алкильную группу.

29. Способ по п.28, где соединение алкилолова также включает соединение, представленное формулой (3)



где кольцо A представляет собой  $C_{3-16}$ алициклическую углеводородную группу или  $C_{6-16}$ ароматическую углеводородную группу;

m является целым числом от 1 до 3;

$R^3$  представляет собой  $C_{2-8}$ алкильную группу.

30. Способ по п.28 или 29, где алкоксигруппами соединения, представленного формулой (1), и соединения, представленного формулой (2), являются  $C_{4-8}$ алкоксигруппы;

спиртами, соответствующими алкоксигруппам, являются спирты с температурой кипения 100°C или выше при обычном давлении; и

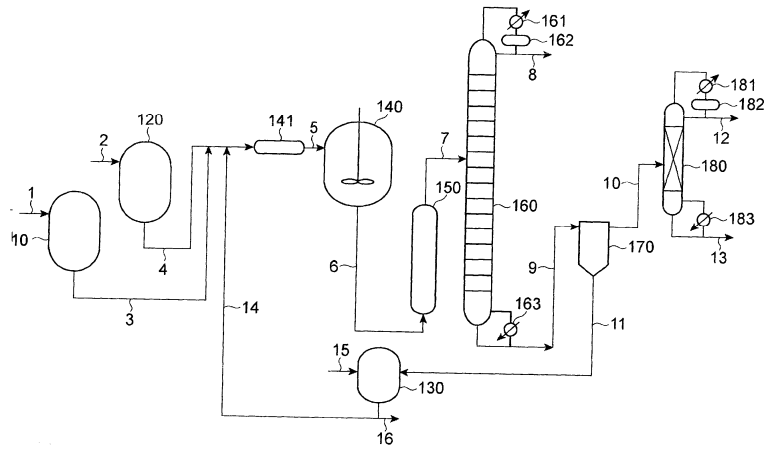
спиртом, используемым на стадии (3), является спирт, соответствующий алкоксигруппе.

31. Способ по п.28 или 29, где спиртом является  $C_{4-8}$ спирт с температурой кипения 100°C или выше при обычном давлении.

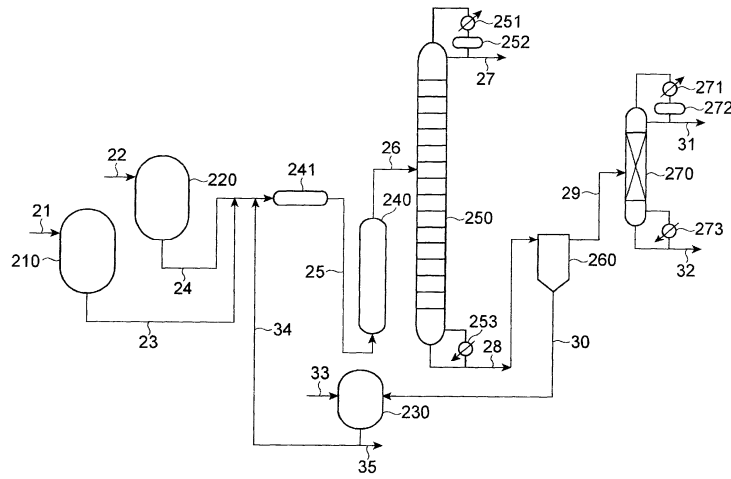
32. Способ по любому из пп.28-31, где спиртом является спирт, выбранный из н-бутилового спирта, изобутилового спирта, втор-бутилового спирта и  $C_{5-8}$ алкиловых спиртов.

33. Способ по любому из пп.28-32, где алкоксигруппой соединения алкилолова является разветв-

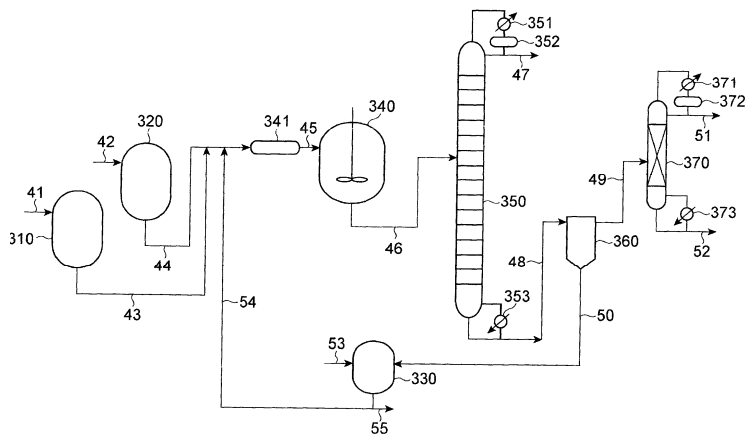
ленная алкоксигруппа и спиртом является разветвленный спирт.



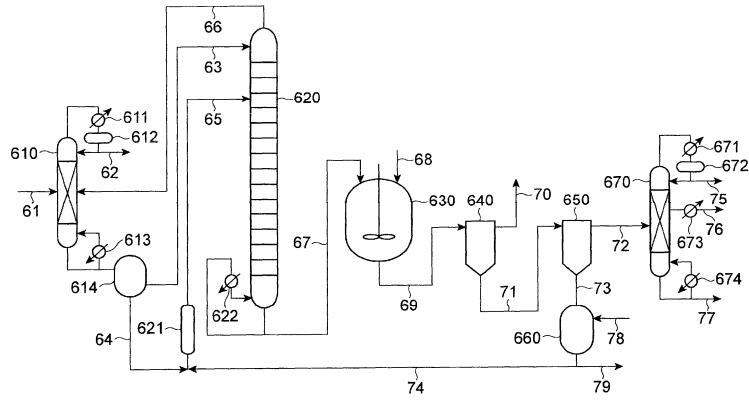
Фиг. 1



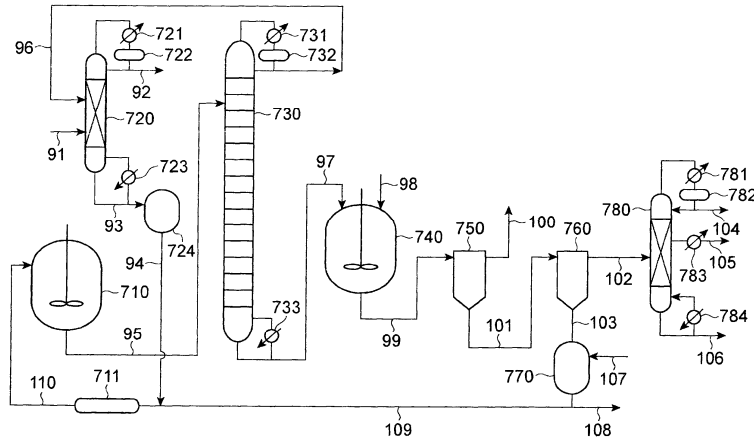
Фиг. 2



Фиг. 3



Фиг. 4



Фиг. 5