

(19) 日本国特許庁(JP)

(12) 特許公報(B2)

(11) 特許番号

特許第4531744号
(P4531744)

(45) 発行日 平成22年8月25日(2010.8.25)

(24) 登録日 平成22年6月18日(2010.6.18)

(51) Int.Cl.

C07D 251/60
C07B 61/00(2006.01)
(2006.01)

F 1

C07D 251/60
C07B 61/00A
300

請求項の数 16 (全 10 頁)

(21) 出願番号 特願2006-500588 (P2006-500588)
 (86) (22) 出願日 平成16年1月16日 (2004.1.16)
 (65) 公表番号 特表2006-515369 (P2006-515369A)
 (43) 公表日 平成18年5月25日 (2006.5.25)
 (86) 國際出願番号 PCT/EP2004/000327
 (87) 國際公開番号 WO2004/065371
 (87) 國際公開日 平成16年8月5日 (2004.8.5)
 審査請求日 平成17年7月19日 (2005.7.19)
 (31) 優先権主張番号 10301703.8
 (32) 優先日 平成15年1月17日 (2003.1.17)
 (33) 優先権主張国 ドイツ(DE)
 (31) 優先権主張番号 10337501.5
 (32) 優先日 平成15年8月14日 (2003.8.14)
 (33) 優先権主張国 ドイツ(DE)

(73) 特許権者 508020155
 ビーエースエフ ソシエタス・ヨーロピ
 ア
 B A S F S E
 ドイツ連邦共和国 ルートヴィヒスハーフ
 エン (番地なし)
 D-67056 Ludwigshaf e
 n, Germany
 (74) 代理人 100061815
 弁理士 矢野 敏雄
 (74) 代理人 100094798
 弁理士 山崎 利臣
 (74) 代理人 100099483
 弁理士 久野 琢也

最終頁に続く

(54) 【発明の名称】メラミンを合成するための2工程反応器

(57) 【特許請求の範囲】

【請求項 1】

尿素を固体の触媒上で主要な反応器および後方の反応器を用いて分解することによって、メラミンを触媒により製造する方法において、0.3~1.8 μmol/g のルイス酸度を有する触媒を主要な反応器中で使用し、2~12 μmol/g のルイス酸度を有する触媒を後方の反応器中で使用することを特徴とする、メラミンを触媒により製造する方法。

【請求項 2】

主要な反応器中の触媒が酸化アルミニウム、酸化ケイ素およびアルミニケイ酸塩ならびにこれらの混合物からなる群からの少なくとも1つの鉱物を含有する、請求項1記載の方法。

10

【請求項 3】

主要な反応器中の触媒が流動化床として存在する、請求項1または2記載の方法。

【請求項 4】

主要な反応器が円錐形または円柱形の形状を有する、請求項3記載の方法。

【請求項 5】

後方の反応器中の触媒のルイス酸度が1.5~6倍高い反応条件下で体積により標準化された表面ルイス酸度を有する、請求項1から4までのいずれか1項に記載の方法。

【請求項 6】

後方の反応器中の触媒がSiO₂ 0~60質量% および Al₂O₃ 100~40質量%

20

を含有する、請求項 1 から 5 までのいずれか 1 項に記載の方法。

【請求項 7】

後方の反応器中の触媒が酸化アルミニウム、酸化ケイ素およびアルミノケイ酸塩ならびに酸化アルミニウムと酸化ケイ素および / またはアルミノケイ酸塩との混合物からなる群からの少なくとも 1 つの鉱物を含有する、請求項 1 から 6 までのいずれか 1 項に記載の方法。

【請求項 8】

後方の反応器中の触媒が 350 ~ 950 で使用前に活性化される、請求項 1 から 7 までのいずれか 1 項に記載の方法。

【請求項 9】

後方の反応器中の触媒が 150 ~ 400 m² / g の BET 表面積を有する、請求項 1 から 8 までのいずれか 1 項に記載の方法。

【請求項 10】

触媒の細孔容積が 0.1 ~ 1.5 ml / g (N₂)、または 0.1 ~ 2.0 ml / g あり (Hg 多孔度測定法)、細孔直径が 10 ~ 100 である、請求項 1 から 9 までのいずれか 1 項に記載の方法。

