

РСТВСЕМИРНАЯ ОРГАНИЗАЦИЯ
ИНТЕЛЛЕКТУАЛЬНОЙ СОБСТВЕННОСТИ
Международное бюроМЕЖДУНАРОДНАЯ ЗАЯВКА, ОПУБЛИКОВАННАЯ В СООТВЕТСТВИИ
С ДОГОВОРом О ПАТЕНТНОЙ КООПЕРАЦИИ (РСТ)

(51) Международная классификация изобретения⁴: C07D 209/48	A1	(11) Номер международной публикации: WO 85/03291 (43) Дата международной публикации: 1 августа 1985 (01.08.85)
(21) Номер международной заявки: РСТ/SU84/00002 (22) Дата международной подачи: 23 января 1984 (23.01.84) (71) Заявитель (для всехуказанных государств, кроме US): НАУЧНО-ИССЛЕДОВАТЕЛЬСКИЙ ИНСТИТУТ ХИМИКАТОВ ДЛЯ ПОЛИМЕРНЫХ МАТЕРИАЛОВ [SU/SU]; Тамбов 392680, ул. Монтажных, д. 3 (SU) [NAUCHNO-ISSLEDOVATELSKY INSTITUT KHIMIKATOV DLYA POLIMERNYKH MATERIALOV, Tambov (SU)]. (72) Изобретатели, и (75) Изобретатели/Заявители (только для US): ОВЧИННИКОВ Александр Александрович [SU/SU]; Тамбов 392002, ул. Тельмана, д. 5, кв. 127 (SU) [OVCHINNIKOV, Alexandr Alexandrovich, Tambov (SU)]. ДУДИН Владимир Петрович [SU/SU]; Тамбов 392032, ул. Мичуринская, д. 143, кв. 53 (SU) [DUDIN, Vladimir Petrovich, Tambov (SU)]. КОНОВ Вячеслав Васильевич [SU/SU]; Тамбов 392032, ул. Мичуринская, д. 143, кв. 105 (SU) [KONOV, Vyacheslav Vasilievich, Tambov (SU)]. РАПОПОРТ Юрий Меерович [SU/SU]; 392004, Тамбов-4, д. 6,		кв. 19 (SU) [RAPOPORT, Jury Meerovich, Tambov-4 (SU)]. ХЛЫБОВ Вячеслав Иванович [SU/SU]; Тамбов 392002, ул. Тельмана, д. 5, кв. 129 (SU) [KHLYBOV, Vyacheslav Ivanovich, Tambov (SU)]. ДАВИТУЛИАНИ Валентин Владимирович [SU/SU]; Тамбов 392002, ул. Антонова-Овсеенко, д. 12, кв. 42 (SU) [DAVITULIANY, Valentin Vladimirovich, Tambov (SU)]. ГОРБУНОВ Борис Николаевич [SU/SU]; Тамбов 392000, ул. Степана Разина, д. 11/13, кв. 9 (SU) [GORBUNOV, Boris Nikolaevich, Tambov (SU)]. МАКАРОВА Евгения Семеновна [SU/SU]; Тамбов 392016, ул. Колхозная, д. 91а, кв. 29 (SU) [MAKAROVA, Evgenia Semenovna, Tambov (SU)]. (74) Агент: ТОРГОВО-ПРОМЫШЛЕННАЯ ПАЛАТА СССР; Москва 103012, ул. Куйбышева, д. 5/2 (SU) [THE USSR CHAMBER OF COMMERCE AND INDUSTRY, Moscow (SU)]. (81) Указанные государства: CH, DE, GB, HU, JP, US Опубликована С отчетом о международном поиске
(54) Title: PROCESS FOR OBTENTION OF PHTHALIMIDE (54) Название изобретения: СПОСОБ ПОЛУЧЕНИЯ ФТАЛИМИДА (57) Abstract Phthalimide is obtained by means of the interaction of phthalic anhydride with carbamide taken in an amount of 1 to 0.5-0.7 mole parts, respectively, which interaction is effected under continuous stirring conditions. The reagents are heated primarily up to 95-115°C under the pressure of 0.02-0.098 MPa until the obtention of a molten mass. Then, the reagent mass is heated under the same pressure up to the temperature of 155-170°C.		

