

(12) 特許協力条約に基づいて公開された国際出願

(19) 世界知的所有権機関
国際事務局

(43) 国際公開日
2024年12月12日(12.12.2024)



(10) 国際公開番号

WO 2024/253034 A1

(51) 国際特許分類:

C07D 201/12 (2006.01) C07D 223/10 (2006.01)
C07B 61/00 (2006.01) C08J 11/28 (2006.01)

(21) 国際出願番号: PCT/JP2024/020008

(22) 国際出願日: 2024年5月31日(31.05.2024)

(25) 国際出願の言語: 日本語

(26) 国際公開の言語: 日本語

(30) 優先権データ:

特願 2023-094935 2023年6月8日(08.06.2023) JP

(71) 出願人: 三菱瓦斯化学株式会社(MITSUBISHI GAS CHEMICAL COMPANY, INC.) [JP/JP]; 〒1008324 東京都千代田区丸の内二丁目5番2号 Tokyo (JP).

(72) 発明者: 青柳 直人(AOYAGI Naoto); 〒1258601 東京都葛飾区新宿6丁目1番1号 三菱瓦斯

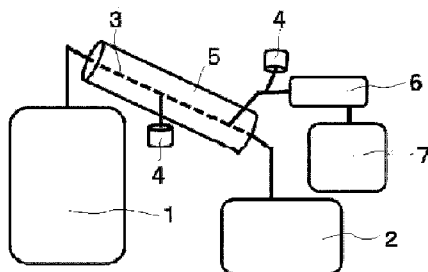
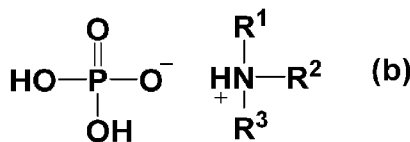
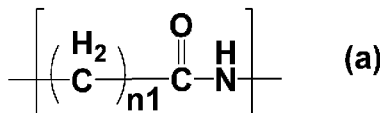
化学株式会社 東京研究所内 Tokyo (JP). 徳田 由佳(TOKUDA Yuka); 〒1258601 東京都葛飾区新宿6丁目1番1号 三菱瓦斯化学株式会社 東京研究所内 Tokyo (JP). 平山 有恒(HIRAYAMA Arinobu); 〒5100886 三重県四日市市日永東二丁目4番16号 三菱瓦斯化学株式会社 四日市工場内 Mie (JP).

(74) 代理人: 弁理士法人特許事務所サイクス(SIKS & CO.); 〒1040031 東京都中央区京橋一丁目8番7号 京橋日殖ビル8階 Tokyo (JP).

(81) 指定国(表示のない限り、全ての種類の国内保護が可能): AE, AG, AL, AM, AO, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BH, BN, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CL, CN, CO, CR, CU, CV, CZ, DE, DJ, DK, DM, DO, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, GT, HN, HR, HU, ID, IL, IN, IQ, IR, IS, IT, JM, JO, JP, KE, KG,

(54) Title: METHOD FOR PRODUCING CYCLIC LACTAM AND DEVICE FOR PRODUCING CYCLIC LACTAM

(54) 発明の名称: 環状ラクタムの製造方法、および、環状ラクタムの製造装置



(57) Abstract: The present invention provides a method for producing a cyclic lactam and a device for producing a cyclic lactam which make it possible to produce a cyclic lactam with good yield. Provided is a method for producing a cyclic lactam wherein a polyamide resin that has a repeating unit represented by formula (a) is subjected to a depolymerization reaction using a compound represented by formula (b). In formula (a), n1 is an integer of 3-22. The value of n1 may differ for each repeating unit. In formula (b), R¹ to R³ are each independently a hydrogen atom or a C1-22 aliphatic group, at least one of R¹ to R³ is a C5-22 aliphatic group, and the aliphatic groups may each independently include at least one group represented by formulae (bx1) to (bx4).

(57) 要約: 収率良く環状ラクタムを製造可能な、環状ラクタムの製造方法、および、環状ラクタムの製造装置の提供。式(a)で表される繰返単位を含むポリアミド樹脂を、式(b)で表される化合物を用いて解重合反応を行う、環状ラクタムの製造方法。式(a)中、n1は、3~22の整数である。n1は繰返単位毎に値が異なってもよい。式(b)中、R¹~R³は、それぞれ独立に、水素原子または炭素数1~22の脂肪族基であり、R¹~R³の少なくとも1つは、炭素数5~22の脂肪族基であり、前記脂肪族基は、それぞれ独立に、式(b×1)~(b×4)で表される基の少なくとも1つを含んでいてもよい。

KH, KN, KP, KR, KW, KZ, LA, LC, LK, LR, LS, LU,
LY, MA, MD, MG, MK, MN, MU, MW, MX, MY,
MZ, NA, NG, NI, NO, NZ, OM, PA, PE, PG, PH, PL,
PT, QA, RO, RS, RU, RW, SA, SC, SD, SE, SG, SK,
SL, ST, SV, SY, TH, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA,
UG, US, UZ, VC, VN, WS, ZA, ZM, ZW.

(84) 指定国(表示のない限り、全ての種類の広域保
護が可能): ARIPO (BW, CV, GH, GM, KE, LR, LS,
MW, MZ, NA, RW, SC, SD, SL, ST, SZ, TZ, UG,
ZM, ZW), ユーラシア (AM, AZ, BY, KG, KZ, RU,
TJ, TM), ヨーロッパ (AL, AT, BE, BG, CH, CY, CZ,
DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HR, HU, IE, IS,
IT, LT, LU, LV, MC, ME, MK, MT, NL, NO, PL, PT,
RO, RS, SE, SI, SK, SM, TR), OAPI (BF, BJ, CF,
CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, KM, ML, MR, NE,
SN, TD, TG).

添付公開書類：

一 国際調査報告 (条約第21条(3))

明 細 書

発明の名称：

環状ラクタムの製造方法、および、環状ラクタムの製造装置

技術分野

[0001] 本発明は、環状ラクタムの製造方法、および、環状ラクタムの製造装置に関する。特に、ポリアミド樹脂の解重合反応による、環状ラクタムの製造方法等に関する。

背景技術

[0002] 従来からポリアミド樹脂を解重合し、環状ラクタムを回収することが検討されている。

例えば、特許文献1には、 ϵ -オキシカプロン酸アミドおよび ϵ -カプロラクタムのオリゴマーを含む混合物を、リン酸類の存在下200～360℃の温度で水蒸気と接触せしめることを特徴とする前記混合物からの ϵ -カプロラク톤および ϵ -カプロラクタムの回収法が開示されている。

また、特許文献2には、ナイロン6を主成分とする熱可塑性物を解重合して、回収 ϵ -カプロラクタムを得、前記回収 ϵ -カプロラクタムを精留することを特徴とする ϵ -カプロラクタムの精製法が開示されている。

先行技術文献

特許文献

[0003] 特許文献1：特開昭49-132094号公報

特許文献2：特開平08-217746号公報

発明の概要

発明が解決しようとする課題

[0004] ここで、特許文献1には、ポリアミド樹脂の解重合に際し、触媒として、正リン酸、オルトリン酸、ピロリン酸、リン酸アンモニウム塩などのリン酸類を用いることが記載されている。また、特許文献2にも、リン酸を用いてポリアミド樹脂を解重合することが記載されている。しかしながら、本発明

者が検討を行ったところ、このようなリン酸類を用いると、生成物であるカプロラクタムの収率が低いことが分かった。

本発明はかかる課題を解決することを目的とするものであって、収率良く環状ラクタムを製造可能な環状ラクタムの製造方法、および、環状ラクタムの製造装置を提供することを目的とする。

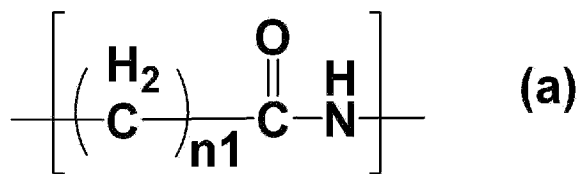
課題を解決するための手段

[0005] 上記課題のもと、本発明者が検討を行った結果、ポリアミド樹脂の解重合反応を、リン酸アンモニウム塩を用いて行うことにより、上記課題を解決することを見出した。

具体的には、下記手段により、上記課題は解決された。

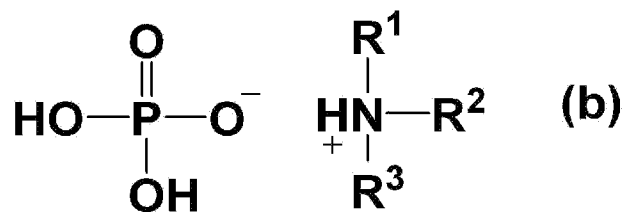
<1>式(a)で表される繰返単位を含むポリアミド樹脂を、式(b)で表される化合物を用いて解重合反応を行う、環状ラクタムの製造方法。

[化1]



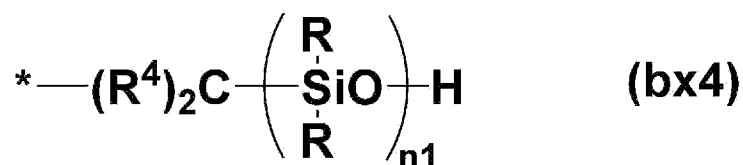
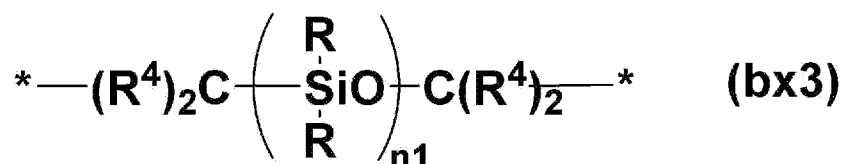
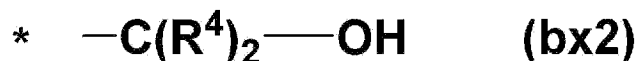
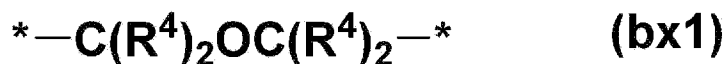
(式(a)中、n1は、3～22の整数である。n1は繰返単位毎に値が異なってもよい。)

[化2]



(式(b)中、R¹～R³は、それぞれ独立に、水素原子または炭素数1～22の脂肪族基であり、R¹～R³の少なくとも1つは、炭素数5～22の脂肪族基であり、前記脂肪族基は、それぞれ独立に、式(b×1)～(b×4)で表される基の少なくとも1つを含んでいてもよい。)

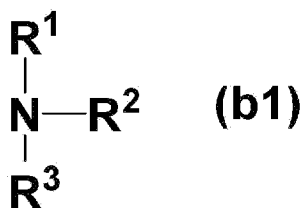
[化3]



(式 (b x 1) ~ (b x 4) 中、R は、それぞれ独立に、水素原子、メチル基またはフェニル基であり、R⁴ は、それぞれ独立に、水素原子またはメチル基であり、n 1 は、それぞれ独立に、1 ~ 150 の整数である。* は他の部位との結合部位である。)

