

(19) 日本国特許庁(JP)

## (12) 公表特許公報(A)

(11) 特許出願公表番号

特表2015-501313

(P2015-501313A)

(43) 公表日 平成27年1月15日(2015.1.15)

(51) Int.Cl.

C07C 263/10  
C07C 265/14

F 1

C07C 263/10  
C07C 265/14

テーマコード(参考)

4H006

審査請求 未請求 予備審査請求 有 (全 14 頁)

(21) 出願番号 特願2014-537628 (P2014-537628)  
 (86) (22) 出願日 平成24年10月26日 (2012.10.26)  
 (85) 翻訳文提出日 平成26年6月18日 (2014.6.18)  
 (86) 國際出願番号 PCT/EP2012/071251  
 (87) 國際公開番号 WO2013/060836  
 (87) 國際公開日 平成25年5月2日 (2013.5.2)  
 (31) 優先権主張番号 11186815.4  
 (32) 優先日 平成23年10月27日 (2011.10.27)  
 (33) 優先権主張国 歐州特許庁 (EP)

(71) 出願人 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 - 6 7 0 5 6 L u d w i g s h a f e  
 n, G e r m a n y  
 (74) 代理人 100100354  
 弁理士 江藤 聰明  
 (72) 発明者 レシンスキー, ユリア  
 ベルギー、B - 1 0 5 0 イクセレス、ア  
 ヴェニュー デ クルセ 16

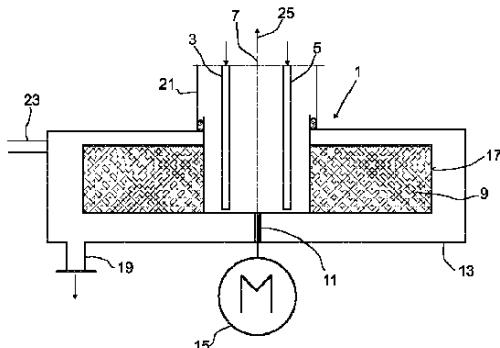
最終頁に続く

(54) 【発明の名称】イソシアネート及び／又はポリイソシアネートの製造方法

## (57) 【要約】

本発明は、アミンを含む第一の反応物流を液相で供給し、ホスゲンを含む第二の反応物流を気相で供給し、任意に不活性媒体の存在下で反応器(1)中において、相当するアミンをホスゲンと反応させるイソシアネート及び／又はポリイソシアネートの製造方法に関する。この製造方法では、上記反応器が、ハウジング(13)内で中心軸(7)の周りを回転する充填材(9)を有する遠心反応器(1)であり、第一の反応物流及び第二の反応物流が、回転充填材(9)内において遠心力により混合されて外向きに移動するよう該回転充填材(9)に供給され、上記回転充填材(9)内における混合によりホスゲンとアミンが反応して相当するイソシアネートまたはポリイソシアネートが得られる。

FIG.1



**【特許請求の範囲】****【請求項 1】**

アミンを含む第一の反応物流を液相で供給し、ホスゲンを含む第二の反応物流を気相で供給し、任意に不活性媒体の存在下で反応器(1)において、相当するアミンをホスゲンと反応させるイソシアネート及び／又はポリイソシアネートの製造方法であって、

上記反応器が、ハウジング(13)内で中心軸(7)の周りを回転する充填材(9)を有する遠心反応器(1)であり、

第一の反応物流及び第二の反応物流が、回転充填材(9)内において遠心力により混合されて外向きに移動するように該回転充填材(9)に供給され、

上記回転充填材(9)内における混合によりホスゲンとアミンが反応して相当するイソシアネートまたはポリイソシアネートが得られる製造方法。 10

**【請求項 2】**

ホスゲンが過剰に添加される請求項1に記載の製造方法。

**【請求項 3】**

上記反応が1～20barの範囲の圧力で行われる請求項1または2に記載の製造方法。 20

**【請求項 4】**

上記反応が50～400の範囲の温度で行われる請求項1～3のいずれか一項に記載の製造方法。

**【請求項 5】**

充填材と液相の接触領域で1～5000g(ただし、gは重力加速度である)の遠心加速度が働くように遠心反応器(1)を運転する請求項1～4のいずれか一項に記載の製造方法。 20