(57) Реферат:

Получение фталимида путем взаимодействия фталевого ангидрида с карбамидом, взятых в мольном соотношении 1:0,5-0,7, соответственно, осуществляемого при постоянном перемешивании, при этом первоначально реагенты нагревают до температуры 95-115°C при давлении 0,02-0,098 МПа до получения расплавленной массы, а затем при этом же давлении реакционную массу нагревают до температуры 155-170°C.

ИСКЛЮЧИТЕЛЬНО ДЛЯ ЦЕЛЕЙ ИНФОРМАЦИИ

Коды, используемые для обозначения стран-членов РСТ на титульных листах брошюр, в которых публикуются международные заявки в соответствии с РСТ:

AT Австрия	GB Великобритания	NL Нидерланды
AU Австралия	HU Венгрия	NO Норвегия
BB Барбадос	IT Италия	RO Румыния
BE Бельгия	JP Япония	SD Судан
BG Болгария	KP Коре́йская Народно-Демократическая Республика	SE Швеция
BR Бразилия	KR Коре́йская Республика	SN Сенегал
CF Центральноафриканская Республика	LI Лихтенштейн	SU Советский Союз
CG Конго	LK Шри Ланка	TD Чад
CH Швейцария	LU Люксембург	TG Того
CM Камерун	MC Монако	US Соединенные Штаты Америки
DE Федеративная Республика Германии	MG Малагаскар	
DK Дания	ML Мали	
FI Финляндия	MR Мавритания	
FR Франция	MW Малави	
GA Габон		

СПОСОБ ПОЛУЧЕНИЯ ФТАЛИМИДА

Область техники

Изобретение относится к органическому синтезу, а точнее к способу получения фталимида.

5 Предшествующий уровень техники

Известно получение фталимида взаимодействием I моля фталевой кислоты или ее ангидрида с 0,5–2 молями (предпочтительно с 0,75–I молем) карбамида при температуре 130–230°C в среде ароматического раство-
10 рителя, ограниченно растворяющего фталевую кислоту и ее ангидрид, но не растворяющего карбамид. Целевой продукт выделяют из суспензии центрифугированием, осадок промывают от растворителя водой и сушат. Выход фталимида составляет 90–96% от теории, температура
15 плавления равна 232–235°C (патент США № 3819648, кл. 260–326, опубликован 1975 г.).

Использование токсичных и пожароопасных растворителей, необходимость фильтрования суспензии, промывки и сушки осадка, регенерации растворителя, а
20 также наличие значительного количества сточных вод, загрязненных растворителями, не способствуют широкому использованию этого способа.

Известен также способ получения фталимида, состоящий во взаимодействии фталенового ангидрида с карба-
25 мидом, взятых в мольном соотношении 1:0,8, при температуре 140–170°C (см. Отчет Всесоюзного научно-исследовательского института химических средств защиты растений (ВНИИХСЗР) "Оказание технической помощи при пуске и освоении основных производств (производство
30 фталатофоса)", 1977, Москва, ВНИИХСЗР, стр. 70).

Сущность этого способа заключается в следующем.

