

(19) 日本国特許庁(JP)

## (12) 特許公報(B2)

(11) 特許番号

特許第4642328号  
(P4642328)

(45) 発行日 平成23年3月2日(2011.3.2)

(24) 登録日 平成22年12月10日(2010.12.10)

(51) Int.Cl.

C07D 251/32 (2006.01)  
C07D 251/34 (2006.01)

F 1

C07D 251/32  
C07D 251/34

D

請求項の数 1 外国語出願 (全 9 頁)

(21) 出願番号 特願2003-190279 (P2003-190279)  
 (22) 出願日 平成15年7月2日 (2003.7.2)  
 (65) 公開番号 特開2004-250429 (P2004-250429A)  
 (43) 公開日 平成16年9月9日 (2004.9.9)  
 審査請求日 平成18年6月20日 (2006.6.20)  
 (31) 優先権主張番号 10229780-0  
 (32) 優先日 平成14年7月3日 (2002.7.3)  
 (33) 優先権主張国 ドイツ(DE)

(73) 特許権者 591063187  
 バイエル アクチエンゲゼルシャフト  
 B a y e r A k t i e n g e s e l l s  
 c h a f t  
 ドイツ連邦共和国レーフエルクーゼン (番  
 地なし)  
 D - 5 1 3 6 8 L e v e r k u s e n ,  
 G e r m a n y  
 (74) 代理人 100100158  
 弁理士 鮫島 瞳  
 (74) 代理人 100107180  
 弁理士 玄番 佐奈恵

最終頁に続く

(54) 【発明の名称】モノマー含有量の少ないTDI三量体の製造方法

## (57) 【特許請求の範囲】

## 【請求項 1】

イソシアヌレート基を含み、モノメリックジイソシアネートを0.1重量%未満含み、2,4-及び/もしくは2,6-ジイソシアナトトルエンに基づく、溶媒含有及び/もしくは希釈剤含有ポリイソシアネートの製造方法であって、

ジイソシアネート成分、溶媒及び/もしくは希釈剤、及びジアルキルアミノメチル基を含むフェノール系触媒を配合して、混合物を形成すること、

ここで、混合物は、20~80重量%のジイソシアネート成分を含んで成り、

ジイソシアネート成分は、少なくとも80重量%の2,4-及び/もしくは2,6-ジイソシアナトトルエンを含み、

混合物は、20~80重量%の溶媒及び/もしくは希釈剤を含んで成り、

ジアルキルアミノメチル基を含むフェノール系触媒は、一つの分子中にフェノール性水酸基とN,N-ジアルキルアミノメチル基を含み、N,N-ジアルキルアミノメチル基はフェノール性水酸基を有する芳香環に結合するものである

脂肪族水酸基及びウレタン基が存在しない条件で、70~120の温度で、混合物中で、ジイソシアネート成分の触媒三量化を行うこと、並びに

その後反応を終了すること、場合により、触媒毒を用いて反応を停止することを含んで成る製造方法。

## 【発明の詳細な説明】

## 【技術分野】

10

20

## 【0001】

本発明は、2,4-及び2,6-ジイソシアナトトルエン(TDI)に基づくモノマー含有量の少ない(又は低い)三量体の新規な製造方法及びコーティングについてそれらの使用に関する。

## 【背景技術】

## 【0002】

イソシアヌレート基を含有するポリイソシアネートの製造は、従来から既知であり、多数の刊行物及び特許に記載されている(Houben-Weyl, Methoden der organischen Chemie Volume 8, p. 136 ff., Georg Thieme verlag Stuttgart 1952; H. Wagner, H. F. Sarx, Lackkunstharze 5th Edition, page 153 ff., Carl Hanser Verlag Munich 1971; ドイツ国特許明細書 DE-A 4 428 107, 米国特許明細書 US-PS 2,993,870; ドイツ国特許明細書 DE-C 1 201 992; ドイツ国特許明細書 DE-A 2 452 532; J. prakt. Chem. 336, pp. 1 85 - 200, 1994)。脂肪族ジイソシアネートに基づく三量体と芳香族ジイソシアネートに基づく三量体の両者は、一般的に、塗料ベース材料として、また、ポリウレタンエラストマー及びポリウレタンフォームとして用いられる。10