<2>前記式 (b) のうち、式 (b 1) で構成される化合物の沸点が、製造される環状ラクタムの沸点 -10℃ 以上である、<1>に記載の環状ラクタムの製造方法。

[化4]



(式 (b 1) 中、R¹ ~ R³ は、それぞれ独立に、式 (b) における R¹ ~ R³ と同じである。)

<3>前記 $R^1 \sim R^3$ の少なくとも2つは、それぞれ独立に、炭素数5～22の脂肪族基であり、かつ、前記脂肪族基は、前記式 $(b \times 1) \sim (b \times 4)$ で表される基の少なくとも1つを含んでいてもよい、<1>または<2>に記載の環状ラクタムの製造方法。

<4>前記 $R^1 \sim R^3$ は、それぞれ独立に、炭素数5～22の脂肪族基であり、かつ、前記脂肪族基は、前記式 $(b \times 1) \sim (b \times 4)$ で表される基の少なくとも1つを含んでいてもよい、<1>～<3>のいずれか1つに記載の環状ラクタムの製造方法。

<5>前記 $R^1 \sim R^3$ としての炭素数5～22の脂肪族基は、炭素数5～22のアルキル基である、<1>～<3>のいずれか1つに記載の環状ラクタムの製造方法。

<6>前記ポリアミド樹脂100質量部に対し、前記式 (b) で表される化合物を1質量部以上用いる、<1>～<5>のいずれか1つに記載の環状ラクタムの製造方法。

<7>前記ポリアミド樹脂100質量部に対し、前記式 (b) で表される化合物を40～10,000質量部用いる、<1>～<6>のいずれか1つに記載の環状ラクタムの製造方法。

<8>前記解重合反応を圧力202.6 kPa以下で行う、<1>～<7>のいずれか1つに記載の環状ラクタムの製造方法。

<9>前記解重合反応を行いながら反応蒸留を行う、<1>～<8>のいずれか1つに記載の環状ラクタムの製造方法。

<10>前記解重合反応を行った後、蒸留を行う、<1>～<9>のいずれか1つに記載の環状ラクタムの製造方法。

<11>前記解重合反応を温度170℃～300℃で行う、<1>～<10>のいずれか1つに記載の環状ラクタムの製造方法。

<12>前記解重合反応を行うとき、過熱水蒸気を用いない、<1>～<11>のいずれか1つに記載の環状ラクタムの製造方法。

<13>前記解重合反応を行うとき、溶媒を用いないか、溶媒の量が前記式

(b) で表される化合物の量に対して 10 質量%以下である、＜1＞～＜12＞のいずれか 1 つに記載の環状ラクタムの製造方法。

＜14＞前記解重合反応を、高沸点溶媒の存在下で行い、前記高沸点溶媒の沸点が、製造物である環状ラクタムの沸点－10℃以上である、＜1＞～＜13＞のいずれか 1 つに記載の環状ラクタムの製造方法。

＜15＞前記高沸点溶媒がアルコールでない、＜14＞に記載の環状ラクタムの製造方法。

＜16＞前記解重合反応を行いながら反応蒸留を行い、
前記解重合反応を温度 170℃～300℃で行い、
前記解重合反応を行うとき、過熱水蒸気を用いず、
前記解重合反応を行うとき、溶媒を用いないか、溶媒の量が前記式 (b) で表される化合物の量に対して 10 質量%以下である、
＜1＞～＜15＞のいずれか 1 つに記載の環状ラクタムの製造方法。

＜17＞前記解重合反応を行いながら反応蒸留を行い、
前記解重合反応を温度 170℃～300℃で行い、
前記解重合反応を行うとき、過熱水蒸気を用いず、
前記解重合反応を、高沸点溶媒の存在下で行い、前記高沸点溶媒の沸点が、製造物である環状ラクタムの沸点－10℃以上であり、
前記高沸点溶媒がアルコールでない、＜1＞～＜15＞のいずれか 1 つに記載の環状ラクタムの製造方法。

＜18＞前記解重合反応を行った後、蒸留を行い、
前記解重合反応を温度 170℃～300℃で行い、
前記解重合反応を行うとき、過熱水蒸気を用いず、
前記解重合反応を行うとき、溶媒を用いないか、溶媒の量が前記式 (b) で表される化合物の量に対して 10 質量%以下である、＜1＞～＜15＞のいずれか 1 つに記載の環状ラクタムの製造方法。

＜19＞前記解重合反応を行った後、蒸留を行い、
前記解重合反応を温度 170℃～300℃で行い、

前記解重合反応を行うとき、過熱水蒸気を用いず、
前記解重合反応を、高沸点溶媒の存在下で行い、前記高沸点溶媒の沸点が、
製造物である環状ラクタムの沸点－10℃以上であり、
前記高沸点溶媒がアルコールでない、＜1＞～＜15＞のいずれか1つに記載の環状ラクタムの製造方法。

＜20＞前記ポリアミド樹脂が、ナイロン4、ナイロン5、ナイロン6、ナイロン11、および、ナイロン12からなる群より選ばれる少なくとも1種である、＜1＞～＜19＞のいずれか1つに記載の環状ラクタムの製造方法。

＜21＞反応系に、前記ポリアミド樹脂を連続的に供給して環状ラクタムの製造を行う、＜1＞～＜20＞のいずれか1つに記載の環状ラクタムの製造方法。

＜22＞前記式（b）で表される化合物を反応系に直接に供給する、＜1＞～＜21＞のいずれか1つに記載の環状ラクタムの製造方法。

＜23＞前記反応系に供給する前記式（b）で表される化合物の含水量が、式（b）で表される化合物の質量に対して100質量%以下である、＜22＞に記載の環状ラクタムの製造方法。

＜24＞前記反応系に供給した前記式（b）で表される化合物の多量体（B2）を加水分解して、反応系中で、再生された前記式（b）で表される化合物（B3）を得る、＜22＞または＜23＞に記載の環状ラクタムの製造方法。

＜25＞前記反応系に供給する前記式（b）で表される化合物として、前記再生された前記式（b）で表される化合物（B3）を使用する、＜24＞に記載の環状ラクタムの製造方法。

＜26＞＜1＞～＜25＞のいずれか1つに記載の環状ラクタムの製造方法を行う、以下の設備を有する、環状ラクタムの製造装置。

（1）前記式（a）で表される繰返単位を含むポリアミド樹脂と前記式（b）で表される化合物を含む混合物Aを加熱して解重合反応を行い、環状ラク

タムを製造し、前記式（b）で表される化合物、および、環状ラクタムを含む混合物Bを得るための反応器；

（2）前記反応器内の混合物Bから蒸発した環状ラクタムを収容するための容器；および

（3）前記反応器と前記容器とを接続し、蒸発した環状ラクタムを前記反応器から前記容器へ配送するための流路。

<27>さらに、前記反応器、前記容器、および、前記流路内を、圧力202.6kPa以下に保持するための圧力調整機器を有する、<26>に記載の環状ラクタムの製造装置。

<28>前記圧力調整機器が、前記反応器、前記容器、および前記流路からなる群より選択される少なくとも1つに接続されている、<27>に記載の環状ラクタムの製造装置。

<29>前記流路内の温度を環状ラクタムの融点以上に保持するための加温部を有する、<26>～<28>のいずれか1つに記載の環状ラクタムの製造装置。

<30>前記反応器から水分を除去する装置を有する、<26>～<29>のいずれか1つに記載の環状ラクタムの製造装置。

発明の効果

[0006] 本発明により、収率良く環状ラクタムを製造可能な、環状ラクタムの製造方法、および、環状ラクタムの製造装置を提供することが可能になった。

図面の簡単な説明

[0007] [図1]図1は、本実施形態の環状ラクタムの製造装置の一例の概略図を示す。

発明を実施するための形態

[0008] 以下、本発明を実施するための形態（以下、単に「本実施形態」という）について詳細に説明する。なお、以下の本実施形態は、本発明を説明するための例示であり、本発明は本実施形態のみに限定されない。

なお、本明細書において「～」とはその前後に記載される数値を下限値および上限値として含む意味で使用する。

[0009] 本発明における沸点とは、特に述べない限り、101.33kPaの圧力における沸点を意味する。

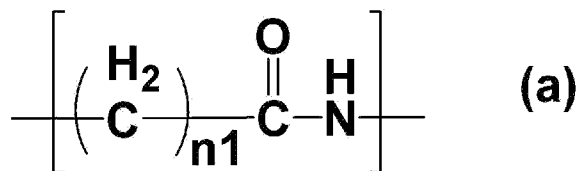
本明細書において「工程」との語は、独立した工程だけではなく、他の工程と明確に区別できない場合であってもその工程の所期の作用が達成されれば、本用語に含まれる。

本明細書で示す規格で説明される測定方法等が年度によって異なる場合、特に述べない限り、2023年1月1日時点における規格に基づくものとする。

図1は模式図であり、縮尺度などは実際と整合していないこともある。

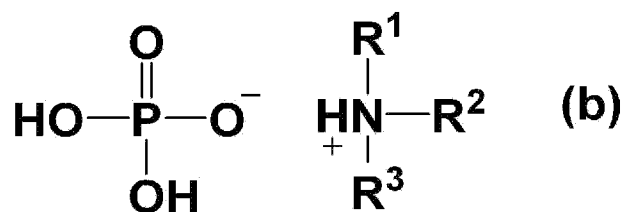
[0010] 本実施形態の環状ラクタムの製造方法は、式(a)で表される繰返単位を含むポリアミド樹脂（以下、本明細書では、ポリアミド樹脂(a)ということもある）を、式(b)で表される化合物を用いて解重合反応を行うことを特徴とする。

[化5]



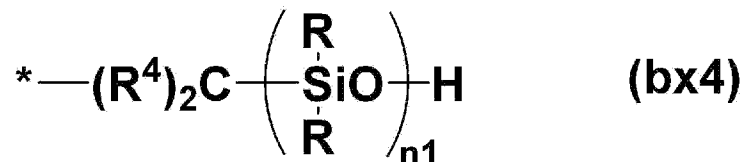
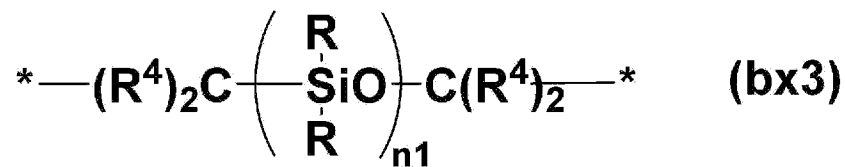
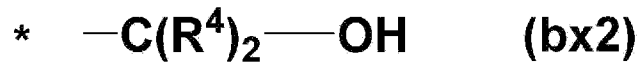
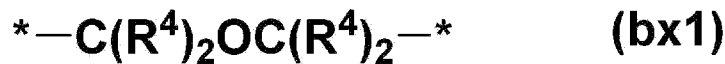
(式(a)中、n1は、3～22の整数である。n1は繰返単位毎に値が異なってもよい。)

[化6]



(式(b)中、R¹～R³は、それぞれ独立に、水素原子または炭素数1～22の脂肪族基であり、R¹～R³の少なくとも1つは、炭素数5～22の脂肪族基であり、前記脂肪族基は、それぞれ独立に、式(b×1)～(b×4)で表される基の少なくとも1つを含んでいてもよい。)