【請求項 11】

後方の反応器中の滞留時間が 0.1 ~ 20 秒であり、触媒上での空間速度が H N C O 0.05 ~ 2 g / g (cat) · h である、請求項 1 から 10 までのいずれか 1 項に記載の方法。

【請求項 12】

主要な反応器中の滞留時間が 1 ~ 50 秒であり、触媒上での空間速度が尿素 20 ~ 700 kg / t (cat) · h である、請求項 1 から 11 までのいずれか 1 項に記載の方法。

【請求項 13】

主要な反応器中の反応を 350 ~ 450 および 1 ~ 15 バール絶対の圧力で実施する、請求項 1 から 12 までのいずれか 1 項に記載の方法。

【請求項 14】

後方の反応器中の反応を 350 ~ 500 および 1 ~ 15 バール絶対の圧力で実施する、請求項 1 から 13 までのいずれか 1 項に記載の方法。

【請求項 15】

後方の反応器中の触媒が固定床として存在する、請求項 1 から 14 までのいずれか 1 項に記載の方法。

【請求項 16】

触媒は、主要な反応器中で流動化床として存在し、後方の反応器中では、固定床として存在する、請求項 1 から 15 までのいずれか 1 項に記載の方法。

【発明の詳細な説明】

【技術分野】

【0001】

本発明は、尿素を触媒により分解することによってメラミンを製造する方法に関する。本発明の方法は、異なる酸度の触媒を 2 工程で使用するような 2 工程法である。

【0002】

その構造が式 I

【0003】

10

20

30

40

【化1】



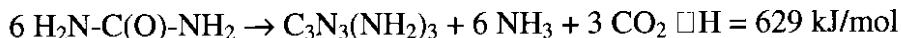
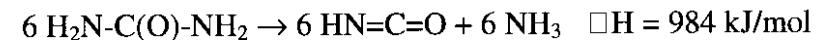
によって表わされているメラミンは、カルボニル基含有化合物との反応によってメラミン樹脂を製造するために使用される。この樹脂は、なかんずくプラスチックならびに塗料およびワニスに使用されている。尿素の分解によるメラミンの製造は、公知反応であり、この公知反応は、多種多様に化学工業によって利用されている。原理的に高圧法と低圧法とは、区別される。高圧法は、約80バール超（絶対）の圧力および370超の温度で触媒の不在下に実施される。

【0004】

しかしながら、約1～10バール（絶対）の圧力および370～430の温度で実施される低圧法は、本発明の範囲内で極めて重要である。反応が2工程で進行することは、公知である。第1の吸熱工程で、尿素は反応してアンモニアおよびイソシアノ酸を形成し、このイソシアノ酸は、第2の吸熱工程で三量体化してメラミンおよび遊離CO₂を形成する。次の反応式は、個々の反応が記載されている。

【0005】

【化2】



【0006】

低圧法には、3つの主な変法が存在し、これらの変法は、以下に詳細に記載される。

【0007】

リンツ(LInz)の化学の方法においては、反応は、2工程で実施される。第1の工程で、溶融された尿素は、砂の流動化床中で350および3.5バール（絶対）で分解され、アンモニアおよびイソシアノ酸を形成する。その後に、イソシアノ酸は、450および大気圧で固定床反応器中で触媒によりメラミンに変換される。触媒は、一般的に酸化アルミニウム触媒である。

【0008】

DSM-Stamicarbon法は、約7バール（絶対）で単独工程法で実施される。使用される触媒は、珪酸アルミニウムであり、これは、流動化床として使用される。流動化ガスは、純粋なアンモニアであり、これは、排ガスの後処理によって回収される。

【0009】

最後に、BASF法が存在する。この場合も、反応は、流動化床中で酸化アルミニウムまたは酸化アルミニウム/二酸化ケイ素触媒を用いて低圧（約2バール絶対）で実施される。流動化床に使用されるガスは、反応器から再循環されたガスであり、このガスは、NH₃およびCO₂からなり、一般に不純物を取り込む尿素溶融液での処理によって先に不純物を含有していなかった。