**【請求項 6】**

第一の反応物流が第一供給口(3)から回転充填材(9)の中心に供給され、第二の反応物流が第二供給口(5)から回転充填材(9)の中心に供給される請求項1～5のいずれか一項に記載の製造方法。

**【請求項 7】**

上記回転充填材(9)が多孔性であり、その比表面積が $200\text{m}^2/\text{m}^3$ より大きい請求項1～6のいずれか一項に記載の製造方法。 30

**【請求項 8】**

上記回転充填材(9)が金属製またはセラミック製である請求項1～7のいずれか一項に記載の製造方法。

**【請求項 9】**

上記回転充填材(9)が、無配向纖維で形成されているか、ランダム充填材床または球状物床であるか、発泡体または構造化内部構造をもつものである請求項1～8のいずれか一項に記載の製造方法。

**【請求項 10】**

上記回転充填材(9)が、リングで巻かれており、このリングが、回転充填材(9)中を流れる反応混合物の向きを変えて出口(21)に向かわせる請求項1～9のいずれか一項に記載の製造方法。 40

**【発明の詳細な説明】****【技術分野】****【0001】**

本発明は、イソシアネート及び／又はポリイソシアネートの製造方法であって、相当するアミンをホスゲンとを、必要なら不活性の媒体の存在下で、反応器中で、該アミンを含む第一の反応物流をこの反応器に液状で供給し、

ホスゲンを含む第二の反応物流をこの反応器にガス状で供給しながら反応する方法に関する。 50

**【背景技術】**

## 【0002】

アミンのホスゲン化によるイソシアネートの製造は、原則的として液相ホスゲン化であるいは気相ホスゲン化で行うことができる。気相ホスゲン化は、選択性が高く、有毒なホスゲンの残留が少なく、エネルギー所要量が少ないという特長がある。これと比べて液相ホスゲン化は、反応が低温で実施可能で、反応物の気化が不要であるという点に特長がある。

## 【0003】

従来の液相ホスゲン化では、アミン含有反応物流が液相で供給される。これをホスゲン含有反応物流と混合させる。このホスゲンが不活性溶媒に溶解していてもよい。次いで、このホスゲン含有反応物流を混合槽内に噴霧し、この中でこれをアミン含有反応物流と混合する。アミンとホスゲンが反応して、塩化水素を放出し相当するイソシアネートを形成する。

10

## 【0004】

過度に低ホスゲン濃度の場合、生成するイソシアネートが過剰のアミンと反応して、尿素または他の厄介な高粘度で固体の副生成物を与えるため、アミンとホスゲンとを迅速に混合する必要がある。

## 【0005】

液相ホスゲン化の長所と気相ホスゲン化の長所を組み合わせるために、WO-A 2008/006775には、エアゾールの形のアミンをホスゲンと反応させることが開示されている。アミンを含む液相へのホスゲンの浸透速度を高くするために、その液滴ができる限り小さくする必要がある。アミン液滴の大きさは、10 nm ~ 1 mm の範囲である。しかしながら、反応中に生産されるエアゾールが下流の液滴 / ダスト分離器により分離できるような大きさに維持されるようにする必要もある。この液滴、したがってエアゾールは、例えばノズルにより製造できる。ここに記載の方法の一つの欠点は、エアゾールの製造とこれに続くガス流からの液滴の除去である。

20

## 【0006】

しかしながら、完全な気相ホスゲン化は望ましくなく、特にアミンが加熱すると分解する場合には望ましくない。例えば、使用する出発物質がポリイソシアネート製造用のポリアミンである場合がそうである。これらは、気相ホスゲン化の反応条件下では気化できない。

30

## 【0007】

液体アミン含有流体と液体ホスゲン含有流体とが相互に反応する液相ホスゲン化を実施するために、CN101104595Aには遠心反応器が記載されている。この反応器中では、液体反応物流が速やかに混合され反応する。しかしながら、ここに記載の液相ホスゲン化の一つの欠点は、収率が低く、比較的大きなエネルギー消費率が必要となることがある。また、比較的高いホスゲン滞留量が必要となる。