[化7]



(式 (b x 1) ~ (b x 4) 中、Rは、それぞれ独立に、水素原子、メチル基またはフェニル基であり、R⁴は、それぞれ独立に、水素原子またはメチル基であり、n 1は、それぞれ独立に、1 ~ 150の整数である。*は他の部位との結合部位である。)

このような構成とすることにより、収率良く環状ラクタムを製造可能になる。

[0011] 本実施形態の環状ラクタムの製造方法においては、通常、式 (b) で表される化合物がポリアミド樹脂 (a) の解重合温度 (例えば、170 ~ 300 °C) で液体の状態であり、また、ポリアミド樹脂 (a) が溶解した状態で解重合反応が進行する。すなわち、水を介した加水分解ではなく、ポリアミド樹脂 (a) が有する末端のアミノ基または主鎖のアミド結合が自身の1ユニット隣のアミド結合に攻撃するバックバイティング反応が進行すると推測される。また、式 (b) で表される化合物は、酸性度がマイルドであるため、アミノ基との結合力が一般的な酸よりも弱く、解重合反応時に環状アミド構

造を形成しやすい。すなわち、式（b）で表される化合物が溶媒と酸触媒を兼ねるため、収率良く環状ラクタムを製造可能になったと推測される。

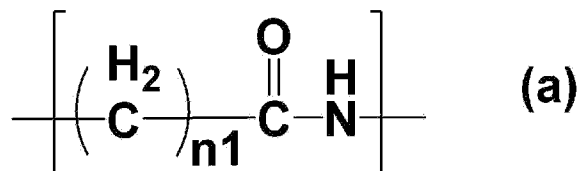
特に、式（b）で表される化合物が溶媒としても機能しうるため、水やアルコールなど、環状ラクタムよりも低沸点の溶媒を用いなくても反応が効率的に進行し、生成する環状ラクタムを単蒸留等の簡便な工程で精製できる。

以下、本発明について、詳細に説明する。

[0012] <式（a）で表される繰返単位を含むポリアミド樹脂（ポリアミド樹脂（a））>

本実施形態において、解重合反応に用いられるポリアミド樹脂（a）は、式（a）で表される繰返単位を含むものである。

[化8]



（式（a）中、n1は、3～22の整数である。n1は繰返単位毎に値が異なってもよい。）

式（a）中、n1は、4以上であることが好ましく、5以上であることがより好ましく、また、20以下であることが好ましく、18以下であることがより好ましく、16以下であることがさらに好ましく、14以下であることが一層好ましく、12以下であることがより一層好ましく、10以下であることがさらに一層好ましく、8以下であることがより一層好ましく、6以下であることが特に一層好ましい。

ポリアミド樹脂（a）における式（a）で表される繰返単位の割合は、ポリアミド樹脂（a）の全繰返単位の80質量%以上であることが好ましく、90質量%以上であることがより好ましく、95質量%以上であることがさらに好ましく、99質量%以上であることが一層好ましい。

また、ポリアミド樹脂（a）は、末端が、 $-\text{NH}_2$ および／または $-\text{COOH}$ であってもよいし、末端封止剤で封止されていてもよい。

[0013] ポリアミド樹脂（a）は、ナイロン4、ナイロン5、ナイロン6、ナイロン11、および、ナイロン12からなる群より選ばれる少なくとも1種であることが好ましく、ナイロン6であることがより好ましい。

なお、ポリアミド樹脂（a）は、環状ラクタムから合成されたものであっても、アミノカルボン酸から合成されたものであってもよいが、環状ラクタムから合成されたものであることが好ましい。また、本実施形態におけるナイロン6には、その一部（例えば5質量%以下、さらには3質量%以下、時には1質量%以下）が他のモノマーで変性されているものも含む趣旨である。他のナイロンについても同様である。

[0014] 本実施形態の環状ラクタムの製造方法においては、ポリアミド樹脂（a）を1種のみ用いてもよいし、2種以上用いてもよい。

[0015] ポリアミド樹脂（a）の粘度平均分子量は、3,000以上であることが好ましく、5,000以上であることがより好ましく、10,000以上であることがさらに好ましく、50,000以上であってもよく、また、1,000,000以下であることが好ましく、500,000以下であることがより好ましく、100,000以下であることがさらに好ましい。

粘度平均分子量は、JIS K7367に従って測定される。

[0016] 本実施形態で用いるポリアミド樹脂（a）としては、ポリアミド樹脂製品の端材や不良品、ポストコンシューマー材料、リサイクル品などを活用することができる。また、ポリアミド樹脂製品の形態についても、特に限定されるものではなく、例えば、繊維（延伸系、未延伸系）、チップ、フィルム、成形品を使用することができる。これらは、解重合反応に用いやすい形状やサイズに適宜加工されて用いることができる。

[0017] 本実施形態の環状ラクタムの製造方法において、反応系に投入される原料は、式（a）で表される繰返単位を含むポリアミド樹脂に加え、式（a）で表される繰返単位を含まないポリアミド樹脂（他のポリアミド樹脂）を含んでいてもよい。他のポリアミド樹脂としては、ナイロン66、ナイロン666、半芳香族ポリアミド樹脂などが例示される。しかしながら、本実施形態

の環状ラクタムの製造方法においては、反応系に供給されるポリアミド樹脂（a）以外の他のポリアミド樹脂は、ポリアミド樹脂（a）の5質量%以下であることが好ましく、3質量%以下であることがより好ましく、1質量%以下であることがさらに好ましい。

また、本実施形態の環状ラクタムの製造方法において、反応系に投入される原料は、ポリアミド樹脂（a）に加え、ポリアミド樹脂以外の他の熱可塑性樹脂が含まれていてもよい。他の熱可塑性樹脂としては、ポリプロピレン樹脂、ポリエチレン樹脂等のポリオレフィン樹脂、ポリエチレンテレフタレート樹脂等のポリエステル樹脂が例示される。本実施形態の環状ラクタムの製造方法においては、反応系に供給される他の熱可塑性樹脂は、ポリアミド樹脂（a）の、例えば5質量%以下、さらには3質量%以下、特には1質量%以下であってもよい。

[0018] 本実施形態の環状ラクタムの製造方法において、反応系に投入される原料は、ポリアミド樹脂（a）に加え、各種樹脂添加剤や充填材などを含んでもよい。

本実施形態において、反応系に投入される原料が各種樹脂添加剤や充填材を含む場合、これらを分離回収してもよい。

例えば、充填材が水溶性もしくは水に分散可能な微粒子の場合は、リン酸二水素トリ-*n*-オクチルアンモニウム塩等の疎水性の式（b）で表される化合物を触媒として選択し、反応蒸留終了後に、例えば、後述する図1の反応器1に水を加えて充填材を抽出し、反応器1の適切な位置に取り付けた弁から回収することができる。また、樹脂添加剤や充填材が有機溶媒に可溶な場合は、水溶性またはその有機溶媒に不溶な式（b）で表される化合物を触媒として選択し、反応終了後にその有機溶媒を用いて、回収することができる。

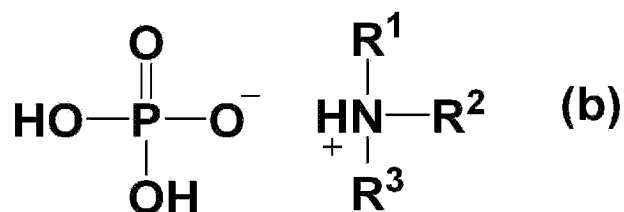
[0019] <式（b）で表される化合物>

本実施形態の環状ラクタムの製造方法においては、式（a）で表される繰返単位を含むポリアミド樹脂を、式（b）で表される化合物を用いて解重合

反応を行う。

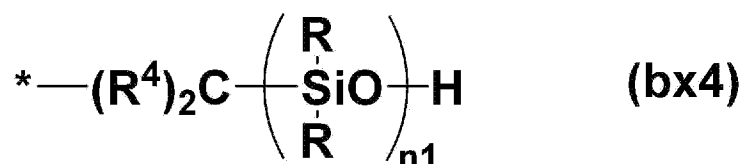
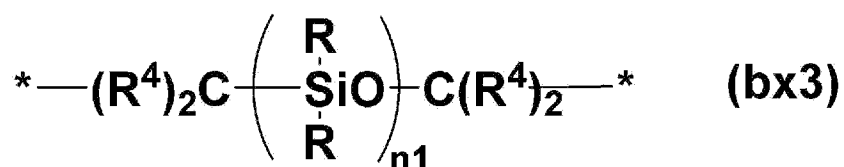
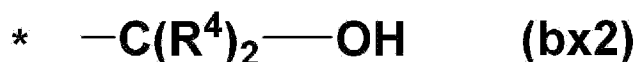
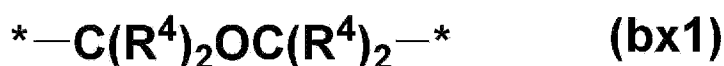
式（b）で表される化合物は、ポリアミド樹脂（a）中のアミド結合の閉環反応において、触媒として作用すると共に、ポリアミド樹脂（a）を溶解または分散するため、反応液の粘度の低下に寄与する。このため、反応液が攪拌しやすくなり、効率的に環状ラクタムを得られる。式（b）で表される化合物は反応系（例えば、反応釜）に直接に供給することが好ましい。

[0020] [化9]



（式（b）中、 $\text{R}^1 \sim \text{R}^3$ は、それぞれ独立に、水素原子または炭素数1～22の脂肪族基であり、 $\text{R}^1 \sim \text{R}^3$ の少なくとも1つは、炭素数5～22の脂肪族基であり、前記脂肪族基は、それぞれ独立に、式（bx1）～（bx4）で表される基の少なくとも1つを含んでいてもよい。）

[化10]



(式 (b x 1) ~ (b x 4) 中、R は、それぞれ独立に、水素原子、メチル基またはフェニル基であり、R⁴ は、それぞれ独立に、水素原子またはメチル基であり、n₁ は、それぞれ独立に、1 ~ 150 の整数である。* は他の部位との結合部位である。)

[0021] 式 (b) 中、R¹ ~ R³ は、それぞれ独立に、水素原子または炭素数 1 ~ 22 の脂肪族基であり、R¹ ~ R³ の少なくとも 1 つは、炭素数 5 ~ 22 の脂肪族基である。前記脂肪族基 (炭素数 1 ~ 22 の脂肪族基および炭素数 5 ~ 22 の脂肪族基) は、それぞれ独立に、式 (b x 1) ~ (b x 4) で表される基の少なくとも 1 つを含んでいてもよい。本実施形態の一例は、前記脂肪族基が式 (b x 1) ~ (b x 4) で表される基を含まないことである。

式 (b) 中、R¹ ~ R³ は、それぞれ独立に、水素原子または炭素数 1 ~ 22 の脂肪族基であり、それぞれ独立に、炭素数 1 ~ 22 の脂肪族基であることが好ましい。