【0010】

原理的に触媒を用いない方法と比較して簡単で安価な装置の利点を提供する上記の全ての触媒法を実施する場合にしばしば起こる問題は、触媒上でのメラミンの高級縮合生成物の析出である（コーティング）。この場合に記載することができる1つの例は、メレム(melem) (C₆H₆N₁₀、2,5,8-トリアミノ-1,3,4,6,7,9-b-

10

20

30

40

50

ヘプタアザフェナレン)であり、これは、3個の融合されたトリアジン環から形成された三環式化合物である。縮合生成物の過剰の析出は、触媒の失活に関連し、触媒の再生が必要とされる場合には、例えば熱処理および/または水蒸気、空気またはアンモニアでの処理が必要とされるが、しかし、極端な場合には、触媒の交換も必要である。付加的に、触媒上での縮合生成物の析出は、比較的急速に進行し、定常状態の濃度の前記生成物を生じるので、しばしば短時間後に失活が起こり、したがって周期的な再生は、短時間の間隔のために実現不可能である。

【0011】

これまで、メラミンの合成に使用される触媒が高い収量または低い程度の分解を達成するためには必要とされる性質または組成に関連しての体系的な研究は為されてなかつたし、認識されてもいなかつた。

10

【0012】

特開平08027126号公報には、メラミンを合成するための定義された酸度の限界を有する - Al_2O_3 触媒の特許保護が請求されている。

【0013】

Thianranqi Huagong, 2001, 第26巻, 第23~25頁 (CA 136:135396に基づいて引用された) には、メラミンの合成のための活性触媒は Al_2O_3 とゼオライトまたは金属陽イオン含有ゼオライトとの混合によって得ることができることが開示されている。得られた活性は、触媒の酸中心に帰因する。

【0014】

20

しかし、増加された酸度を有する触媒の使用では、殊に析出物の形成の結果としての触媒の失活およびそれに関連した低い変換率の問題を解決することができないことが見い出された。

【0015】

本発明の目的は、特に選択された反応条件下で析出物が形成する結果としての触媒の早期の失活なしに高い変換率およびメラミン収量を得ることができる方法を提供することである。

【0016】

この目的は、0.3~1.8 $\mu\text{mol/g}$ のルイス酸度を有する触媒を主要な反応器中で使用し、2~12 $\mu\text{mol/g}$ のルイス酸度を有する触媒を後方の反応器中で使用することによって特徴付けられる、尿素を固体の触媒上で主要な反応器および後方の反応器を用いて分解することによって、メラミンを触媒により製造する方法により達成されることが見い出された。

30

【0017】

本発明は、高いルイス酸度を有する触媒の使用により、メラミンへの出発物質の尿素の高い変換率が生じ、こうして高い反応収量を生じるにも拘わらず、使用される触媒上での析出物の形成も急速に起こるという認識に基づいている。こうして、高い変換率の望ましい効果は、析出物の形成の結果としての触媒の失活によってもなお余りあるものである。

【0018】

析出物の形成を回避するかまたは逆転させるために使用された測定法は、高価であり、付加的に析出物の形成が急速に起こるので、2つの別々の反応器 (主要な反応器および後方の反応器) 中でメラミンの形成を実施することは有利であることが見い出された。低いルイス酸度の触媒は、主要な反応器中で使用され、比較的低い変換率で生じるが、しかし、析出物の僅かな形成も生じる。同じルイス酸度またはよりいっそう高いルイス酸度を有する触媒は、後方の反応器中での触媒は、有利によりいっそう高いルイス酸度を有し、このよりいっそう高いルイス酸度は、極めて高い変換率を可能にする。こうして、高い全変換率を達成することができるが、しかし、同時に主要な反応器中で使用される触媒および後方の反応器中で使用される触媒の双方の低い非活性化も達成することができる。

40

【0019】

50

イソシアン酸を形成するための尿素の解離およびメラミンを形成するための三量体化の双方が起こるが、しかし、三量体化の反応は、殊に完全にのみ起こるような主要な反応器中で、触媒は、原理的に当業者にとって公知の任意の形で、例えば固定床、流動化床、循環型流動化床または移動床として存在することができる。触媒は、好ましくは流動化床として使用される。