## 【先行技術文献】

## 【特許文献】

## 【0008】

【特許文献1】WO-A 2008/006775

40

【特許文献2】CN101104595A

## 【発明の概要】

## 【発明が解決しようとする課題】

## 【0009】

本発明の目的は、先行技術から知られている欠点のないイソシアネート及び / 又はポリイソシアネートの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】

本目的は、必要なら不活性の媒体の存在下に、反応器中で、アミンを含む第一の反応物流をこの反応器に液状で供給し、ホスゲンを含む第二の反応物流をこの反応器にガス状で

50

供給しながら相当するアミンをホスゲンと反応させるイソシアネート及び／又はポリイソシアネートの製造方法であって、この反応器が、ハウジング中で中心軸の周りを回転する充填材を有する遠心反応器であり、第一の反応物流と第二の反応物流がこの回転充填材に、反応物流が充填材内で遠心力で混合されて外向きに輸送されるように供給され、

この充填材内の混合の結果、ホスゲンとアミンが反応して相当するイソシアネートまたはポリイソシアネートを与える方法により達成される。

#### 【0011】

まず第一に、本発明の方法は、気相ホスゲン化と液相ホスゲン化の長所を併せ持つものである。液相アミンの供給により、気相ホスゲン化より低温で反応を行うことができるようになる。このため、気相ホスゲン化では使用し難いアミンのホスゲン化が可能となる。また本発明の方法で副生成物生成が減少する。

#### 【0012】

遠心反応器の使用のもう一つの長所は、エアゾール液滴形成の必要がなく、このため反応実施後にこれをガス流から除く必要がなくなることである。これにより、例えばWO-A 2008/006775に記載の既知のガス／液体ホスゲン化の欠点を避けることができる。

#### 【0013】

遠心反応器では、遠心力により回転充填材の出口から液相から気相が分離される。

#### 【0014】

この遠心反応器中では、この回転充填材上に非常に薄い液体フィルムが形成され、これにより気液間の高効率の質量移動が可能となるため、アミンの反応変換に正の影響が現れる。

#### 【0015】

本発明の方法のもう一つの長所は、遠心反応器では滞留時間を非常に短くできるため、収量減少を最小限に抑えながら高い製品品質を得ることができる。高い製品品質とは、着色度に優れ、塩素含量が低く、NCO数が高く、最適の分子量分布をもつなどの特徴を持つ製品を意味するものとする。

#### 【0016】

この反応は、1～20 bar（絶対）の範囲の圧力で実施することが好ましく、より好ましくは1～10 bar（絶対）の範囲、特に好ましくは1～5 bar（絶対）の範囲で行われる。温度は、好ましくは50～400 の範囲であり、より好ましくは100～300 の範囲、特に好ましくは150～250 の範囲である。

#### 【0017】

遠心反応器の回転充填材中の膜厚を十分に低下させるためには、充填材と液相の接触領域で1～5000 gの遠心加速度が働くように、より好ましくは10～1000 gの範囲の遠心加速度、特に好ましくは50～250 gの範囲の遠心加速度が働くようにこの遠心反応器を運転することが好ましい。なお、gは重力加速度であり、その値は9.81 m / s<sup>2</sup> である。

#### 【0018】

反応中の副生成物を避けるには、ホスゲンを過剰に添加することが有利である。ホスゲンの過剰添加で、アミンが塩化水素と反応して固体を生成することを防止することができる。アミンと塩化水素の反応で生成する固体をホスゲン化することもできるが、このためには長い反応時間が必要であり、固体の滞留時間があまりに長くなるため、ホスゲン化收率が低下することとなる。

#### 【0019】

この反応中に未変換のホスゲンは、必要なら精製後、回収してホスゲン化に再利用できる。反応で発生する塩化水素も同様に、必要なら精製後、塩化ビニルの製造に、あるいは塩酸の製造に使用できる。あるいは、ディーコン法によりこの塩化水素を酸素と反応させて塩素を得るとともに、これをホスゲン合成に循環使用することもできる。