## 【0003】

労働衛生の観点から、モノマーの含有量の少ない(又は低い)三量体生成物グレードが好ましい。モノマーのほとんど大部分がより高オリゴマーイソシアヌレートに転化するまで、三量化反応後に過剰のモノマーを蒸留で分離すること又は高転化率に向けて三量化反応で攪拌することによって、これらの生成物を製造する。2,4-トルエンジイソシアネートの場合のように、使用するジイソシアネートが、反応性の異なる二つのイソシアネート基を有する場合、後者の方は特にうまくゆく。この種の溶媒含有生成物は、モノメリックTDI(トルエンジイソシアネートの異性体の合計)の含有量が0.5%より低いもの(例えば、Desmodur(登録商標)IL, バイエル社の製品、酢酸ブチル中50%、NCO含有量:8.0%)を用いて、この方法で製造することができる。20

## 【0004】

TDI系生成物の分類がより厳密にされた結果、実質的にモノマーを含まないグレード、即ち、TDI含有量が0.1%より低い製品についての興味が、急激に表面化してきた。この目的を達成するために、TDI系コーティングシステムの出発ベース材料は、TDIの含有量が実質的に0.5重量%より少なくなければならず、0.1重量%より少ないことが好ましい。30

## 【0005】

主に、単に、三量化を継続してより高い転化率及びより高い分子量にすることで、この目的を達成することができる。しかし、これは、粘度増加をもたらし、一方、これによってイソシアネート反応点がより減少した生成物をもたらす。更に、増加範囲において、他の塗料ベース材料と混合する場合、相溶性がこの方法で好ましくない影響を受ける。

## 【0006】

他の方法で、モノマーの含有量を減少させる多くの試みがある。平衡をシフトするために三量体のための溶媒を使用しないことが、例えば、日本国特許明細書JP-A 56059828に記載されている。「薄膜TDI三量体(thin-filmed TDI trimers)」のための蒸留プロセス(例えば、ドイツ国特許明細書DE-A 3 420 923、DE-A 19 618 230)及び例えば、次のウレタン化反応等の前処理もしくは後処理工程を用いるプロセスが、文献に記載されている(米国特許明細書US-A 3,384,624、ドイツ国特許明細書DE-A 3 928 503、DE-A 2 414 413、DE-A 19 523 657)。低温で選択的に三量化するため特に温和な方法が検討されている(日本国特許明細書JP-A 63 260 915)。しかし、上述した全ての方法は、極めて複雑で、しばしば複数工程の商業的な方法をもたらし、極めて長時間の反応時間を必要とし、それゆえに空間/時間収率に劣り、及び/もしくは実験室段階から商業スケールに移行することができない。40

## 【0007】

欧洲特許明細書EP-A 0 416 338は、とりわけマンニッヒ塩基を用いる、塗料溶媒中で50

のTDIの触媒三量化を開示する。しかし、本質的で必須のものとして記載されているアルコールの付加が、ウレタン基の形成をもたらし、ウレタン基は三量化反応に強い共触媒作用を発揮し、その結果低TDI含有量を達成するために必要な選択性を壊す。これと同様に、アルコールと他の触媒系の組み合わせが開示されている（例えば、米国特許明細書US-A 5,905,151）。しかし、モノマーの含有量が0.1%未満の生成物を得ることはできなかった。

#### 【0008】

ドイツ国特許明細書DE-A 2 452 532は、とりわけマンニッヒ塩基を用いるTDIの三量化を同様に開示する。この場合発明に必須のものは、カルバミン酸エスエルであり、触媒系を不活性化する高温をもたらし、その結果反応の「暴走」を防止する。しかし、モノマー含有量の高い生成物のみが得られ、実質的にモノマーを含まないTDI三量体グレードを得られない。

#### 【発明の開示】

#### 【発明が解決しようとする課題】

#### 【0009】

##### 発明の簡潔な要約

従って、本発明の目的は、追加の製造工程又はモノメリックなTDIの物理的な分離を含まない、実質的にモノマーを含有しないTDI三量体溶液の簡単な製造方法を提供することである。

#### 【課題を解決するための手段】

#### 【0010】

本発明の目的は、以下により詳細に説明する本発明の製造方法を用いて達成された。

#### 【0011】

本発明は、イソシアヌレート基を含み、0.1重量%未満のモノメリックジイソシネートを含み、2,4-及び/もしくは2,6-ジイソシアナトトルエンに基づく、溶媒含有及び/もしくは希釈剤含有ポリイソシアネートの製造方法であって、