【0020】

主要な反応器中で使用される触媒は、好ましくは酸化アルミニウム、酸化ケイ素およびアルミノケイ酸塩ならびに種々の酸化アルミニウム、酸化ケイ素および/またはアルミノケイ酸塩の混合物からなる群からの少なくとも1つの鉱物を含有する。この触媒は、特に好ましくはバイヤライト、ペーム石、ギブス石、モンモリロン石、ベントナイトおよび白雲母からなる群からの少なくとも1つの鉱物、殊にベントナイトを含有する。また、触媒は、全体的に前記の鉱物から構成されていてよい。

【0021】

上記の鉱物は、例えば熱処理によって望ましい酸度を達成するために使用前に当業者に公知の方法で活性化されていてよい。熱処理は、一般に前記の鉱物の酸度を上昇させるので、主要な反応器中に使用される触媒の場合には、熱処理は、一般に実施されない。

【0022】

主要な反応器中で使用される触媒は、0.3~1.8 μmol/g、よりいっそう好ましくは0.5~1.5 μmol/g、殊に0.8~1.2 μmol/gの表面ルイス酸度を有する。指摘された値は、高真空のフーリエ変換赤外分光計(HV-FTIR)中での酸度の測定により390で試料分子としてのピリジンを使用して得られ、異なるIR吸収バンドによって特性決定されたルイス酸の中心は、定量的にピーク領域の積分によって測定された。Turk. J. Chem. 23 (1999), 第319~327頁中に記載された方法は、この目的のために使用された。この値は、5.1mmの圧縮された触媒ペレットのためのホルダーの内径で測定された。

【0023】

典型的な流動化床触媒は、50~350m²/g、好ましくは100~250m²/gのBET表面積を有する。細孔容積は、0.1~1.0ml/gの範囲内にある。触媒の平均粒径は、10~500μmである。

【0024】

指定された触媒の存在下での方法は、350~450、好ましくは380~420、1~15バール、好ましくは1~10バール、殊に5~8バールの絶対圧力、1~50秒、好ましくは2~30秒の流動化床上の滞留時間および尿素20~700kg/t(cat)·h、好ましくは尿素50~500kg/t(cat)·hの触媒上での空間速度で実施される。

【0025】

主要な反応器は、通常、円柱形または円錐形の形状を有する。本発明の1つの実施態様において、主要な反応器として使用される流動化床反応器は、円錐形の形状を有する。これは、流入ガスの上昇された速度、ひいてはよりいっそう安定した流動化挙動を達成する。

【0026】

後方の反応器中で使用される触媒は、主要な反応器中で使用された触媒の場合よりも、有利に1.5~6倍、好ましくは3~5倍高い反応条件下で体積により標準化された表面ルイス酸度を有する。

【0027】

後方の反応器中で使用される触媒の表面酸度は、2~12 μmol/g、よりいっそう好ましくは3~10 μmol/g、殊に3.5~6 μmol/gである。指摘された値は、高真空のフーリエ変換赤外分光計(HV-FTIR)中での酸度の測定により390で試料分子としてのピリジンを使用して得られ、異なるIR吸収バンドによって特性決定されたルイス酸の中心は、定量的にピーク領域の積分によって測定された。Turk. J. Chem. 23

10

20

30

40

50

(1999), 第319 ~ 327頁中に記載された方法は、この目的のために使用された。この値は、5 . 1 mm の圧縮された触媒ペレットのためのホルダーの内径で測定された。

【0028】

主要な反応器中で使用される触媒と同様に、後方の反応器中の触媒は、有利に酸化アルミニウム、酸化ケイ素およびアルミニノケイ酸塩ならびに酸化アルミニウムと酸化ケイ素および/またはアルミニノケイ酸塩との混合物からなる群からの少なくとも1つの鉱物を含有する。後方の反応器中で使用される触媒は、SiO₂ 0 ~ 60 質量%、好ましくは5 ~ 50 質量%およびAl₂O₃ 100 ~ 40 質量%、好ましくは95 ~ 50 質量%を含有する。好ましくは、アルミニノケイ酸塩触媒の使用が記載される。