前記 R¹ ~ R³ としての脂肪族基の炭素数は、3 以上であることが好ましく、5 以上であることがより好ましく、6 以上であることがさらに好ましく、7 以上であることが一層好ましく、8 以上であることがより一層好ましく、また、20 以下であることが好ましく、18 以下であることがより好ましく、16 以下であることがさらに好ましく、14 以下であることが一層好ましく、12 以下であることがより一層好ましく、10 以下であることがさらに一層好ましく、9 以下であってもよく、8 以下であってもよい。

前記 R¹ ~ R³ としての脂肪族基は、直鎖、分岐、および、環状、ならびにこれらの組み合わせからなる脂肪族基のいずれであってもよく、直鎖および／または分岐の脂肪族基であることが好ましく、直鎖の脂肪族基であることがより好ましい。

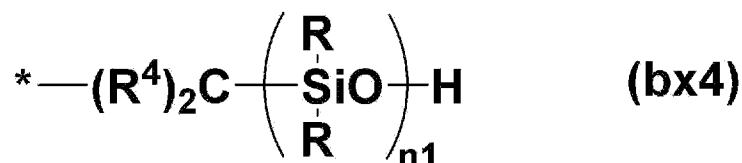
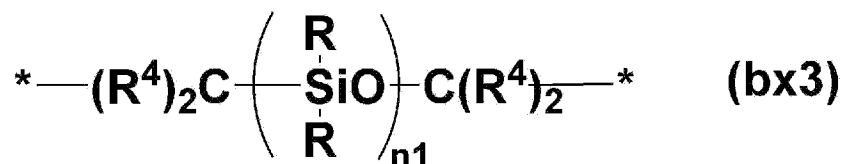
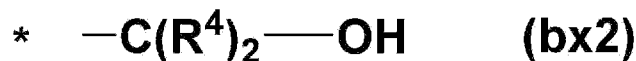
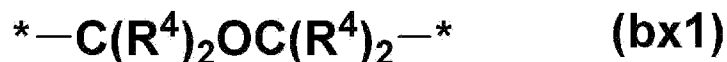
前記 R¹ ~ R³ としての脂肪族基は、アルキル基であることが好ましく、炭素数 5 ~ 22 のアルキル基であることがより好ましい。炭素数 5 ~ 22 のアルキル基の具体例としては、ペンチル基、ヘキシル基、ヘプチル基、オクチル基、ノニル基、デシル基、ウンデシル基、ドデシル基、トリデシル基、テ

トラデシル基、ペンタデシル基、ヘキサデシル基、ヘプタデシル基、オクタデシル基、ノナデシル基、1-メチルヘキシル基、2-エチルヘキシル基、1-メチルヘプチル基、2-ブチルオクチル基、2-ヘキシルデシル基、2-オクチルドデシル基、2-デシルテトラデシル基が例示される。

[0022] 式 (b) 中、 $R^1 \sim R^3$ の少なくとも1つは、炭素数5～22の脂肪族基（好ましくは炭素数5～22のアルキル基）であり、かつ、前記脂肪族基は、前記式 (b x 1) ～ (b x 4) で表される基の少なくとも1つを含んでいてもよく、 $R^1 \sim R^3$ の少なくとも2つが、それぞれ独立に、炭素数5～22の脂肪族基であり、かつ、前記脂肪族基は、前記式 (b x 1) ～ (b x 4) で表される基の少なくとも1つを含んでいてもよいことが好ましく、 $R^1 \sim R^3$ のいずれもが、それぞれ独立に、炭素数5～22の脂肪族基であり、かつ、前記脂肪族基は、前記式 (b x 1) ～ (b x 4) で表される基の少なくとも1つを含んでいてもよいことがさらに好ましい。

前記 $R^1 \sim R^3$ としての脂肪族基は、上述の通り、それぞれ独立に、前記式 (b x 1) ～ (b x 4) で表される基の少なくとも1つを含んでいてもよいが、式 (b x 1) ～ (b x 4) で表される基の1つを含むか、式 (b x 1) ～ (b x 4) で表される基のいずれも含まないことが好ましく、式 (b x 1) ～ (b x 4) で表される基のいずれも含まないことがより好ましい。

[化11]



(式 (b x 1) ~ (b x 4) 中、R は、それぞれ独立に、水素原子、メチル基またはフェニル基であり、R⁴ は、それぞれ独立に、水素原子またはメチル基であり、n 1 は、それぞれ独立に、1 ~ 150 の整数である。* は他の部位との結合部位である。)

[0023] 式 (b x 1) ~ (b x 4) 中、R は、それぞれ独立に、水素原子、メチル基またはフェニル基であり、メチル基が好ましい。

式 (b x 1) ~ (b x 4) 中、R⁴ は、それぞれ独立に、水素原子またはメチル基であり、水素原子が好ましい。

式 (b x 1) ~ (b x 4) 中、n 1 は、それぞれ独立に、1 ~ 150 の整数であり、3 以上の整数が好ましく、また、100 以下の整数が好ましく、50 以下の整数がより好ましい。n 1 が 2 以上の場合、それぞれの、繰返単位は同一であってもよいし、異なってもよい。

式 (b x 1) ~ (b x 4) 中、* は他の部位との結合部位である。式 (b x 1) ~ (b x 4) は、R¹ ~ R³ が有する脂肪族基の最も長い鎖 (主鎖) 中

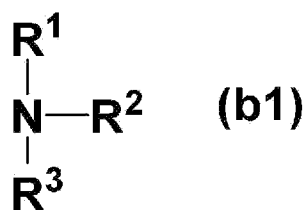
に含まれているか、末端に結合していることが好ましい。

[0024] 本実施形態においては、式 (b) で表される化合物は、式 (b) における $R^1 \sim R^3$ が、それぞれ独立に、炭素数 5 ～ 22 のアルキル基であることが好ましい。炭素数 5 ～ 22 のアルキル基については、上述した通りである。

[0025] 本実施形態においては、式 (b) のうち、式 (b 1) で構成される化合物の沸点が、製造される環状ラクタムの沸点 -10°C 以上であることが好ましく、環状ラクタムの沸点 $+10^\circ\text{C}$ 以上であることがより好ましく、環状ラクタムの沸点 $+50^\circ\text{C}$ 以上であることがさらに好ましく、環状ラクタムの沸点 $+90^\circ\text{C}$ 以上であることが一層好ましい。前記下限値以上とすることにより、解重合反応中に触媒から式 (b 1) で構成される化合物が一部遊離した場合においても、蒸留精製される環状ラクタムに式 (b 1) で構成される化合物が混入する割合を少なくでき、蒸留精製される環状ラクタムの純度が高くなる傾向にある。また、式 (b 1) で構成される化合物の沸点は、製造される環状ラクタムの沸点 $+500^\circ\text{C}$ 以下であることが好ましく、環状ラクタムの沸点 $+300^\circ\text{C}$ 以下であることがより好ましい。前記上限値以下とすることにより、解重合反応に支障が無い程度の低い粘性を維持し、効率的に環状ラクタムが生成する傾向にある。

本実施形態において、式 (b) で表される化合物を 2 種以上用いる場合など、式 (b 1) で構成される化合物が 2 種以上存在する場合、式 (b 1) で構成される化合物の沸点は、各沸点の加重平均値とする。

[化12]



(式 (b 1) 中、 $R^1 \sim R^3$ は、それぞれ独立に、式 (b) における $R^1 \sim R^3$ と同じである。)

[0026] 式 (b) で表される化合物の分子量は、280 以上であることが好ましく

、450以上であることがより好ましい。前記下限値以上とすることにより、高い触媒能により、解重合反応がより効果的に促進し、環状ラクタムをより収率良く生成できる傾向にある。また、式（b）で表される化合物の分子量は、100,000以下であることが好ましく、50,000以下であることがより好ましく、30,000以下であることがさらに好ましく、10,000以下であることが一層好ましく、5,000以下であることがより一層好ましい。前記上限値以下とすることにより、反応液の粘性がより適度なものとなり、ポリアミド樹脂（a）の溶解および解重合反応の効率がより向上する傾向にある。

[0027] 式（b）で表される化合物の具体例としては、リン酸二水素トリ－n－オクチルアンモニウム塩、リン酸二水素N，N－ジドデシルメチルアンモニウム塩等が例示される。

[0028] 本実施形態の環状ラクタムの製造方法においては、ポリアミド樹脂（a）100質量部に対し、式（b）で表される化合物の使用量（反応系への添加量）は、1質量部以上であることが好ましく、10質量部以上であることが好ましく、40質量部以上であることがより好ましく、50質量部以上であることがより好ましく、70質量部以上であることがさらに好ましく、90質量部以上であることが一層好ましく、100質量部以上であることがより一層好ましく、110質量部以上であることがさらに一層好ましい。前記下限値以上とすることにより、高い触媒能により、解重合反応がより効果的に促進し、環状ラクタムをより収率良く生成できる傾向にある。前記ポリアミド樹脂（a）100質量部に対する式（b）で表される化合物の使用量（反応系への添加量）は、10,000質量部以下であることが好ましく、1,000質量部以下であることがより好ましく、500質量部以下であることがさらに好ましく、300質量部以下であることが一層好ましく、250質量部以下であることがより一層好ましい。前記上限値以下とすることにより、原料コストおよび環状ラクタムの蒸留精製時のエネルギーの低減を図ることができる。

[0029] 本実施形態の環状ラクタムの製造方法においては、ポリアミド樹脂（a）100質量部に対し、式（b）で表される化合物のリン酸部位（ H_2PO_4^- ）の使用量（反応系への添加量）は、1質量部以上であることが好ましく、5質量部以上であることが好ましく、10質量部以上であることがより好ましく、15質量部以上であることがより好ましく、20質量部以上であることがさらに好ましく、25質量部以上であることが一層好ましく、30質量部以上であることがより一層好ましい。前記下限値以上とすることにより、高い触媒能により、解重合反応がより効果的に促進し、環状ラクタムをより収率良く生成できる傾向にある。前記ポリアミド樹脂（a）100質量部に対する式（b）で表される化合物のリン酸部位（ H_2PO_4^- ）の使用量（反応系への添加量）は、150質量部以下であることが好ましく、120質量部以下であることがより好ましく、100質量部未満であることがさらに好ましく、80質量部以下であることが一層好ましく、50質量部以下であることがより一層好ましい。前記上限値以下とすることにより、原料コストおよび環状ラクタムの蒸留精製時のエネルギーの低減、装置腐食の抑制を図ることができる。

なお、反応系にポリアミド樹脂（a）が連続的に供給され、環状ラクタムの製造を行う場合、反応系に存在する式（b）で表される化合物の量ないしリン酸部位（ H_2PO_4^- ）の量が上記範囲を満たすことが好ましい。

[0030] 本実施形態においては、反応系に供給される式（b）で表される化合物（水を含まない式（b）で表される化合物自体）の含水量が、式（b）で表される化合物の質量に対して100質量%以下であることが好ましく、50質量%以下であることがより好ましく、10質量%以下であることがさらに好ましく、1質量%以下であることが一層好ましく、0.1質量%以下であることがより一層好ましく、0.001質量%以下であることがさらに一層好ましい。前記上限値以下とすることにより、環状ラクタムの選択的生成およびその簡便な蒸留精製を図ることができる。反応系に供給される式（b）で表される化合物の含水量の下限値は、0質量%であってもよいが、例えば、