A)少なくとも80重量%の2,4-及び/もしくは2,6-ジイソシアナトトルエンを含む20~80重量%のジイソシアネート成分と

B)20~80重量%の溶媒及び/もしくは希釈剤と

C)ジアルキルアミノメチル基を含むフェノール系触媒との混合物中で、

55~120の温度で、脂肪族の水酸基及びウレタン基が存在しない条件で、触媒三量化反応を行い、その後、適切であれば触媒毒を用いて反応を止めることで、反応を終了することを特徴とする製造方法を提供する。

#### 【0012】

本発明の製造方法は、イソシアヌレート基を含み、好ましくは遊離のTDIを0.10%未満、より好ましくは遊離のTDIを0.05%未満含むポリイソシアネート溶液を製造するために用いられる。

#### 【発明を実施するための形態】

#### 【0013】

ここで、他に特に明示しない限り、全ての数値の範囲、量、値及び百分率、例えば、材料の量、反応時間及び反応温度、量の比、分子量の値及びその他は、明細書の以下の部分において、たとえ用語「約」が、明示的に値、量又は範囲に付されていなくても、まるで用語「約」がその前に付されているように読んでよい。

#### 【0014】

ジイソシアネート成分A)として、場合により20重量%まで、好ましくは10重量%まで、イソシアネート基を含有する他の化合物を含む2,4-ジイソシアナトトルエン及び/もしくは2,6-ジイソシアナトトルエンを使用することができる。これらは、単独で又は相互に混合して使用することができる。

#### 【0015】

10

20

30

40

50

ジイソシアネート成分A)として、2,4-及び2,6-ジイソシアナトルエンの混合物は、3:2~9:1の重量比で用いることが好ましい。

#### 【0016】

ジイソシアネート成分A)として、2,4-及び/もしくは2,6-ジイソシアナトルエンは、適当な場合、

例えば、ステアリルイソシアネート、ナフチルイソシアネート等の、脂肪族に、脂環族に、芳香脂肪族に又は芳香族に結合したイソシアネート基を有するモノイソシアネート、

例えば、1,4-ジイソシアナトブタン、1,6-ジイソシアナトヘキサン(HDI)、2-メチル-1,5-ジイソシアナトペンタン、1,5-ジイソシアナト-2,2-ジメチルペンタン、2,2,4-もしくは2,4,4-トリメチル-1,6-ジイソシアナトヘキサン、1,10-ジイソシアナトデカン、1,3-及び1,4-ジイソシアナトシクロヘキサン、1,3-及び1,4-ビス(イソシアナトメチル)シクロヘキサン、1-イソシアナト-3,3,5-トリメチル-5-イソシアナトメチルシクロヘキサン(イソホロンジイソシアネート、IPDI)、4,4'-ジイソシアナトジシクロヘキシリメタン、1-イソシアナト-1-メチル-4(3)-イソシアナトメチルシクロヘキサン(IMCI)、ビス(イソシアナトメチル)ノルボルナン、2,4'-及び4,4'-ジイソシアナトジフェニルメタン及びそのより高次の同族体、1,5-ジイソシアナトナフタレン、ジプロピレングリコールジイソシアネート等の、脂肪族に、脂環族に、芳香脂肪族に又は芳香族に結合したイソシアネート基を有するジイソシアネート、

例えば、4-イソシアナトメチル-1,8-オクタンジイソシアネート(ノナントリイソシアネート)、1,6,11-ウンデカントリイソシアネート等のトリイソシアネート及び/もしくはより高官能価のイソシアネート、又は

そのようなイソシアネート化合物のいずれかの所望の混合物並びに上述のジイソシアネート及びトリイソシアネートから誘導される変性イソシアネート化合物として既知のもの、並びに例えば三量化等のオリゴマー化反応によって製造されるものを含んでよい。

#### 【0017】

2,4-及び2,6-トルエンジイソシアネートの混合物を用いることが好ましい。

#### 【0018】

溶媒B)として、例えば、トルエン、キシレン、シクロヘキサン、クロロベンゼン、酢酸ブチル、酢酸エチル、エチルグリコールアセテート(又はエチレングリコールアセテート)、ペンチルアセテート、ヘキシルアセテート、メトキシプロピルアセテート、テトラヒドロフラン、ジオキサン、アセトン、N-メチルピロリドン、メチルエチルケトン、ホワイトスピリット、例えば、商品名 Solvent Naphtha(登録商標)、Solvesso(登録商標)、Shell sol(登録商標)、Isopar(登録商標)、Nappar(登録商標)及びDiasol(登録商標)のもとで市販されているもの等の置換の程度がより高い芳香族、重質ベンゼン(heavy benzene)、テトラリン、デカリル及び炭素原子数が6より多いアルカン、例えばフル酸エステル、スルホン酸エステル及びリン酸エステル等の常套の可塑剤、並びにそのような溶媒と希釈剤の混合物等のポリウレタン化学において常套の希釈剤及び溶媒を使用することができる。ここで、希釈剤と溶媒の濃度は、20~80重量%、好ましくは40~60重量%に設定することが好ましい。