【0029】

この触媒は、150 ~ 400 m² / g、好ましくは200 ~ 350 m² / g の BET 表面積を有する。

【0030】

必要な酸度の達成に要求される測定方法は、当業者に公知である。望ましい酸度は、異なる原子価のイオンを記載された鉱物（例えば、酸化アルミニウム中の二酸化ケイ素）および/または熱処理に取り入れることによって達成されうる。本発明の好ましい実施態様において、記載された鉱物は、350 ~ 950、好ましくは450 ~ 750 での熱処理によって使用前に活性化される。

【0031】

触媒の細孔容積は、0 . 1 ~ 1 . 5 ml / g、好ましくは0 . 2 ~ 0 . 9 ml / g (N₂)、または0 . 1 ~ 2 . 0 ml / g、好ましくは0 . 2 ~ 1 . 0 ml / g である (Hg 多孔度測定法)。細孔直径は、10 ~ 100、好ましくは30 ~ 90 である。

【0032】

本発明の方法は、0 . 1 ~ 20 秒、好ましくは0 . 5 ~ 10 秒の後方の反応器中の滞留時間およびHNCOO . 05 ~ 2 g / g (cat) · h、好ましくはHNCOO . 1 ~ 1 g / g (cat) · h の後方の反応器中の触媒上の空間速度で実施される。温度は、350 ~ 500、好ましくは390 ~ 450 であり、圧力は、1 ~ 15 バール絶対、好ましくは1 ~ 10 バール、殊に5 ~ 8 バール絶対である。

【0033】

後方の反応器中で、触媒は、当業者に公知の適当な形で、例えば固定床または流動化床として存在することができる。後方の反応器中の触媒は、僅かな程度の逆混合が反応中に起こりうる形であることが有利であることが見い出された。これは、例えば固定触媒の場合であり、したがって後方の反応器中の固定床触媒の使用は、好ましい。固定床触媒は、有利に造形体として存在する。好ましくは、主要な反応器から運搬される微細な触媒ダストが通過しうる造形体、例えば中空押出品、モノリス、星形押出品、ペレットまたは破碎物質を選択することが記載される。特に有用な形状は、ハニカムおよび中空押出品、殊にハニカムである。記載された造形体の中、ハニカムは、反応ガスの通過中の圧力差に関連して最善の性質を有する。

【0034】

好ましくは、全体が - 酸化アルミニウムからなるかまたは本質的に - 酸化アルミニウムからなるハニカムを使用することが記載される。 - Al₂O₃ 60 ~ 100 質量% およびSiO₂ 0 ~ 40 質量% からなるハニカムが好ましい。

【0035】

ハニカムに造形されうる組成物は、乾式で混合され、素練り促進剤、好ましくは硝酸および水と混合され、次にパンミル (pan mill) 中で配合される。適当な素練り促進剤は、当業者に公知である。また、必要に応じて、加熱下に残留物を留めることなく分解する有機助剤を使用することができる。例は、カーボネート誘導体およびセルロース誘導体である。詳細な例は、炭酸アンモニウム、亜硫酸アンモニウムおよびヒドロキシメチルセルロースを含む（例えば、Walocel（登録商標），Wolff Walsrode、の名称で市販されている製品）。更に、配合された組成物は、圧力下に押し出され、望ましいハニカムの幾何学的形

10

20

30

40

50

状を生じる。形状体は、乾燥され、最終的に好ましくは 600 未満でか焼される。

【0036】

本方法は、好ましくは変換の主要な部分が主要な反応器中で起こり、変換（残留物の変換）の小さな部分が後方の反応器中で起こるように実施される。

【0037】

本発明は、次の実施例によって詳説される。図に関連して、A = 変換率 [%] ; B = 有機析出部 [質量 %] ; C = 運転時間 [h] 。

【0038】

実施例

例 1 (比較例)