В емкостной аппарат с мешалкой, пенорассекателем, рубашкой и встроенным змеевиком загружают карбамид, разравнивают его мешалкой, загружают фталевый ангид-
35 рид и также разравнивают. Мольное соотношение между фталевым ангидридом и карбамидом составляет 1:0,8, коэффициент загрузки реактора – 0,15. В рубашку и змеевик аппарата подают перегретый пар с температу-

- 2 -

рой 180°C. При достижении в реакционной массе температуры 130-135°C расплавляется карбамид, начинается бурное взаимодействие реагентов и реакция заканчивается в течение 4-5 минут. За счет интенсивного выделения реакционного тепла (9-10 ккал/моль) температура реакционной массы повышается до 170-180°C. Выделяющиеся в процессе реакции газы (углекислый газ, пары воды, аммиак) вспенивают реакционную массу, она увеличивается в объеме в 4-5 раз и превращается в твердую пористую массу.

К полученной массе приливают воду, выдерживают при кипении 20-30 минут и включают мешалку. Если мешалка не проворачивается, массу вручную через люк разрыхляют шестом. Реакционную массу перемешивают в течение 30-60 минут, полученную суспензию центрифугируют, осадок промывают водой и выгружают.

Выход продукта составляет 91-92%, температура плавления 232-237°C, содержание влаги - 4-6%. Расходные нормы сырья составляют по фталевому ангидриду 1100 кг/т, по карбамиду - 375 кг/т. Расход воды на получение суспензии и промывку осадка составляет 9000 кг/т, количество сточных вод - 9250 кг/т, количество выбрасываемых в атмосферу газов - 150 кг/т.

Для описанного способа характерна неуправляемость технологического процесса, его повышенная опасность вследствие вспенивания и возможного выброса нагретой до 170-180°C реакционной массы из реактора, получение промежуточного продукта в виде твердой пены и необходимость разрушения указанной пены водой (при этом возможен выброс кипящей воды и реакционных газов из аппарата), наличие стадий фильтрования и отмывки продукта от солей, недостаточно высокий выход, низкий коэффициент загрузки реакционного оборудования, а также наличие сточных вод и газовых выбросов в атмосферу.

Агломерирование целевого продукта вследствие спекания реакционной массы и неполное ее разрушение при кипяче-

- 3 -

нии с водой также усложняет известный способ. Кроме того, целевой продукт содержит 4-7% воды.

Раскрытие изобретения

Задачей настоящего изобретения является создание
5 способа получения фталимида, осуществляемого таким образом, чтобы наряду с упрощением технологического процесса было возможно получать более чистый целевой продукт.

Названная задача решается тем, что при получении
10 фталимида путем взаимодействия фталевого ангидрида с карбамидом при нагревании, согласно настоящему изобретению, фталевый ангидрид и карбамид используют в количестве, при котором их мольное соотношение составляет 1:0,5-0,7, соответственно, процесс ведут при постоян-
15 ном перемешивании реакционной массы, а исходные компоненты первоначально нагревают до температуры 95-115°C при давлении 0,02-0,098 МПа до получения расплавленной массы, после чего реакционную массу при указанном давлении нагревают до температуры 155-170°C.

20 Благодаря предлагаемому способу возможно:

- упростить процесс, существенно повысить его безопасность, исключить операции обработки реакционной массы водой, фильтрование суспензии и промывку осадка водой;

25 - увеличить температуру плавления целевого продукта с 232-237°C до 234-237°C; - снизить влагосодержание с 4-6% до отсутствия воды в готовом продукте;

- повысить выход целевого продукта на 8-9%;
- снизить расход фталевого ангидрида на 80-85

30 кг/т целевого продукта, карбамида на 125-130 кг/т целевого продукта, воды на 9000 кг/т целевого продукта;

- предотвратить образование сточных вод.

Лучший способ осуществления изобретения

35 Сущность предлагаемого способа заключается в следующем.