#### 【0020】

10

20

30

40

50

使用するアミン、即ち本発明の方法で反応させてイソシアネートに変換されるアミンは、いずれの通常のアミンであってもよい。これらは、例えば、脂肪族のジアミン（例えば、ヘキサメチレンジアミン（HDA）やイソホロンジアミン（IPDA））であり、またトリレンジアミン（TDA）とメチレンジ（フェニルジアミン）（MDA）とその高級同族体との混合物である。特にMDAのホスゲン化の場合に本発明の方法を特に有利に使用できる。<sup>10</sup> 4, 4'-MDAの使用が特に好ましい。これは、一般的にはその異性体化合物の2, 2'-MDAと2, 4'-MDAとの混合物として存在する。モノマー状MDAの使用に加えて、本発明の方法で、ポリメチレンジ（フェニルジアミン）（PMDA）を相当するイソシアネートに変換することもできる。MDAの沸点が300<sup>20</sup> を超えるため、またPMDAは気化しないため、本発明の方法は、これらアミンの相当するイソシアネートへのホスゲン化に特に好適である。

#### 【0021】

本発明のある実施様態では、アミンを含む第一の反応物流がさらに少なくとも一種の溶媒を含んでいる。ここで使用する溶媒は、アミンとホスゲンの反応前、反応中、また反応後に不活性な挙動を示す。適當な溶媒は例えば有機溶媒であり、具体的には芳香族溶媒であり、これらはハロゲン化されていてもよい。適當な溶媒は、例えば、トルエンとモノクロロベンゼン、o-またはp-ジクロロベンゼン、トリクロロベンゼン、クロロトルエン、クロロキシレン、クロロエチルベンゼン、クロロナフタレン、クロロジフェニル、キシレン、デカヒドロナフタレン、ベンゼン、これらの混合物である。他の適當な有機溶媒は、例えば、塩化メチレンやバークロロエチレン、ヘキサン、ジエチルイソフタレート、テトラヒドロフラン（THF）、ジオキサン、トリクロロフルオロメタン、酢酸ブチル、ジメチルホルムアミド（DMF）である。

#### 【0022】

溶媒の使用により液体アミンを含む第一の反応物流の粘度が低下するため、膜厚を低下させることができる。この結果、アミンを含む液体反応物流とホスゲンとの混合が速くなる。また同じ回転速度ででも、この液体が反応器内をより高速で流れるため、滞留時間がさらに低下することとなる。

#### 【0023】

このホスゲンを、アミン基に対して過剰に投入することが好ましい。ホスゲンとアミン基のモル比は、好ましくは1.01:1~6:1であり、より好ましくは1.1:1~4:1、特に好ましくは1.2:1~3:1である。

#### 【0024】

本発明で本方法を実施するのに使われる遠心反応器は、通常第一の反応物流用の第一供給口と第二の反応物流用の第二供給口を有する。この場合、第一供給口からの第一反応物流と第二供給口からの第二反応物流の両方が充填材の中心に供給される。この中央への供給により、この充填材の放射状内容物全体が、液体反応物流とガス状の反応物流の混合に利用可能となり、反応の実施に利用できるようなる。またこの中央供給により、充填材中の液体が最大限に加速されるようになる。

#### 【0025】

第一反応物流と第二反応物流は、例えばパイプラインの形で設けられた二つの異なる供給口から供給できる。あるいは、例えば二つの同心円状チューブを使うこともできる。その場合、液状の第一の反応物流が内側チューブから供給され、ガス状の第二反応物流が外側チューブから供給される。あるいは、もちろん、ガス状の第二反応物流を内側チューブから供給し、液状の第一反応物流を外側チューブから供給することもできる。

#### 【0026】

同心円状のパイプラインを反応物流の供給に使用することの長所は、これにより、周辺で充填材に均一分布で反応物流を供給でき、このため回転充填材の均一負荷が可能となることである。

#### 【0027】

この充填材は内部に、液体とガスが流れることのできる流路を持っている。この充填材

の回転の結果、充填材内に形成された流路の壁面上に液体フィルムが形成される。

【0028】

これらの流路を作るのに、遠心反応器の充填材を、構造化設計としてもよいし、非構造化設計としてもよい。この充填材中で、液相が気相と混合される。この気相は連続相であることが好ましい。充填材中では、フィルム流が形成される。即ち、流体が充填材表面上でフィルム状に流れ、ガスが流路の空隙部を流れる。充填材の出口、即ち充填材の外側では液滴流が発生し、液体が液滴状で充填材から出していく。これらの液滴は、反応器から出てくる気相中を移動する。