0.0001質量%以上であっても十分に要求性能を満たす。

[0031] <溶媒>

本実施形態の環状ラクタムの製造方法においては、式（b）で表される化合物がポリアミド樹脂（a）を溶解または分散させる役割を果たすため、溶媒（反応溶媒）を用いてもよいし、用いなくてもよい。

[0032] 本実施形態の環状ラクタムの製造方法における溶媒の第一形態は、ポリアミド樹脂（a）の解重合反応を行うとき、溶媒を用いないか、溶媒の量が前記式（b）で表される化合物の量に対して10質量%以下である形態である。溶媒の第一形態においては、溶媒を実質的に用いない構成としても、式（b）で表される化合物が溶媒としての役割も果たす。溶媒の第一形態においては、溶媒の量は、式（b）で表される化合物の量に対して、5質量%以下であることが好ましく、3質量%以下であることがより好ましく、1質量%以下であることがさらに好ましく、0.1質量%以下であることが一層好ましい。

上記溶媒の第一形態は、反応蒸留または反応後の蒸留による環状ラクタムの精製が容易に実施できる。また、エネルギーコストを低くできる傾向にある。

上記溶媒の第一形態においては、反応系（例えば、反応釜）に供給される物質の95質量%以上（好ましくは99質量%以上）が式（b）で表される化合物とポリアミド樹脂（a）で構成されていることが好ましい。しかしながら、反応中においては、反応系には目的物である環状ラクタムの他、生成される水、未反応のポリアミド樹脂（a）、中間生成物であるポリアミドオリゴマーなども存在することは言うまでもない。

[0033] 本実施形態の環状ラクタムの製造方法における溶媒の第二形態は、ポリアミド樹脂（a）の解重合反応を、高沸点溶媒の存在下で行い、前記高沸点溶媒の沸点が、製造物である環状ラクタムの沸点-10℃以上である形態である。高沸点溶媒を用いることにより、反応液の粘性が低下し、解重合反応が促進され、蒸留精製物（環状ラクタム）の収率が向上する傾向にある。

前記高沸点溶媒の沸点は、製造物である環状ラクタムの沸点 -5°C 以上であることが好ましく、沸点 -3°C 以上であることがより好ましく、沸点 -1°C 以上であることがさらに好ましく、沸点以上であることが一層好ましく、沸点 $+1^{\circ}\text{C}$ 以上であることがより一層好ましく、沸点 $+3^{\circ}\text{C}$ 以上であることがさらに一層好ましい。前記高沸点溶媒の沸点の上限は、製造物である環状ラクタムの沸点 $+200^{\circ}\text{C}$ 以下であることが好ましい。

また、高沸点溶媒を2種以上含む場合、最も含有量が多い溶媒の沸点とする。

高沸点溶媒の粘度は、 25°C において、 1 cSt 以上であることが好ましく、 10 cSt 以上であることがより好ましく、 20 cSt 以上であってもよく、また、 500 cSt 以下であることが好ましく、 300 cSt 以下であることがより好ましく、 100 cSt 以下であることが一層好ましい。高沸点溶媒の粘度は、JIS Z 8803に従って測定される。

[0034] 高沸点溶媒としては、ポリシロキサン類、末端封止ポリエチレングリコール類が例示され、ポリアルキルシロキサン類（アルキル基の炭素数は1～3であり、1つのSi原子に結合しているアルキル基の平均は1つまたは2つである）が好ましく、ポリジメチルシロキサンがより好ましい。

また、前記高沸点溶媒はアルコールでないことが好ましい。アルコールを用いないことにより、式（b）で表される化合物の加水分解による触媒能低下を効果的に防ぐことができる。

[0035] 本実施形態の環状ラクタムの製造方法における溶媒の第二形態において、高沸点溶媒の使用量は、式（b）で表される化合物100質量部に対し、10質量部以上であることが好ましく、50質量部以上であることがより好ましく、100質量部以上であることがさらに好ましい。前記下限値以上とすることにより、解重合反応が促進され、蒸留精製物（環状ラクタム）の収率が向上する傾向にある。また、前記高沸点溶媒の使用量の上限値は、式（b）で表される化合物100質量部に対し、1000質量部以下であることが好ましく、500質量部以下であることがより好ましく、400質量部以下

であることがさらに好ましく、300質量部以下であることが一層好ましく、200質量部以下であることがより一層好ましい。前記上限値以下とすることにより、反応液が希薄になり過ぎないようにすることができる傾向にある。より具体的には、原料コストを低減でき、解重合反応性を高く維持することができる。

本実施形態の環状ラクタムの製造方法においては、高沸点溶媒を1種のみ用いてもよいし、2種以上用いてもよい。2種以上用いる場合、合計量が上記範囲となることが好ましい。

[0036] 上記溶媒の第二形態においては、反応系（例えば、反応釜）に供給される物質の95質量%以上（好ましくは99質量%以上）が式（b）で表される化合物とポリアミド樹脂（a）と高沸点溶媒で構成されていることが好ましい。しかしながら、反応中においては、反応系には目的物である環状ラクタムの他、生成される水、未反応のポリアミド樹脂（a）、中間生成物であるポリアミドオリゴマーなども存在することは言うまでもない。

[0037] <解重合反応>

次に、解重合反応の詳細について述べる。

本実施形態において、解重合反応を行う際の圧力は、202.6 kPa以下であることが好ましく、150.0 kPa以下であることがより好ましく、101.3 kPa未満であることがさらに好ましく、13.3 kPa以下であることが一層好ましく、4.0 kPa以下であることがより一層好ましい。前記上限値以下とすることにより、反応蒸留で環状ラクタムをより収率高く得ることができる傾向にある。解重合反応を行う際の圧力の下限は、例えば、0.01 kPa以上であることが好ましい。

解重合反応を行う際の圧力は、反応系において圧力を減圧または加圧して調整し、定常状態となったときの圧力を意味する。なお、本実施形態においては、例えば、常圧で一定時間反応させた後、減圧下で一定時間反応させるなど、2段階以上の圧力下で反応させてもよい。この場合、それぞれの段階での圧力が上記範囲を満たすことが好ましい。

[0038] 解重合反応を行う際の温度は、170℃以上であることが好ましく、190℃以上であることがより好ましく、210℃以上であることがさらに好ましく、220℃以上であることが一層好ましい。前記下限値以上とすることにより、解重合反応が促進され、環状ラクタムのより効率的な蒸留が可能になる。また、解重合反応を行う際の温度は、300℃以下であることが好ましく、280℃以下であることがより好ましく、250℃以下であることがさらに好ましい。前記上限値以下とすることにより、環状ラクタム製造に要するエネルギーを低減でき、副生成物の生成を低減できる傾向にある。

解重合反応を行う際の温度は、反応系において温度を昇温して、定常状態となったときの温度を意味する。なお、本実施形態においては、特定の温度で一定時間反応させた後、さらに昇温または降温して一定時間反応させるなど、2段階以上の温度下で反応させてもよい。この場合、それぞれの段階での反応温度が上記範囲を満たすことが好ましい。

[0039] 解重合反応は、攪拌しないで行ってもよいが、攪拌をしながら行うことが好ましい。攪拌をすることにより、より効果的に反応を進行させることができる。また、本実施形態においては、式(b)で表される化合物を用いることにより、攪拌が行える。

攪拌速度は、反応スケール（装置スケール）や装置構造に応じて適宜調整されるが、例えば、10rpm以上であることが好ましく、30rpm以上であることがより好ましく、100rpm以上であることがさらに好ましく、150rpm以上であることが一層好ましく、200rpm以上であることがより一層好ましく、300rpm以上、500rpm以上であってもよい。前記下限値以上とすることにより、ポリアミド樹脂(a)と式(b)で表される化合物がより均一に混合され、解重合反応が効率的に進行する傾向にある。また、攪拌速度は、1500rpm以下であることが好ましく、1200rpm以下であることがより好ましく、1000rpm以下であることがさらに好ましく、800rpm以下であることが一層好ましく、600rpm以下であることがより一層好ましく、550rpm以下であってもよい。

い。上記上限値以下とすることにより、反応液が反応装置内の側面や上面に飛散することを抑制でき、収率の低下を効果的に抑制できる。また、蒸留流路の閉塞を効果的に防ぐことができる。

前記攪拌速度は、反応系において攪拌速度を調整し、定常状態となったときの温度を意味する。なお、攪拌は、特定の速度で一定時間行った後、さらに別の攪拌速度で攪拌するなど、2段階以上の攪拌速度で行ってもよい。この場合、それぞれの段階での攪拌速度が上記範囲を満たすことが好ましい。

また、攪拌に用いる設備についても、通常、化学製品の製造に用いられる設備を使用することができ、例えば、攪拌翼の形状としては、パドル型、アンカー型、ヘリカルリボン型など、適宜選択される。

[0040] 本実施形態においては、解重合反応を行うとき、過熱蒸気を用いないことができる。過熱蒸気を用いないことにより、精製時のエネルギーおよび廃棄物の効果的な低減を図ることができる。

過熱蒸気としては、水、アミン類、およびアルコール類の過熱蒸気が例示される。より具体的には、過熱水蒸気、メタノール蒸気、アンモニア蒸気が例示される。本実施形態では、特に、過熱水蒸気を用いずに解重合反応を進行させることができる点で有益である。

[0041] 本実施形態における解重合反応は、通常、水を介した加水分解反応ではない。従って、本実施形態においては、解重合反応に際し、水分を除去しながら行うことが好ましい。

また、本実施形態における解重合反応は、ポリアミド樹脂（a）の末端アミノ基または主鎖のアミド結合が自身の1ユニット隣のアミド結合にアタックして、バックバイティング反応で進行することが好ましい。

[0042] <蒸留>

本実施形態の環状ラクタムの製造方法においては、蒸留することが好ましい。蒸留することにより、目的物である環状ラクタムを分取、精製することができる。また、原料であるポリアミド樹脂（a）が吸湿していたり、反応時に式（b）で表される化合物の一部が縮合したりすることにより、反応系

に水が含まれることが発生する場合があるが、蒸留によって、水分を除去することができる。

蒸留は、前記解重合反応を行いながら反応蒸留を行ってもよいし、前記解重合反応を行った後、蒸留を行ってもよい。もちろん、前記解重合反応を行いながら反応蒸留を行い、かつ、前記解重合反応を行った後、蒸留を行ってもよい。

[0043] 解重合反応を行った後、蒸留を行う際の圧力は、101.3 kPa未満であることが好ましく、13.3 kPa以下であることがより好ましく、4.0 kPa未満であることがさらに好ましく、2.7 kPa以下であることが一層好ましく、1.4 kPa以下であることがより一層好ましい。前記上限値以下とすることにより、環状ラクタムをより収率良く単離することができる傾向にある。前記蒸留を行う際の圧力の下限は、例えば、0.01 kPa以上であることが好ましい。

[0044] <反応系への供給>

本実施形態の環状ラクタムの製造方法においては、通常、原料であるポリアミド樹脂(a)と、式(b)で表される化合物を反応系(例えば、反応釜)に供給して、環状ラクタムの製造を行う。