#### 【0019】

溶媒B)として、更に、例えば、ドイツ国特許明細書DE-A 4 428 107に記載されているような脂肪族ジイソシアネートに基づくポリイソシアネートも適する。これを用いると、容易に蒸発可能な溶媒又は希釈剤を含まない、希釈されたモノマー含有量の低いTDI三量体を得ることができる。

#### 【0020】

三量化反応を開始し促進するために適するフェノール系触媒C)は、たとえ相当高温においても、選択的なTDIの結合をもたらす、いわゆる負の温度効果を有する特定の系を含む。この種の触媒系は、フェノール性水酸基と芳香族に結合したN,N-ジアルキルア

10

20

30

40

50

ミノ - メチル基（アルキル：酸素もしくは硫黄によって分断されていてもよい、18までの炭素原子を有する独立したアルキレン鎖又はアルキル鎖）を有する。これらの基は、二もしくはそれ以上の分子に分布してもよいし、また、一もしくはそれ以上の芳香族（もしくはベンゾリック芳香族）に位置してよい。触媒系として一つの分子中に水酸基とジアルキルアミノメチル基の両者を含む化合物を用いることが好ましい。ジアルキルアミノメチル基（アルキル = C<sub>1</sub> ~ C<sub>3</sub> 鎖）が芳香族水酸基のオルト位に位置する系を使用することが特に好ましい。上述したような例には、下記のマンニッヒ塩基、例えば、ドイツ国特許明細書 DE-A 2 452 531 に記載された、188重量部のフェノールと、720重量部の25%強のジメチルアミン水溶液及び425重量部の40%強のホルムアルデヒド溶液とを、80°で2時間加熱して反応させ、水相を分離して、有機相を90° / 10 torrで蒸留することによって得られる、例えば、フェノール、p-イソノニルフェノールもしくはビスフェノールAに基づいて得られるようなマンニッヒ塩基が含まれる。  
10

## 【0021】

本発明の三量化反応は、芳香族イソシアネートの三量化では珍しい、55~120°という高温で行うが、70~110°で行なうことが好ましく、75~90°で行なうことがより好ましい。

## 【0022】

本発明の三量化反応は、高温で有利な選択性の増加を達成するために、脂肪族性水酸基を有するアルコールとそれから形成されるウレタン基が存在しない条件下で行われる。

## 【0023】

触媒C)は、純物質として、又は溶液として、適当であれば二つもしくはそれ以上の小さな部分に分けて使用される。製造のために、活性な触媒は全部で、0.003~2.0重量%、好ましくは0.01~0.5重量%使用される。反応時間は、一般的に1~100時間であり、10~25時間が好ましい。  
20

## 【0024】

三量化反応は、例えば、プロトン酸、酸クロライド、又はメチルトルエンスルホネート等のメチル化剤等の触媒毒を加えることによって停止することが好ましい。

## 【0025】

驚くべきことに、本発明に基づく温度範囲においてTDIの三量化に関する特定の触媒C)を用いる本発明の製造方法の場合、一般的な既知の教示に反する効果が観察され、それは、相当高い温度で、より選択性的なモノマーの結合をもたらした。本発明に基づく製造方法では、驚くべきことに、たとえ2,6-TDIを用いたとしても、実質的にモノマーを含まないTDI三量体溶液を製造することができる。  
30

## 【0026】

更に、三量化反応の終了後、反応生成物を、低分子量及び/もしくはポリメリックな水酸基含有化合物を用いて更に変性してよい。

## 【0027】

本発明の製造方法によって製造されたポリイソシアネートは、周囲の湿気の影響で硬化可能なコーティング材料を製造するために使用することが好ましい。それらは同様に、接着促進剤、接着剤、印刷インク、シーラント及びポリウレタン成型品を製造する際に、また製造するために使用することができ、これらの生成物を製造するための配合物に、また、塗料及びコーティングを製造するための配合物に加えてよい。それらは、自体既知のイソシアネート反応性化合物を用いる2成分系の架橋剤として使用することがより好ましい。これらには、例えば、ヒドロキシ官能性ポリエーテル、ポリエステル、ポリアミド、ポリカーボネート、ポリアクリレート、ポリブタジエン、及び上述のヒドロキシ官能性ポリマーのハイブリッド（もしくは混合）形態が含まれる。低分子量ジオール及びポリオール、ダイマー脂肪アルコール及びトライマー脂肪アルコール、及びアミノ官能性化合物も2成分系に使用できる。ロックされたイソシアネート反応性化合物を用いて、一成分系を配合することもできる；同様に、本発明の製造方法を用いて製造される生成物もコーティング材料のロックされた形態に使用してよい。この場合、約200°までの相当高い  
40