【0029】

充填材を多孔性とし、その比表面積が $200\text{ m}^2/\text{m}^3$ より大きくなうように充填材内流路を構成することが好ましい。これにより、この液体がフィルムを形成できるほどの高表面積が可能となり、このため高収率が可能となる。特に、多孔性充填材は、表面のより均一な濡れが可能とし、このためより均一な反応が可能とする。

10

【0030】

充填材に適当な材料は、例えば金属またはセラミックスである。これらは、反応中に発生する温度に対する十分な耐性をもっている。

【0031】

この遠心反応器の回転充填材が、例えば無配向纖維で形成されてもよいし、球状物床から形成されてもよい。しかし、他の可能な充填材は、ランダム充填床の形のものである。用いるランダム充填材は、いずれの他のランダム充填材であってもよい。好適なランダム充填材の例は、円柱、リングまたはパールサドル（鞍形）である。ランダム充填材の使用に加えて、この回転充填材も構造化された内部構造をもっていてもよく、例えばスタチックミキサー やモノリスの形やいずれか他の形であってもよい。もう一つの選択肢は、開放気孔発泡体の利用である。

20

【0032】

この回転充填材は、固定されたハウジング内に収納される。この充填材を去る液滴は遠心力で外側に投げ出され、ハウジングにぶつかる。ハウジングの壁面上に液体フィルムが形成され、これが重力で下向きに流れ落ちる。ハウジングから、ここで捕集した液体を液体出口を経由して抜き出すことができる。

30

【0033】

あるいは、この充填材をリングで巻くこともできる。その場合は、充填材を去る液滴がリングにぶつかり、リングからハウジングの底に滴下する。

【0034】

この場合にもこの液体は、ハウジングの底で集められ、液体出口から排出される。ガスはハウジングの頂上側からハウジング外部に抜き出すことが好ましい。これにより、ガスと液体への分離が反応器中ですでに行われることとなる。

【0035】

ある好ましい実施様態では、この反応器がさらに不活性ガス導入口を持っている。不活性ガスをこの不活性ガス導入口を経由して反応器に供給することができる。これにより、始動前の反応器のガス置換が、例えば不活性ガスでの置換が可能となる。この不活性ガスも同様に、ガス状の非反応型ホスゲンと反応中に生成する塩化水素とを運転中に抜き出すためのガス出口から抜き出すことが好ましい。

40

【0036】

反応器から抜き出される液状生成物流は、通常、生成するイソシアネートと使用するいずれかの溶媒と少量の副生成物を含んでいる。このイソシアネート中に残留する副生成物は、例えば反応後の追加の工程における精留または晶析によりイソシアネートから除くことができる。

【0037】

本発明の一つの実施例を図に示し、以下に詳細に説明する。

【0038】

50

この唯一の図は、イソシアネートの製造に用いる遠心反応器の概要を示す。

【0039】

アミンを含む第一の反応物流を第一供給口3から遠心反応器1に供給する。ガス状のホスゲンを含む第二の反応物流を第二供給口5から供給する。第一供給口3と第二供給口5は、中心軸7の周りを回転する充填材9中に開いているように設けられている。反応物流が第一供給口3と第二供給口5から回転充填材9内に流入する。回転充填材9中には、流路が設けられており、回転充填材9の回転とこれによる遠心力のため第1液反応物流がその壁面上に吸着される。このようにして回転充填材9の壁面上に薄い液体フィルムが形成され、第二反応物流のホスゲンと接触する。ホスゲンがこの液体中のアミンと反応してイソシアネートを形成する。

10

【0040】

この回転充填材9は、構造化充填材であっても非構造化充填材であってもよい。このために、例えば、この回転充填材9を、フィラー材料で充填されたかご状に、例えばランダム充填材に構成することができる。あるいはこの充填材を、例えば纖維または球状物から製造することもできる。球状物から製造する場合、これらを焼成して圧縮充填材とすることが好ましい。この場合には、流路は個々の球の間に形成される。