ポリアミド樹脂(a)は、反応系に一度に供給してもよいし、反応系に連続的に供給してもよい。反応系に連続してポリアミド樹脂(a)を供給する場合、反応系に存在する式(b)で表される化合物の量がポリアミド樹脂(a)100質量部に対し、1質量部以上となることが好ましい。

[0045] 本実施形態の環状ラクタムの製造方法において、式(b)で表される化合物は、反応系(例えば、反応釜)に供給されるが、この際、反応系に一度に供給してもよいし、反応系に連続的に供給してもよい。工業生産的には、連続的に供給することが好ましい。また、式(b)で表される化合物を再利用することも好ましい。

なお、ポリアミド樹脂(a)と式(b)で表される化合物は、それぞれ別々に、反応系(例えば、反応釜)に供給してもよく、予め混合してから反応

系に供給してもよい。本実施形態においては、ポリアミド樹脂（a）と式（b）で表される化合物は、それぞれ、反応系（例えば、反応釜）に直接に供給することが好ましい。

[0046] 反応系に供給した式（b）で表される化合物は、環状ラクタムの製造が進むに際し、反応系に供給した式（b）で表される化合物が多量体化する場合がある。そこで、本実施形態の環状ラクタムの製造方法においては、反応系に供給した式（b）で表される化合物の多量体（B2）を加水分解して、再生された式（b）で表される化合物（B3）を得ることを含んでいてもよい。

本実施形態においては、特に、反応系に供給した式（b）で表される化合物の多量体（B2）を加水分解して、反応系中で、再生された式（b）で表される化合物（B3）を得ることもできる。

さらに、反応系に供給する式（b）で表される化合物として、前記再生された式（b）で表される化合物（B3）を使用することもできる。

ここで、反応系に供給した式（b）で表される化合物が多量体化した多量体（B2）とは、リン酸部分が重合した多量体が例示される。

[0047] <実施形態>

以下に、環状ラクタムの製造方法の好ましい実施形態を述べる。本発明は、この実施形態に限定されるわけではないことは言うまでもない。

[0048] 環状ラクタムの製造方法の第一の実施形態は、解重合反応を行いながら反応蒸留を行い、解重合反応を温度170℃～300℃で行い、解重合反応を行うとき、過熱水蒸気を用いず、解重合反応を行うとき、溶媒を用いないか、溶媒の量が前記式（b）で表される化合物の量に対して10質量%以下である、環状ラクタムの製造方法である。

第一の実施形態とすることにより、環状ラクタムの製造時間を短縮でき、効率よく環状ラクタムを得ることができる。

[0049] 環状ラクタムの製造方法の第二の実施形態は、解重合反応を行いながら反応蒸留を行い、解重合反応を温度170℃～300℃で行い、解重合反応を

行うとき、過熱水蒸気を用いず、解重合反応を、高沸点溶媒の存在下で行い、高沸点溶媒の沸点が、製造物である環状ラクタムの沸点－１０℃以上であり、高沸点溶媒がアルコールでない、環状ラクタムの製造方法である。

第二の実施形態とすることにより、反応液の粘性を低下させることができ、これによって解重合反応を促進させ、かつ、反応蒸留により環状ラクタムの製造時間を短縮することができる。

[0050] 環状ラクタムの製造方法の第三の実施形態は、解重合反応を行った後、蒸留を行い、解重合反応を温度１７０℃～３００℃で行い、解重合反応を行うとき、過熱水蒸気を用いず、前記解重合反応を行うとき、溶媒を用いないか、溶媒の量が前記式（ｂ）で表される化合物の量に対して１０質量％以下である環状ラクタムの製造方法である。

第三の実施形態とすることにより、解重合反応時よりも低い温度で蒸留精製できる。

[0051] 環状ラクタムの製造方法の第四の実施形態は、解重合反応を行った後、蒸留を行い、解重合反応を温度１７０℃～３００℃で行い、解重合反応を行うとき、過熱水蒸気を用いず、解重合反応を、高沸点溶媒の存在下で行い、高沸点溶媒の沸点が、製造物である環状ラクタムの沸点－１０℃以上であり、高沸点溶媒がアルコールでない、環状ラクタムの製造方法である。

第四の実施形態とすることにより、反応液の粘性を低下させることができ、これによって解重合反応を促進させ、かつ、解重合反応時よりも低い温度で蒸留精製できる。

[0052] ＜環状ラクタムの製造装置＞

本実施形態においては、さらに、上記本実施形態の環状ラクタムの製造方法を利用した環状ラクタムの製造装置を開示する。図１は、環状ラクタムの製造装置の一例の概略図である。図１において、１は反応器を、２は環状ラクタムを収容するための容器を、３は流路を、４は圧力調整機器を、５は加温部を、６は水分を除去する装置を、７は水を回収する容器を、それぞれ示している。以下、図１を参照しながら、本実施形態の環状ラクタムの製造装

置を説明する。しかしながら、本実施形態の環状ラクタムの製造装置が、図 1 に拘泥されるものではないことは言うまでもない。

[0053] 具体的には、本実施形態では、上記本実施形態の環状ラクタムの製造方法を行う、以下の設備を有する、環状ラクタムの製造装置を開示する。

(1) ポリアミド樹脂 (a) と式 (b) で表される化合物を含む混合物 A を加熱して解重合反応を行い、環状ラクタムを製造し、式 (b) で表される化合物、および、環状ラクタムを含む混合物 B を得るための反応器 1 ;

(2) 前記反応器内 1 の混合物 B から蒸発した環状ラクタムを収容するための容器 2 ; および

(3) 前記反応器 1 と前記容器 2 とを接続し、蒸発した環状ラクタムを前記反応器 1 から前記容器 2 へ供給するための流路 3。

[0054] 混合物 B は、通常は、式 (a) で表される繰返単位を含むポリアミド樹脂および／または式 (a) で表される繰返単位を含むポリアミドオリゴマーも含む。

ポリアミド樹脂 (a) と式 (b) で表される化合物を含む混合物 A、ならびに、式 (b) で表される化合物、および、環状ラクタムを含む混合物 B における、式 (b) で表される化合物は、上述の反応系に供給されるポリアミド樹脂 (a) および式 (b) で表される化合物と同義であり、その比率や好ましい範囲等は、上述の<式 (a) で表される繰返単位を含むポリアミド樹脂 (ポリアミド樹脂 (a)) > および <式 (b) で表される化合物> の記載を参照することができる。さらに、前記混合物 A および混合物 B は溶媒を含んでいてもよく、その詳細は、<溶媒> の記載を参照することができる。

解重合反応の詳細については、上述の<解重合反応> の記載を参照することができる。

[0055] 反応器 1 としては、グラスライニングまたは陽極防食法を適用したステンレス、タンタルから形成されたものが例示される。

[0056] 反応器 1 内の混合物 B から蒸発した環状ラクタムを収容するための容器 2 は、グラスライニングされたステンレス、ステンレス鋼 (SUS)、タンタ

ルチタン、ハステロイ、テフロン（登録商標）ライニング、ニッケル、ジルコニウム、銅、および、炭素網（CS）からなる群より選ばれる少なくとも1種から形成されたものが例示される。

[0057] 反応器1と容器2とを接続し、蒸発した環状ラクタムを反応器1から容器2へ供給するための流路（図1においては便宜上点線で示している）3は、ステンレスおよび／またはチタンから形成された流路が例示される。

なお、反応器1と流路3の間、および／または、容器2と流路3の間には、バルブや継ぎ手などが設けられていてもよい。バルブを設けることにより、圧力や流量を調整することが可能になる。また、流路3の間にもバルブを設けて、圧力や流量を調整してもよい。

[0058] さらに、本実施形態の環状ラクタムの製造装置は、反応器1、容器2および、流路3内を、圧力202.6 kPa以下に保持するための圧力調整機器4を有することが好ましい。圧力調整機器4としては、往復ピストンポンプ、回転式ポンプ等の真空ポンプが例示される。本実施形態の環状ラクタムの製造装置においては、通常、反応器1、容器2、および、流路3内を含む装置内の原料ないし生成物が通過しうる全域を、反応器1、容器2、および、流路3のいずれかに設置した1つの圧力調整機器4で調整してもよいし、反応器1、容器2、および、流路3のそれぞれに設置した圧力調整機器4で調整してもよい。

圧力調整機器4は、上述した反応器1、容器2、および、流路3の任意の部位に接続されていればよいが、前記流路3に接続されていることが好ましい。このような構成とすることにより、水などの（少量）混入した環状ラクタムよりも低沸点の化合物を効率的に分離することができる。なお、流路3と圧力調整機器4の間には、バルブや継ぎ手などが設けられていてもよい。

また、圧力調整機器4は、後述する流路3と水分を除去する装置6の間に接続されていることも好ましい。

さらに、本実施形態においては、前記流路3内の温度を環状ラクタムの融点以上（好ましくは融点+1℃以上、また、好ましくは融点+50℃以下）

に保持するための加温部5を有することが好ましい。加温部5を設けることにより、環状ラクタム析出による閉塞を効果的に抑制できる。加温部5は、50℃以上（例えば160℃未満）の温水・蒸気等の熱媒と、熱媒を循環させる熱交換器が例示される。

また、本実施形態の環状ラクタムの製造装置においては、前記反応器1から水分を除去する装置6を有することが好ましい。水分を除去する装置6を設けることにより、環状ラクタムや式(b)で表される化合物の加水分解を効果的に抑制できる。水分を除去する装置6としては、例えば、コンデンサーやモレキュラーシーブカラムが例示される。さらに、本実施形態の環状ラクタムの製造装置は、除去した水分を回収する容器7を有していることが好ましい。

[0059] 本実施形態の環状ラクタムの製造方法ないし製造装置で得られた環状ラクタムは、ポリアミド樹脂、繊維の原料として再利用されたり、医療用ポリマーの原料に用いることができる。

実施例

[0060] 以下に実施例を挙げて本発明をさらに具体的に説明する。以下の実施例に示す材料、使用量、割合、処理内容、処理手順等は、本発明の趣旨を逸脱しない限り、適宜、変更することができる。従って、本発明の範囲は以下に示す具体例に限定されるものではない。

実施例で用いた測定機器等が廃番等により入手困難な場合、他の同等の性能を有する機器を用いて測定することができる。

O c t y l は、オクチル基を意味する。

[0061] 原料

ポリアミド6（ナイロン6）：Sigma Aldrich社製、181110、粘度平均分子量：10,000。

$H_3PO_4-N(Oc tyl)_3$ ：リン酸二水素トリ-n-オクチルアンモニウム塩、下記合成例に従って合成した。

$H_3PO_4-NH_3$ ：リン酸二水素アンモニウム塩、関東化学社製、01309

−30。

H_3PO_4 ：リン酸、富士フィルム和光純薬製、167-02166、含水量：14.4質量%。

$\text{H}_2\text{SO}_4\text{-N}(\text{Octyl})_3$ ：硫酸水素トリ-*n*-オクチルアンモニウム塩、下記合成例に従って合成した。