10

80 cm の直径および約 8 m の触媒床高さを有するパイロット反応器中で、尿素を約 400 でメラミンに変換した。試験された 3 つの触媒（か焼されケイ素がドープされた酸化アルミニウム (cat 1) 、か焼された酸化アルミニウム (cat 2) およびか焼されていないモンモリロン石型のアルミノケイ酸塩 (cat 3) ）は、それぞれ反応条件下で $4.4 \mu\text{mol/g}$ 、 $3.6 \mu\text{mol/g}$ および $1.0 \mu\text{mol/g}$ のルイス酸度を有していた。流動化ガス流量は、約 300 標準 m^3/h であった。

【0039】

図 1 から認めることができるように、最も酸度の高い触媒 (cat 1) の初期変換率は、約 90 % である。しかし、触媒の不活性化は、ほんの約 250 時間の運転時間後に起こり、450 時間後には、変換率は、60 % 未満に減少した。触媒の不活性化は、不活性化にとって重要である、触媒上での有機析出物の形成によって達成される。

20

【0040】

$3.6 \mu\text{mol/g}$ のルイス酸度を有する若干酸度の低い触媒 (cat 2) は、約 85 % の若干低い初期変換率を示し、これは、また、有機析出物の形成と同時に減少する（図 2）。

【0041】

図 3 は、最も酸度の低い触媒 (cat 3、 $1 \mu\text{mol/g}$ にすぎないルイス酸度) を用いての相応する試験を示す。この触媒は、約 75 % にすぎない変換率を示すが、しかし、一定の有機析出物のために一定の変換率で運転される。

30

【0042】

こうして、酸性触媒は、高い変換率を保証するけれども、急速に不活性化されることが見い出された。よりいっそう低い酸度を有する触媒は、よりいっそう少ない活性であり、しかも取るに足らない不活性化のみを蒙る。

【0043】

例 2

例 1 からの最も酸度の低い触媒 (cat 3) を用いて運転される流動化床反応器からのガス 30 標準 m^3/h を 13.5 cm の直径および 1.5 m の触媒床高さを有する後方の固定床反応器中に供給した。

【0044】

後方の固定床反応器中で使用される触媒は、 $\text{Al}_2\text{O}_3 95\%$ および $\text{SiO}_2 5\%$ の組成を有し、押出後に 550 で一晩中か焼された、ケイ素でドープされた酸化アルミニウムの中空押出品 $10 \times 20 \times 5 \text{ mm}$ であった。

40

【0045】

約 400 および 1.5 バール絶対の圧力で、触媒の不活性化なしに 90 % 超の全変換率で 1500 時間を超える運転時間は、可能であることが証明された（図 4）。

【0046】

異なる酸度の触媒を含む主要な反応器と後方の反応器とを組み合わせた結果として、低い触媒に不活性化と組み合わされた高い選択性で高い変換率が観察される。

【0047】

例 1 および 2 で達成される初期変換率および最終変換率は、再度、次の表中に記載され

50

ている。

【0048】

【表1】

第1表：例1および2における変換率

	変換率 _{初期 (%)}	変換率 _{500h (%)}
触媒1	88	56
触媒2	83	51
触媒3	73; 一定	
触媒3および後方の反応器	92; 一定	

10

【0049】

例3

SiO_2 5 % および酸化アルミニウムヒドロキシド 95 % からなる材料 3 kg および SiO_2 5 % および $\text{-Al}_2\text{O}_3$ 95 % からなる材料 7 kg を 5 分間、乾式混合し、濃度 69.3 % の HNO_3 0.635 kg の添加後、脱イオン水 2.5 kg で希釈し、ミックス - ミュラー (Mix-Muller) 中での配合中に脱イオン水 4.3 kg をさらに混合する。

20

【0050】

45 × 45 mm の辺の長さおよび 320 mm の長さを有し、5.7 × 5.7 mm の内径および 1.8 mm のウェブ厚さを備えた 6 × 6 個のセルを有するハニカムを 50 バールの金型圧力および 200 の温度で押出す。造形体を室温で乾燥させる。乾燥炉中で、ハニカムを 300 で 24 時間乾燥し、次にそのつど 600 になるまで 10 のステップで 24 時間乾燥する。このハニカムを 600 でさらに 24 時間乾燥する。最終的に、このハニカムを 5000 で 7 時間か焼する。