【0041】

回転充填材9を、比表面積が $200\text{ m}^2/\text{m}^3$ より大きな多孔性充填材とすることが特に好ましい。比表面積が大きいと、回転充填材9内の液体の分布がよくなり、充填材壁面上での液体の膜厚が小さくなる。このように膜厚が小さいと、ガス状の第二反応物流との質量移動がさらに向上する。

20

【0042】

回転充填材9は、その駆動のために、シャフト11によりハウジング13を突き抜けてモーター15に連結されている。所望の回転速度を得るために、このモーター15がさらに、下流にギアボックスを持っていてもよい。

【0043】

回転充填材9の回転速度は、 $50 \sim 10000\text{ min}^{-1}$ の範囲であることが好ましい。

【0044】

回転充填材の回転速度がおおきく、またこのため遠心力が大きいため、液体反応物流の回転充填材9から外周部への移動が加速される。回転充填材9の外周部17では、液滴が生成し分離する。この液滴はハウジング13の壁面にぶつかり、ハウジング13の底に流れ落ちる。ハウジング13の底には出口19があり、ここから液体反応混合物が抜き出される。未反応のガス状成分（例えば、過剰供給されたホスゲン）とガス状の反応生成物（例えば、塩化水素）は、遠心反応器1から中央のガス出口21を通して抜き出すことが好ましい。

30

【0045】

遠心反応器1を不活性ガスで置換するようにするために、特に始動前にあるいは運転中に置換するようにするために、このハウジングはさらにガス入口23をもっている。もう一つの実施様態では、ハウジング13内で回転充填材9をリングで巻くこともできる。この場合このリングは、回転充填材9から離れる液滴がぶつかる衝撃リングとして設けられる。この液滴は、この衝撃リングで方向をそらされてハウジング13の底に導かれ、この液体が遠心反応器1から液体出口19を通して抜き出すことができるようになっている。

40

【0046】

充填材の最高回転速度は、分離する液滴が、ハウジング壁面またはリング上での衝撃で簡単に除去できる大きさをもつように選択することが好ましい。

【0047】

出口19から抜き出される液体を下流の工程で後処理してもよい。特に、液体または固体の反応副生成物を、所望の反応生成物、即ちイソシアネートから除くことができる。

50

**【 0 0 4 8 】**

ガス出口 2 1 から抜き出されるガス（矢印 2 5 で示す）も同様に処理できる。特に、オフガス 2 5 を、ホスゲンと塩化水素と、必要なら不活性ガスまたは溶媒蒸気に分離し、ホスゲンと、必要なら溶媒を、例えばこのプロセスに循環させることが好ましい。この塩化水素をホスゲン製造用の塩素の合成に用いてもよいし、塩酸製造または塩化ビニル製造に用いてもよい。

**【 0 0 4 9 】**

アミンは遠心反応器 1 に液状で供給され気化しないため、本発明の方法は、イソシアネート製造のために、気化させることのできない非常に高い気化温度をもつアミンをホスゲン化するのに特に好適である。本発明の方法は、MDA またはポリマー型のMDA のホスゲン化により、それぞれ相当するイソシアネートまたはポリイソシアネートを製造するのに特に適当である。

10

**【 0 0 5 0 】****参照番号のリスト**

1 : 遠心反応器

3 : 第一供給口

5 : 第二供給口

7 : 中心軸

9 : 回転充填材

1 1 : シャフト

20

1 3 : ハウジング

1 5 : モーター

1 7 : 外周部

1 9 : 出口

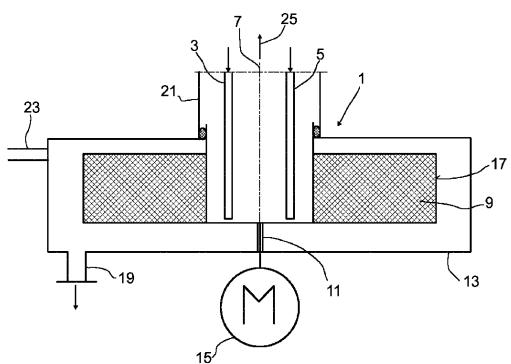
2 1 : ガス出口

2 3 : ガス入口

2 5 : オフガス

【図1】

FIG.1



## 【国際調査報告】

## INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No  
PCT/EP2012/071251

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER  
INV. C07C263/10  
ADD.