NaH_2PO_4 ：関東化学社製、37403-00。

[0062] < $\text{H}_3\text{PO}_4\text{-N}(\text{Octyl})_3$ の合成例>

乾燥管を付した冷却管、等圧滴下ロート、および攪拌装置を備えた三ツ口フラスコに、テトラヒドロフラン10mLと85質量%リン酸（富士フィルム和光純薬製）1.15g（ H_3PO_4 として10mmol）を加えた。等圧滴下ロートに、テトラヒドロフラン30mLに溶解したトリ-*n*-オクチルアミン（ $\text{N}(\text{Octyl})_3$ ）（東京化成社製）3.54g（10mmol）を投入後、この溶液を、600rpmの速度で攪拌中のリン酸-テトラヒドロフラン溶液に対して、室温で1時間かけて滴下した。その後、油浴80℃で1時間加熱攪拌した。冷却後、エバポレーターを用いて溶媒を留去した。得られた残留物を60℃で48時間真空乾燥し、黄色透明シロップ状の $\text{H}_3\text{PO}_4\text{-N}(\text{Octyl})_3$ を4.45g（収率98.2%）の収量で得た。

プロトン（ ^1H , 500MHz）、カーボン（ ^{13}C , 125MHz）、リン（ ^{31}P , 202MHz）核磁気共鳴（NMR）法により、 $\text{H}_3\text{PO}_4\text{-N}(\text{Octyl})_3$ と同定した。

[0063] < $\text{H}_2\text{SO}_4\text{-N}(\text{Octyl})_3$ の合成例>

乾燥管を付した冷却管、等圧滴下ロート、および攪拌装置を備えた三ツ口フラスコに、テトラヒドロフラン10mLと95質量%硫酸1.03g（ H_2SO_4 として10mmol）を加えた。等圧滴下ロートに、テトラヒドロフラン30mLに溶解したトリ-*n*-オクチルアミン（ $\text{N}(\text{Octyl})_3$ ）3.54g（10mmol）を投入後、この溶液を、600rpmの速度で攪拌中のリン酸-テトラヒドロフラン溶液に対して、室温で1時間かけて滴下した。その後、油浴80℃で1時間加熱攪拌した。冷却後、エバポレーターを

用いて溶媒を留去した。得られた残留物を60℃で48時間真空乾燥し、微黄色ワックス状の $\text{H}_2\text{SO}_4\text{-N}(\text{Octyl})_3$ を4.48g（収率99.1%）の収量で得た。

プロトン（ ^1H , 500MHz）、カーボン（ ^{13}C , 125MHz）核磁気共鳴（NMR）法により、 $\text{H}_2\text{SO}_4\text{-N}(\text{Octyl})_3$ と同定した。

[0064] 実施例1

乾燥管を付した冷却管および攪拌装置を備えたナス型フラスコに、100質量部のポリアミド6に対し、表1に示す触媒を200質量部配合した後、油浴を用いて、230℃で、圧力20mmHg（2.67kPa）、600rpmの速度で攪拌しながら6時間反応させた。

反応蒸留によって、88質量%の高い収率で白色結晶が得られた。プロトン核磁気共鳴法（ ^1H NMR）により、 ϵ -カプロラクタム（ $\epsilon\text{-CL}$ ）と同定した。

[化13]



[0065] 比較例1～4

表1に示した通り、触媒の種類と量を表1に示す通り変更し、他は実施例1と同様に行った。

[0066] 実施例1、比較例1～4の結果を下記表1にまとめた。

[表1]

	触媒		ε-カプロラクタム
	化合物名	質量部 (リン酸部位)	蒸留収率/% ^a
実施例1	H ₃ PO ₄ -N(Octyl) ₃	200 (43)	88
比較例1	H ₃ PO ₄ -NH ₃	200 (169)	30
比較例2	H ₃ PO ₄ (水分14.4 質量%)	200 (169)	42
比較例3	H ₂ SO ₄ -N(Octyl) ₃	200 (0)	4
比較例4	NaH ₂ PO ₄	200 (162)	0

^a ¹H NMR分析

[0067] なお、表1における「質量部（リン酸部位）」とは、反応系に添加された各触媒におけるリン酸部位（H₂PO₄⁻）の量を示している。

実施例1は、解重合に直接関与するリン酸部位の添加量が比較例1、比較例2および比較例4よりも格段に少ないが、解重合反応が効果的に進行していることが確認できた。また、炭素数5～22の脂肪族基を有するアンモニウム塩であっても、硫酸のアンモニウム塩を用いた場合、目的の環状ラクタムはほとんど得られなかった（比較例3）。

すなわち、本発明においては、式（b）で表される化合物を用いて解重合反応を行うことが極めて重要であることが分かった。

また、実施例1では、式（b）で表される化合物のリン酸部分が重合した多量体を得られていた。

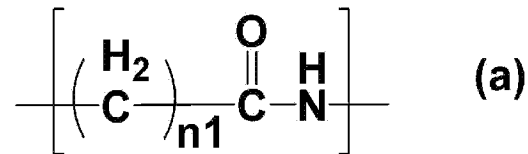
符号の説明

- [0068] 1 反応器
2 環状ラクタムを収容するための容器
3 流路
4 圧力調整機器
5 加温部
6 水分を除去する装置
7 水分を回収する容器

請求の範囲

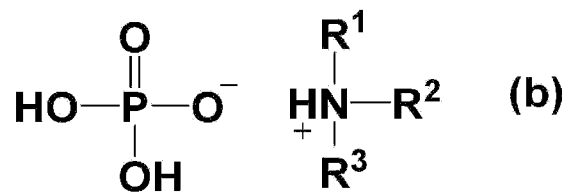
[請求項1] 式（a）で表される繰返単位を含むポリアミド樹脂を、式（b）で表される化合物を用いて解重合反応を行う、環状ラクタムの製造方法。

[化1]



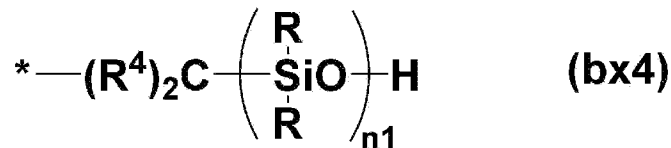
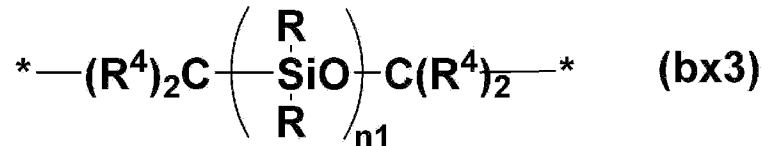
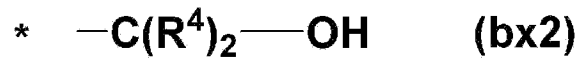
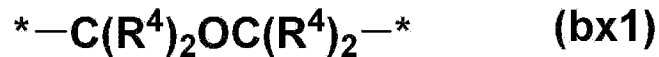
（式（a）中、 $n1$ は、3～22の整数である。 $n1$ は繰返単位毎に値が異なってもよい。）

[化2]



（式（b）中、 $\text{R}^1 \sim \text{R}^3$ は、それぞれ独立に、水素原子または炭素数1～22の脂肪族基であり、 $\text{R}^1 \sim \text{R}^3$ の少なくとも1つは、炭素数5～22の脂肪族基であり、前記脂肪族基は、それぞれ独立に、式（ $b \times 1$ ）～（ $b \times 4$ ）で表される基の少なくとも1つを含んでいてもよい。）

[化3]

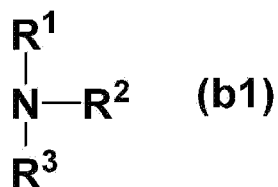


(式 (b x 1) ~ (b x 4) 中、R は、それぞれ独立に、水素原子、メチル基またはフェニル基であり、R⁴ は、それぞれ独立に、水素原子またはメチル基であり、n 1 は、それぞれ独立に、1 ~ 150 の整数である。* は他の部位との結合部位である。)

[請求項2]

前記式 (b) のうち、式 (b 1) で構成される化合物の沸点が、製造される環状ラクタムの沸点 -10℃ 以上である、請求項 1 に記載の環状ラクタムの製造方法。

[化4]



(式 (b 1) 中、R¹ ~ R³ は、それぞれ独立に、式 (b) における R¹ ~ R³ と同じである。)

[請求項3]

前記 R¹ ~ R³ の少なくとも 2 つは、それぞれ独立に、炭素数 5 ~ 22 の脂肪族基であり、かつ、前記脂肪族基は、前記式 (b x 1) ~ (

$b \times 4$) で表される基の少なくとも1つを含んでいてもよい、請求項1に記載の環状ラクタムの製造方法。

[請求項4] 前記 $R^1 \sim R^3$ は、それぞれ独立に、炭素数5～22の脂肪族基であり、かつ、前記脂肪族基は、前記式 ($b \times 1$) ～ ($b \times 4$) で表される基の少なくとも1つを含んでいてもよい、請求項1に記載の環状ラクタムの製造方法。

[請求項5] 前記 $R^1 \sim R^3$ としての炭素数5～22の脂肪族基は、炭素数5～22のアルキル基である、請求項1に記載の環状ラクタムの製造方法。

[請求項6] 前記ポリアミド樹脂100質量部に対し、前記式 (b) で表される化合物を1質量部以上用いる、請求項1に記載の環状ラクタムの製造方法。

[請求項7] 前記ポリアミド樹脂100質量部に対し、前記式 (b) で表される化合物を40～10,000質量部用いる、請求項1に記載の環状ラクタムの製造方法。

[請求項8] 前記解重合反応を圧力202.6 kPa以下で行う、請求項1に記載の環状ラクタムの製造方法。

[請求項9] 前記解重合反応を行いながら反応蒸留を行う、請求項1に記載の環状ラクタムの製造方法。

[請求項10] 前記解重合反応を行った後、蒸留を行う、請求項1に記載の環状ラクタムの製造方法。

[請求項11] 前記解重合反応を温度170℃～300℃で行う、請求項1に記載の環状ラクタムの製造方法。

[請求項12] 前記解重合反応を行うとき、過熱水蒸気を用いない、請求項1に記載の環状ラクタムの製造方法。

[請求項13] 前記解重合反応を行うとき、溶媒を用いないか、溶媒の量が前記式 (b) で表される化合物の量に対して10質量%以下である、請求項1に記載の環状ラクタムの製造方法。

[請求項14] 前記解重合反応を、高沸点溶媒の存在下で行い、前記高沸点溶媒の沸

点が、製造物である環状ラクタムの沸点－１０℃以上である、請求項１に記載の環状ラクタムの製造方法。

[請求項15] 前記高沸点溶媒がアルコールでない、請求項１４に記載の環状ラクタムの製造方法。

[請求項16] 前記解重合反応を行いながら反応蒸留を行い、
前記解重合反応を温度１７０℃～３００℃で行い、
前記解重合反応を行うとき、過熱水蒸気を用いず、
前記解重合反応を行うとき、溶媒を用いないか、溶媒の量が前記式（
b）で表される化合物の量に対して１０質量％以下である、
請求項１に記載の環状ラクタムの製造方法。

[請求項17] 前記解重合反応を行いながら反応蒸留を行い、
前記解重合反応を温度１７０℃～３００℃で行い、
前記解重合反応を行うとき、過熱水蒸気を用いず、
前記解重合反応を、高沸点溶媒の存在下で行い、前記高沸点溶媒の沸点が、製造物である環状ラクタムの沸点－１０℃以上であり、
前記高沸点溶媒がアルコールでない、請求項１に記載の環状ラクタムの製造方法。