【図面の簡単な説明】

【0051】

【図1】最も酸度の高い触媒 (cat 1) の初期変換率を示す線図。

30

【図2】若干酸度の低い触媒 (cat 2) の初期変換率を示す線図。

【図3】最も酸度の低い触媒 (cat 3) の初期変換率を示す線図。

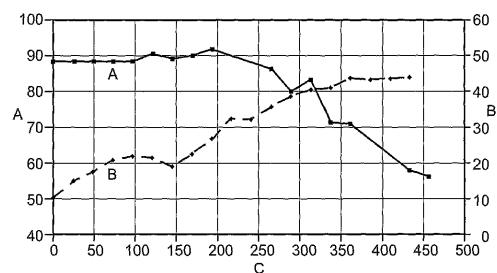
【図4】約 400 および 1.5 バール絶対の圧力で、触媒の不活性化なしに 90 % 超の全変換率で 1500 時間を超える運転時間を示す線図。

【符号の説明】

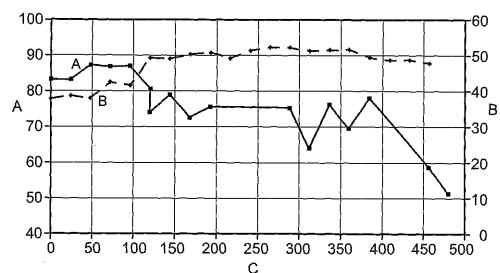
【0052】

A = 変換率 [%]、B = 有機析出部 [質量 %]、C = 運転時間 [h]

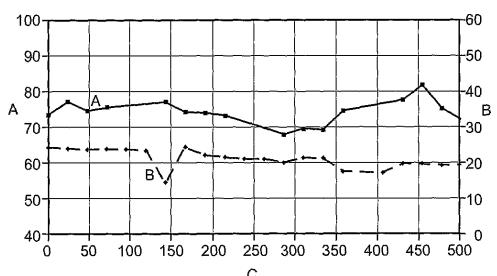
【図1】
FIG.1



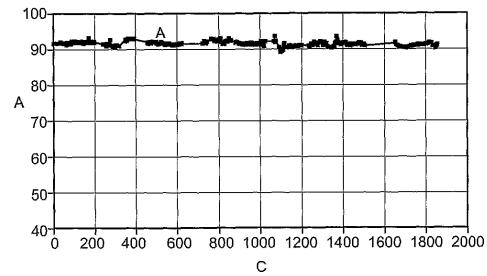
【図2】
FIG.2



【図3】
FIG.3



【図4】
FIG.4



フロントページの続き

(74)代理人 100114890
弁理士 アインゼル・フェリックス=ラインハルト
(74)代理人 230100044
弁護士 ラインハルト・アインゼル
(72)発明者 クリストイアン クールス
ドイツ連邦共和国 ハイデルベルク アルテ エッペルハイマー シュトラーセ 16
(72)発明者 エッケハルト ダンツ
ドイツ連邦共和国 ルートヴィッヒスハーフェン ヘルマン-ヘッセ-シュトラーセ 42
(72)発明者 ヴォルフガング シュタイナー
ドイツ連邦共和国 フリーデルスハイム ハウプトシュトラーセ 38
(72)発明者 ラルフ-トーマス ラーン
ドイツ連邦共和国 マンハイム カナビヒシュトラーセ 8
(72)発明者 トーマス グラスラー
ドイツ連邦共和国 リムブルガーホーフ ランダウアー シュトラーセ 8
(72)発明者 ライナー ガイナー
ドイツ連邦共和国 マンハイム シュールシュトラーセ 45
(72)発明者 クラウス ハルト
ドイツ連邦共和国 アルトライニンゲン シュターレンヴェーク 6
(72)発明者 マルクス ヘルツレ
ドイツ連邦共和国 キルヒハイム ヴァインシュトラーセ ズュート 6ハ-

審査官 榎本 佳子

(56)参考文献 英国特許出願公開第01092762(GB, A)
特開平08-027126(JP, A)

(58)調査した分野(Int.Cl., DB名)

C07D 251/60
CAplus/REGISTRY(STN)