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)  
C07C

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

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

EPO-Internal, CHEM ABS Data, WPI Data

## C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	<p>DATABASE CA [Online] CHEMICAL ABSTRACTS SERVICE, COLUMBUS, OHIO, US; 28 February 2008 (2008-02-28), DING, JIANSHENG ET AL: "Method for producing isocyanates", XP002672264, retrieved from STN Database accession no. 148:215811 cited in the application abstract &amp; CN 101 104 595 A (NINGBO WANHUA POLYURETHANE CO., LTD., PEOP. REP. CHINA; BEIJING UNIVER) 16 January 2008 (2008-01-16)</p> <p>-----</p> <p>GB 761 590 A (BAYER AG) 14 November 1956 (1956-11-14) examples 1-8</p> <p>-----</p>	1-10
X		1-10



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
- "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

Date of mailing of the international search report

4 February 2013

13/02/2013

Name and mailing address of the ISA/

European Patent Office, P.B. 5818 Patentlaan 2  
NL - 2280 HV Rijswijk  
Tel. (+31-70) 340-2040,  
Fax: (+31-70) 340-3016

Authorized officer

Kleidernigg, Oliver

**INTERNATIONAL SEARCH REPORT**

Information on patent family members

International application No  
PCT/EP2012/071251

Patent document cited in search report	Publication date	Patent family member(s)	Publication date
GB 761590	A 14-11-1956	NONE	

## INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

Internationales Aktenzeichen PCT/EP2012/071251
---

A. KLASIFIZIERUNG DES ANMELDUNGSGEGENSTANDES INV. C07C263/10 ADD.
---

Nach der Internationalen Patentklassifikation (IPC) oder nach der nationalen Klassifikation und der IPC

## B. RECHERCHIERTE GEBIETE

Recherchierte Mindestpräfetoff (Klassifikationssystem und Klassifikationsymbole)  
C07C

Recherchierte, aber nicht zum Mindestpräfetoff gehörende Veröffentlichungen, soweit diese unter die recherchierten Gebiete fallen

Während der internationalen Recherche konsultierte elektronische Datenbank (Name der Datenbank und evtl. verwendete Suchbegriffe)

EPO-Internal, CHEM ABS Data, WPI Data

## C. ALS WESENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN

Kategorie*	Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommenden Teile	Betr. Anspruch Nr.
X	DATABASE CA [Online] CHEMICAL ABSTRACTS SERVICE, COLUMBUS, OHIO, US; 28. Februar 2008 (2008-02-28), DING, JIANSHENG ET AL: "Method for producing isocyanates", XP002672264, gefunden im STN Database accession no. 148:215811 in der Anmeldung erwähnt Zusammenfassung & CN 101 104 595 A (NINGBO WANHUA POLYURETHANE CO., LTD., PEOP. REP. CHINA; BEIJING UNIVER) 16. Januar 2008 (2008-01-16) -----	1-10
X	GB 761 590 A (BAYER AG) 14. November 1956 (1956-11-14) Beispiele 1-8 -----	1-10

Weitere Veröffentlichungen sind der Fortsetzung von Feld C zu entnehmen  Siehe Anhang Patentfamilie