В смеситель с зет- или сигма-образными лопастями

- 4 -

загружают фталевый ангидрид и карбамид в мольном соотношении 1:0,5-0,7, герметизируют смеситель, соединяют его через прямой холодильник и приемник реакционной воды с вакуумной линией и создают в смесителе пониженное давление в 0,02-0,098 МПа. Коэффициент загрузки смесителя принимают равным 0,6-0,7. В рубашку смесителя подают теплоноситель и при перемешивании нагревают содержимое до температуры 95-115°C. При достижении в реакционной массе температуры 95°C начинается плавление реакционной массы, которое заканчивается при температуре 110-115°C. При нагревании фталевого ангидрида и карбамида, взятых в мольном соотношении 1:0,5-0,7, при постоянном перемешивании и давлении 0,02-0,098 МПа в интервале температуры 95-115°C, как мы считаем, происходит образование промежуточного соединения типа эвтектической смеси (индивидуальные карбамид и фталевый ангидрид плавятся при 132°C). После полного расплавления реакционной массы ее нагревают до температуры 125-130°C. При этом полученный сплав разлагается с выделением углекислого газа и образованием промежуточных аммонийных солей фталевой кислоты. В интервале температур 115-125-130°C процесс проходит без выделения тепла и сопровождается фазовым переходом, плав превращается в твердый крупнокристаллический продукт. При достижении температуры 125-130°C начинается процесс образования фталимида, сопровождающийся выделением тепла и интенсивным выделением углекислого газа, паров реакционной воды и избыточного аммиака. Температура реакционной массы при этом самопроизвольно возрастает до 150-160°C, а затем быстро снижается на 5-10°C. Реакционная масса в этот момент представляет сухой мелкокристаллический фталимид с включением отдельных крупных кристаллов аммонийных солей. Массу нагревают до 150-170°C, выдерживают при указанной температуре 10-60 минут для разложения примеси аммонийных солей, охлаждают до комнатной температуры и выгружают.

- 5 -

С выходом 99-100% получают порошкообразный мелкокристаллический обезвоженный продукт, имеющий температуру плавления 234-237°C, содержащий не менее 97% основного вещества, не более 0,5% кислых примесей и не более 0,5% аммонийных солей.

Согласно предлагаемому способу, фталевый ангидрид и карбамид используют в мольном соотношении 1:0,5-0,7. При использовании реагентов в соотношении менее, чем 1:0,5, резко возрастает содержание кислых примесей и снижается содержание основного вещества в целевом продукте. Использование реагентов в соотношении большем, чем 1:0,7, нецелесообразно, так как при этом происходит увеличение длительности процесса, вследствие необходимости разложения непрореагировавшего карбамида, кроме того, при этом происходит увеличение примеси аммонийных солей в целевом продукте, а также увеличение выделения газообразного аммиака. При этом процесс проводят при давлении в аппарате, равном 0,02-0,098 МПа. При давлении более 0,098 МПа, вследствие неудовлетворительного удаления реакционных газов из реакционной массы, получают продукт низкого качества, содержащий заметные количества кислых примесей и аммонийных солей. При давлении менее 0,02 МПа наблюдается заметное сублимирование целевого продукта, сопровождающееся зарастанием трубопроводов и снижением выхода целевого продукта.

Процесс имидирования в предлагаемом способе проводят при постоянном перемешивании. Перемешивание позволяет получить промежуточный продукт взаимодействия фталевого ангидрида и карбамида в виде расплава при нагревании до 95-115°C, и препятствует образованию агломератов, характерных для известного способа, кроме того, позволяет получить целевой продукт в виде обезвоженного, мелкокристаллического порошка. Плавление реакционной смеси при 95-115°C и образование промежуточного продукта предотвращает вспенивание реак-

- 6 -

ционной массы, повышает безопасность процесса, делает процесс имидирования легко управляемым. При этом полученный плав промежуточного продукта, согласно способу, необходимо дополнительно нагреть при указанном выше давлении до температуры 155-170°C. При нагреве менее 155°C целевой продукт может содержать значительное количество неразложившихся аммонийных солей, при температуре выше 170°C наблюдается сублимация целевого продукта, сопровождающаяся заростанием трубопроводов и снижением выхода продукта.

Для лучшего понимания данного изобретения приводятся следующие примеры его конкретного выполнения.