温度で乾燥を行う。

**【0028】**

本発明の製造方法による生成物の他に、他の助剤及び添加剤、例えば、常套の湿潤剤、均展剤、皮張り防止剤、消泡剤、溶剤、つや消し剤（シリカ、アルミニウムシリケート及び高沸点のワックス等）、粘度調整剤、顔料、色素、紫外線吸収剤、熱と酸化劣化に対する安定剤等をコーティングに用いることができる。

**【0029】**

得られたコーティング材料は、例えば、木材、プラスチック、革、紙、織物、ガラス、セラミック、石こう、石（もしくは煉瓦）、金属又はコンクリート等のいずれかの所望の基材をコートするために使用できる。それらは、吹き付け（もしくは噴霧）、はけ塗り、流し塗り、流し込み、浸漬及びロール塗り等の常套の塗工方法を用いて塗工できる。コーティング材料を、クリアコート材料の形態で、また、顔料を加えた塗料の形態で、使用してよい。  
10

**【0030】**

本発明の生成物から製造されるコーティングは、20で、2、3分から数時間の期間で一般に硬化して、高品質のコーティングを形成する。一方で、より低温（-5まで）で、又は200までのより高温で促進された形態で、硬化することができる。

以下、本発明の主な好ましい態様を記載する。

1.

イソシアヌレート基を含み、モノメリックジイソシアネートを0.1重量%未満含む、  
2,4-及び/もしくは2,6-ジイソシアナトトルエンに基づく、溶媒含有及び/もしくは希釈剤含有ポリイソシアネートの製造方法であって、  
20

a) 溶媒成分と触媒成分の存在下、ジイソシアネート成分の触媒三量化を行うこと；  
ここで、混合物を形成するために配合するが、

混合物は、20～80重量%のジイソシアネート成分を含んで成り、

ジイソシアネート成分は、少なくとも80%の2,4-及び/もしくは2,6-ジイソシアナトトルエンを含み、  
30

混合物は、20～80重量%の溶媒及び/もしくは希釈剤を含んで成り、

混合物は、ジアルキルアミノメチル基を含むフェノール系触媒を含んで成り、及び、

脂肪族水酸基及びウレタン基が存在しない条件で、55～120の温度で、触媒三量化を行い、並びに  
30

b) その後反応を終了すること、場合により、触媒毒を用いて反応を停止することを含んで成る製造方法。

2.

ジアルキルアミノメチル基（アルキル基=C<sub>1</sub>～C<sub>3</sub>の鎖状）とフェノール性水酸基が、一分子内に位置する触媒を用いる上記1.に記載の製造方法。

3.

ジメチルアミン及びホルムアルデヒドとの反応によるフェノール、p-イソノニルフェノール又はビスフェノールAに基づくマンニッヒ塩基として得られる触媒を用いる上記1.に記載の製造方法。  
40

4.

出発ジイソシアネートとして、3：2～9：1の重量比の2,4-及び/もしくは2,6-ジイソシアナトトルエンの混合物を使用する上記1.に記載の製造方法。

5.

出発ジイソシアネートとして、2,4-ジイソシアナトトルエンを使用する上記1.～3.のいずれかに記載の製造方法。

6.