* Besondere Kategorien von angegebenen Veröffentlichungen :	
*A* Veröffentlichung, die den allgemeinen Stand der Technik definiert, aber nicht als besonders bedeutsam anzusehen ist	*T* Spätere Veröffentlichung, die nach dem internationalen Anmeldeatum oder dem Prioritätsatum veröffentlicht worden ist und mit der Anmeldung nicht kolliert, sondern nur zum Verständnis des der Erfindung zugrundeliegenden Prinzips oder der ihr zugrundeliegenden Theorie angegeben ist
*E* frühere Anmeldung oder Patent, die bzw. das jedoch erst am oder nach dem internationalen Anmeldeatum veröffentlicht worden ist	*X* Veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung kann allein aufgrund dieser Veröffentlichung nicht als neu oder auf erfinderischer Tätigkeit beruhend betrachtet werden
*L* Veröffentlichung, die geeignet ist, einen Prioritätsanspruch zweifelhaft erscheinen zu lassen, oder durch die das Veröffentlichungsdatum einer anderen im Recherchenbericht genannten Veröffentlichung belegt werden soll oder die aus einem anderen besonderen Grund angegeben ist (wie ausgeführt)	*V* Veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung kann nicht als auf erfinderischer Tätigkeit beruhend betrachtet werden, wenn die Veröffentlichung mit einer oder mehreren Veröffentlichungen dieser Kategorie in Verbindung gebracht wird und diese Verbindung für einen Fachmann naheliegend ist
*O* Veröffentlichung, die sich auf eine mündliche Offenbarung, eine Benutzung, eine Ausstellung oder andere Maßnahmen bezieht	*2* Veröffentlichung, die Mitglied derselben Patentfamilie ist
*P* Veröffentlichung, die vor dem internationalen Anmeldeatum, aber nach dem beanspruchten Prioritätsatum veröffentlicht worden ist	

Datum des Abschlusses der internationalen Recherche	Abeendeatum des internationalen Recherchenberichts
4. Februar 2013	13/02/2013
Name und Postanschrift der Internationalen Recherchenbehörde Europäisches Patentamt, P.B. 5818 Patentamt 2 NL - 2280 HV Rijswijk Tel: (+31-70) 340-2040, Fax: (+31-70) 340-3016	Bevollmächtigter Bediensteter  Kleidernigg, Oliver

**INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT**Angaben zu Veröffentlichungen, die zur **selben Patentfamilie** gehören

Internationales Aktenzeichen

PCT/EP2012/071251

Im Recherchenbericht angeführtes Patentdokument	Datum der Veröffentlichung	Mitglied(er) der Patentfamilie	Datum der Veröffentlichung
GB 761590	A 14-11-1956	KEINE	-----

---

フロントページの続き

(81)指定国 AP(BW,GH,GM,KE,LR,LS,MW,MZ,NA,RW,SD,SL,SZ,TZ,UG,ZM,ZW),EA(AM,AZ,BY,KG,KZ,RU,TJ,TM),EP(AL,AT,BE,BG,CH,CY,CZ,DE,DK,EE,ES,FI,FR,GB,GR,HR,HU,IE,IS,IT,LT,LU,LV,MC,MK,MT,NL,NO,PL,PT,RO,R,S,SE,SI,SK,SM,TR),OA(BF,BJ,CF,CG,CI,CM,GA,GN,GQ,GW,ML,MR,NE,SN,TD,TG),AE,AG,AL,AM,AO,AT,AU,AZ,BA,BB,BG,BH,BN,BR,BW,BY,BZ,CA,CH,CL,CN,CO,CR,CU,CZ,DE,DK,DM,DO,DZ,EC,EE,EG,ES,FI,GB,GD,GE,GH,GM,GT,HN,HR,HU,IL,IN,IS,JP,KE,KG,KM,KN,KP,KR,KZ,LA,LK,LR,LS,LT,LU,LY,MA,MD,ME,MG,MK,MN,MW,MX,MY,MZ,NA,NG,NI,NO,NZ,OM,PA,PE,PG,PH,PL,PT,QA,RO,RS,RU,RW,SC,SD,SE,SG,SK,SL,SM,ST,SV,SY,TH,TJ,TM,TN,TR,TT,TZ,UA,UG,US,UZ,VC

(72)発明者 マトケ , トルシュテン  
ドイツ、6 7 2 5 1 フラインスハイム、ライボルトシュトラーセ 14 デー

(72)発明者 ヴァタース , ゲリット  
ドイツ、7 6 1 3 3 カールスルーエ、ツェーリンガーシュトラーセ 7 4

(72)発明者 シュトレファー , エックハルト  
ドイツ、6 8 1 6 3 マンハイム、カール - クンツ - ヴェーク 9

F ターム(参考) 4H006 AA02 AC55 BC10 BC11 BC14 BD80