Пример 1.

В смеситель типа Вернер-Пфлейдерер емкостью 1,5 л загружают 444,36 г (3 моля) фталевого ангидрида и 90,09 г (1,5 моля) карбамида (мольное соотношение названных компонентов 1:0,5). Смеситель снабжен зет-образными лопастями, рубашкой для обогрева и охлаждения и крышкой, имеющей штуцера для загрузки реагентов, отсоса паров, и термомпары. После загрузки реагентов смеситель герметизируют, устанавливают в нем остаточное давление в 0,090-0,098 МПа и при перемешивании нагревают смесь до температуры 110-115°C. Полученный при этом плав нагревают до температуры 155°C и выдерживают при указанной температуре 60 минут. По окончании выдержки полученный продукт при перемешивании охлаждают до комнатной температуры.

Получают 439,1 г мелкокристаллического порошка, имеющего температуру плавления 234-235°C. Выход составляет 99,5% от теории, содержание основного вещества - 97%, кислых смесей - 0,33%, аммонийных солей - 0,41%.

Пример 2.

В смеситель, нагретый до 60-90°C, загружают 444,36 г (3 моля) фталевого ангидрида и 108,1 г (1,8 моля) карбамида (мольное соотношение фталевый

- 7 -

ангидрид:карбамид равно 1:0,6), герметизируют смеситель, устанавливают в нем остаточное давление 0,04-0,05 МПа и при перемешивании нагревают. При температуре 95-115°C смесь расплавляется, полученный

5 плав нагревают до 160°C и выдерживают при этой температуре 20-30 минут. По окончании выдержки реакционную массу охлаждают при перемешивании до комнатной температуры и выгружают из смесителя.

Получают 440,4 г мелкокристаллического порошка, имеющего температуру плавления 236-237°C. Выход составляет 99,8% от теории, содержание основного вещества - 97,4%, аммонийных солей - 0,15%, кислые примеси отсутствуют.

Пример 3.

15 В смеситель, нагретый до температуры 60-90°C, загружают 444,36 г (3 моля) фталевого ангидрида и 126,1 г карбамида (2,1 моля) (мольное соотношение названных компонентов равно 1:0,7), герметизируют смеситель, создают в нем остаточное давление

20 0,090-0,098 МПа и при перемешивании нагревают. При 95-115°C смесь расплавляется, полученный плав нагревают до 170°C и выдерживают при этой температуре 10-15 минут. По окончании выдержки реакционную массу охлаждают при перемешивании до комнатной температуры

25 и выгружают.

Получают 439,1 г мелкокристаллического порошка, имеющего температуру плавления 235-236°C. Выход составляет 99,5% от теории, содержание основного вещества - 97,3%, аммонийных солей - 0,21%, кислые примеси отсутствуют.

Пример 4.

В смеситель емкостью 50 л, снабженный прямым холодильником, приемником реакционной воды и соединенный с вакуумной системой, загружают 22 кг (0,1485 моля)

35 фталевого ангидрида и 5,35 кг (0,089 моля) карбамида (мольное соотношение названных компонентов равно