[請求項18] 前記解重合反応を行った後、蒸留を行い、
前記解重合反応を温度１７０℃～３００℃で行い、
前記解重合反応を行うとき、過熱水蒸気を用いず、
前記解重合反応を行うとき、溶媒を用いないか、溶媒の量が前記式（
b）で表される化合物の量に対して１０質量％以下である、請求項１に記載の環状ラクタムの製造方法。

[請求項19] 前記解重合反応を行った後、蒸留を行い、
前記解重合反応を温度１７０℃～３００℃で行い、
前記解重合反応を行うとき、過熱水蒸気を用いず、
前記解重合反応を、高沸点溶媒の存在下で行い、前記高沸点溶媒の沸点が、製造物である環状ラクタムの沸点－１０℃以上であり、

前記高沸点溶媒がアルコールでない、請求項 1 に記載の環状ラクタムの製造方法。

[請求項20] 前記ポリアミド樹脂が、ナイロン 4、ナイロン 5、ナイロン 6、ナイロン 11、および、ナイロン 12 からなる群より選ばれる少なくとも 1 種である、請求項 1 に記載の環状ラクタムの製造方法。

[請求項21] 反応系に、前記ポリアミド樹脂を連続的に供給して環状ラクタムの製造を行う、請求項 1 に記載の環状ラクタムの製造方法。

[請求項22] 前記式 (b) で表される化合物を反応系に直接に供給する、請求項 1 に記載の環状ラクタムの製造方法。

[請求項23] 前記反応系に供給する前記式 (b) で表される化合物の含水量が、式 (b) で表される化合物の質量に対して 100 質量%以下である、請求項 22 に記載の環状ラクタムの製造方法。

[請求項24] 前記反応系に供給した前記式 (b) で表される化合物の多量体 (B2) を加水分解して、反応系中で、再生された前記式 (b) で表される化合物 (B3) を得る、請求項 22 に記載の環状ラクタムの製造方法。

[請求項25] 前記反応系に供給する前記式 (b) で表される化合物として、前記再生された前記式 (b) で表される化合物 (B3) を使用する、請求項 24 に記載の環状ラクタムの製造方法。

[請求項26] 請求項 1 ～ 25 のいずれか 1 項に記載の環状ラクタムの製造方法を行う、以下の設備を有する、環状ラクタムの製造装置。

(1) 前記式 (a) で表される繰返単位を含むポリアミド樹脂と前記式 (b) で表される化合物を含む混合物 A を加熱して解重合反応を行い、環状ラクタムを製造し、前記式 (b) で表される化合物、および、環状ラクタムを含む混合物 B を得るための反応器；

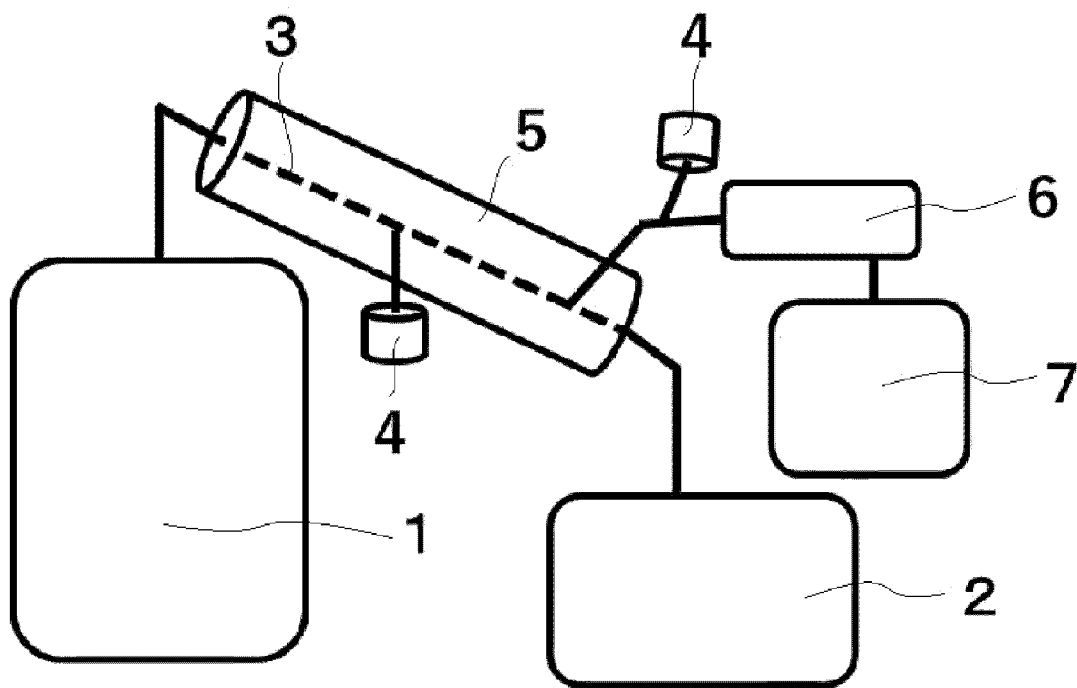
(2) 前記反応器内の混合物 B から蒸発した環状ラクタムを収容するための容器；および

(3) 前記反応器と前記容器とを接続し、蒸発した環状ラクタムを前

記反応器から前記容器へ配送するための流路。

- [請求項27] さらに、前記反応器、前記容器、および、前記流路内を、圧力202.6 kPa以下に保持するための圧力調整機器を有する、請求項26に記載の環状ラクタムの製造装置。
- [請求項28] 前記圧力調整機器が、前記反応器、前記容器、および前記流路からなる群より選択される少なくとも1つに接続されている、請求項27に記載の環状ラクタムの製造装置。
- [請求項29] 前記流路内の温度を環状ラクタムの融点以上に保持するための加温部を有する、請求項26に記載の環状ラクタムの製造装置。
- [請求項30] 前記反応器から水分を除去する装置を有する、請求項26に記載の環状ラクタムの製造装置。

[図1]



INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2024/020008

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER**C07D 201/12**(2006.01)i; **C07B 61/00**(2006.01)i; **C07D 223/10**(2006.01)i; **C08J 11/28**(2006.01)i

FI: C07D201/12; C07B61/00 300; C07D223/10; C08J11/28 ZAB

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

C07D201/12; C07B61/00; C07D223/10; C08J11/28

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Published examined utility model applications of Japan 1922-1996

Published unexamined utility model applications of Japan 1971-2024

Registered utility model specifications of Japan 1996-2024

Published registered utility model applications of Japan 1994-2024

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)

JSTPlus/JMEDPlus/JST7580/JSTChina (JDreamIII); CAplus/REGISTRY (STN)

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	JP 8-217746 A (TORAY INDUSTRIES, INC.) 27 August 1996 (1996-08-27) claim 7, paragraph [0015], examples 1-3	1-30
A	大谷精弥, リン酸およびリン酸塩を触媒とするポリカプラミドの解重合, 工業化学雑誌, 1962, vol. 65, no. 10, pp. 1641-1645, abstract, 「3 結果」項, (OTANI, Seiya. Depolymerization of Polycapramide using Phosphoric Acid and its Salts as Catalyst. The Journal of the Chemistry Society of Japan.) non-official translation (section "3 Results")	1-30
A	WO 2022/240822 A1 (RESEARCH TRIANGLE INSTITUTE) 17 November 2022 (2022-11-17) claims 1-10, example 1	1-30



Further documents are listed in the continuation of Box C.



See patent family annex.

* Special categories of cited documents:

“A” document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance

“D” document cited by the applicant in the international application

“E” earlier application or patent but published on or after the international filing date

“L” document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)

“O” document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means

“P” document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed

“T” later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention

“X” document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone

“Y” document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art

“&” document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search

06 August 2024

Date of mailing of the international search report

20 August 2024

Name and mailing address of the ISA/JP

Japan Patent Office (ISA/JP)
3-4-3 Kasumigaseki, Chiyoda-ku, Tokyo 100-8915
Japan

Authorized officer

Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT
Information on patent family members

International application No.
PCT/JP2024/020008

Patent document cited in search report			Publication date (day/month/year)	Patent family member(s)	Publication date (day/month/year)
JP	8-217746	A	27 August 1996	(Family: none)	
WO	2022/240822	A1	17 November 2022	EP	4337722 A1
				CA	3215828 A1

A. 発明の属する分野の分類（国際特許分類（IPC））

C07D 201/12(2006.01)i; C07B 61/00(2006.01)i; C07D 223/10(2006.01)i; C08J 11/28(2006.01)i

FI: C07D201/12; C07B61/00 300; C07D223/10; C08J11/28 ZAB

B. 調査を行った分野

調査を行った最小限資料（国際特許分類（IPC））

C07D201/12; C07B61/00; C07D223/10; C08J11/28

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

日本国実用新案公報

1922 - 1996年

日本国公開実用新案公報

1971 - 2024年

日本国実用新案登録公報

1996 - 2024年

日本国登録実用新案公報

1994 - 2024年

国際調査で使用した電子データベース（データベースの名称、調査に使用した用語）

JSTPlus/JMEDPlus/JST7580/JSTChina (JDreamIII); CAPLUS/REGISTRY (STN)

C. 関連すると認められる文献

引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求項の番号
A	JP 8-217746 A（東レ株式会社） 27.08.1996（1996 - 08 - 27） 請求項7, [0015], 実施例1-3	1-30
A	大谷精弥, リン酸およびリン酸塩を触媒とするポリカプラミドの解重合, 工業化学雑誌, 1962, 第65巻, 第10号, pp.1641-1645 要旨, 「3 結果」項	1-30
A	WO 2022/240822 A1 (RESEARCH TRIANGLE INSTITUTE) 17.11.2022（2022 - 11 - 17） 請求項1-10, 実施例1	1-30

☐ C欄の続きにも文献が列挙されている。

☒ パテントファミリーに関する別紙を参照。

* 引用文献のカテゴリー

“A” 特に関連のある文献ではなく、一般的技术水準を示すもの

“D” 国際出願で出願人が先行技術文献として記載した文献

“E” 国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの

“L” 優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献（理由を付す）

“O” 口頭による開示、使用、展示等に言及する文献

“P” 国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願の日の後に公表された文献

“T” 国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と抵触するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの

“X” 特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの

“Y” 特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの

“&” 同一パテントファミリー文献

国際調査を完了した日

06.08.2024

国際調査報告の発送日

20.08.2024

名称及びあて先

日本国特許庁(ISA/JP)

〒100-8915

日本国

東京都千代田区霞が関三丁目4番3号

権限のある職員（特許庁審査官）

鳥居 福代 4P 3436

電話番号 03-3581-1101 内線 3443

国際調査報告
パテントファミリーに関する情報

国際出願番号
PCT/JP2024/020008

引用文献			公表日	パテントファミリー文献			公表日
JP	8-217746	A	27.08.1996	(ファミリーなし)			
WO	2022/240822	A1	17.11.2022	EP	4337722	A1	
				CA	3215828	A1	