上記1.に記載のイソシアネート基を含むポリイソシアネートを、配合物に加えることを含む、ポリウレタン塗料、コーティング、接着剤、印刷インキ、シーラント及びポリウレタン成型品の製造方法。  
50

## 【実施例】

## 【0031】

「部」及び「%」として記載した全ての数字は、重量による。NCO含有量は、当業者に既知であるように、滴定によって測定した。

## 【0032】

## 比較例1

(本発明の実施例ではない。欧洲特許明細書 EP-A 0 416 338 の実施例1を詳細に再検討したものである。)

攪拌機付き反応器内で、375 g の Desmodur (登録商標) T80 (80%の2,4-ジイソシアナトトルエンと20%の2,6-ジイソシアナトトルエンの混合物) を19.8 g の2-エチルヘキサノールと50で混合し、混合物のNCO含有量が4.4%となるまで攪拌した。その後、394 g の酢酸ブチルを用いて希釈し、1.0 g の触媒溶液(フェノール/ジメチルアミンに基づくマンニッヒ塩基の40%強キシレン溶液)と混合し、攪拌した。3、8及び12時間後、各々の場合に0.7 g の触媒溶液を、更に触媒作用をさせるために加え、NCO含有量が8.05%に低下するまで、混合物を50で10時間攪拌した。三量化反応の終わりに、得られた生成物に1.0 g のメチルトルエンスルホネートを混合し、80で1時間加熱した。生成物は、下記の特性を有していた：

NCO含有量： 7.95%

固形分： 50%

23の粘度： 1250 mPa·s

遊離のTDI含有量： 0.35% (GCを用いて測定した)

## 【0033】

## 実施例1 (本発明に基づく製造方法)

攪拌機付き反応器内で、500 g の酢酸ブチルと500 g の2,4-ジイソシアナトトルエンを、1.5 g の触媒溶液(キシレン中ビスフェノールA/ジメチルアミンに基づくマンニッヒ塩基の40%強溶液の希釈物(酢酸ブチル中40%))と75で混合し、攪拌した。4、8及び12時間後に、次の触媒を半量で加え、NCO含有量が8.1%に低下するまで、75で10時間混合物を攪拌した。三量化反応の終わりに、得られた生成物に1.5倍の重量(加えた触媒の量に基づく)のメチルトルエンスルホネートを混合し、80で1時間加熱した。生成物は、下記の特性を有していた：

NCO含有量： 8.07%

固形分： 50%

23の粘度： 1300 mPa·s

遊離のTDI含有量： <0.03% (GCを用いて測定した)

## 【0034】

## 実施例2 (本発明に基づく製造方法)

攪拌機付き反応器内で、500 g の酢酸ブチルと500 g (1.35当量) の Desmodur (登録商標) T80 (80%の2,4-ジイソシアナトトルエンと20%の2,6-ジイソシアナトトルエンの混合物) を、1.34 g の触媒(キシレン中ビスフェノールA/ジメチルアミンに基づくマンニッヒ塩基の40%強溶液の希釈物(酢酸ブチル中40%))と80で混合し、攪拌した。3、8、10及び14時間後に、最初の触媒の30%の量の触媒を加え、NCO含有量が8.05%に低下するまで、80で更に6時間混合物を攪拌した。三量化反応の終わりに、得られた生成物に1.5倍の重量(加えた触媒の量に基づく)のメチルトルエンスルホネートを混合し、80で1時間加熱した。生成物は、下記の特性を有していた：

NCO含有量： 8.02%

固形分： 50%

23の粘度： 1250 mPa·s

遊離のTDI含有量： 0.04% (GCを用いて測定した)

## 【0035】

10

20

30

40

50

本発明を説明することを目的として、詳細に本発明を説明したが、そのような詳細な説明は、単にその目的のためであり、特許請求の範囲によって制限され得ることを除いて、本発明の精神と範囲から離れることなく、当業者であれば変更することができる事が理解される。

---

フロントページの続き

(72)発明者 マルティン・ブーム

ドイツ連邦共和国 5 1 5 1 9 オーデンタル、キュッヒエンベルガー・シュトラーセ 6 7 番

(72)発明者 ヨアヒム・ジモン

ドイツ連邦共和国 4 0 5 8 9 デュッセルドルフ、アム・プロイッヒグラーベン 6 2 デー番

(72)発明者 オスヴァルト・ヴィルメス

ドイツ連邦共和国 5 1 0 6 1 ケルン、エトムント - テル - メア - シュトラーセ 2 8 番

(72)発明者 ユルゲン・ヴァロシェク

ドイツ連邦共和国 5 3 8 1 9 ノインキルヒエン、ボーゲンシュトラーセ 1 6 番

審査官 濱下 浩一

(56)参考文献 特開昭 5 2 - 0 6 3 9 9 9 ( J P , A )

特開平 0 8 - 0 2 7 1 2 3 ( J P , A )

特開平 0 3 - 0 9 3 8 2 5 ( J P , A )

(58)調査した分野( Int.CI. , D B 名)

C07D 251/32

C07D 251/34

CAplus/REGISTRY(STN)