- 8 -

- I:0,6). Смеситель герметизируют, создают в нем остаточное давление 0,085-0,090 МПа, включают перемешивание и нагревают реакционную массу при перемешивании в течение часа до температуры 95-100°C до расплавления продукта и нагревают далее реакционную массу в течение 15-20 минут до температуры 125-130°C. В интервале температуры 110-130°C процесс сопровождается выделением углекислого газа. При достижении в реакционной массе температуры 125-130°C прекращают подачу теплоносителя в рубашку смесителя, температура реакционной массы при этом за 15-20 минут повышается до 155-156°C за счет выделяющегося реакционного тепла. При температуре 135-140°C начинается выделение воды и избыточного против стехиометрического количества аммиака. При достижении указанной температуры в системе устанавливают остаточное давление в 0,02-0,03 МПа. Выделяющиеся пары воды конденсируют в холодильнике и собирают в приемник, газообразные продукты реакции улавливают в водяной ловушке. При достижении в реакционной массе температуры 155-156°C в рубашку смесителя подают теплоноситель, нагревают массу до 160-165°C и выдерживают при указанной температуре 30 минут. По окончании выдержки реакционную массу охлаждают до комнатной температуры и выгружают.
- 25 Получают 21,9 кг мелкокристаллического порошка, имеющего температуру плавления 235,5-237°C и содержащего 97% основного вещества, 0,1% кислых примесей и 0,42% аммонийных солей. Выход составляет 99,5% от теории.
- 30 Пример 5.
- В смеситель емкостью 1,5 л, нагретый до 60-90°C, загружают 444,36 г (3 моля) фталевого ангидрида и 108,1 г (1,8 моля) карбамида (молярное соотношение фталевый ангидрид : карбамид составляет 1:0,6), герметизируют смеситель, устанавливают в нем давление 0,02 МПа и при перемешивании нагревают до температу-

- 9 -

ры 95-115°С при этом смесь расплавляется. Полученный плав нагревают до 160°С и выдерживают при этой температуре 20 минут. По окончании выдержки реакционную массу охлаждают до комнатной температуры и выгружают.

5 Получают 440,4 г мелкокристаллического порошка, имеющего температуру плавления $236-237^{\circ}\text{C}$, содержащего 98,1% основного вещества, 0,05% кислых примесей. Примесь аммонийной соли отсутствует, выход составляет 98,8% от теории.

10 Промышленная применимость

Изобретение найдет применение в качестве полупродукта при производстве замедлителей подвулканизации резиновых смесей, лекарственных препаратов, средств защиты растений, красителей, стабилизаторов для

15 пластмасс, антипиренов, стабилизаторов для масел, хлорирующих агентов.

- 10 -

ФОРМУЛА ИЗОБРЕТЕНИЯ

Способ получения фталимида путем взаимодействия фталевого ангидрида с карбамидом при нагревании, отличающийся тем, что фталевый ангидрид и карбамид используют в количестве, при котором их мольное соотношение составляет 1:0,5-0,7, соответственно, процесс ведут при постоянном перемешивании реакционной массы, а исходные компоненты первоначально нагревают до температуры 95-115°C при давлении 0,02-0,098 МПа до получения расплавленной массы, после чего реакционную массу при указанном давлении нагревают до температуры 155-170°C.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International Application No PCT/SU 84/00002

I. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER (If several classification symbols apply, indicate all) ¹		
According to International Patent Classification (IPC) or to both National Classification and IPC		
IPC ⁴ C 07 D 209/48		
II. FIELDS SEARCHED		
Minimum Documentation Searched ⁴		
Classification System	Classification Symbols	
IPC ³	C 07 D 209/48	
Documentation Searched other than Minimum Documentation to the Extent that such Documents are included in the Fields Searched ⁵		
III. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT ¹⁴		
Category ⁶	Citation of Document, ¹⁵ with Indication, where appropriate, of the relevant passages ¹⁷	Relevant to Claim No. ¹⁸
A	US, A, 4020089, (General Electric Company) 26 April 1977 (26.04.87), see columns 2,4 of the description,	1
A	US, A, 4001273 (BASF Aktiengesellschaft), 04 January 1977 (04.01.77) see columns 5,6 and the claim 1 & GB, A, 1465756	1
¹⁴ Special categories of cited documents: ¹⁵ "A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance "E" earlier document 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 "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 "A" document member of the same patent family		
IV. CERTIFICATION		
Date of the Actual Completion of the International Search ¹	Date of Mailing of this International Search Report ¹	
13 September 1984 (13.09.84)	18 October 1984 (18.10.84)	
International Searching Authority ¹	Signature of Authorized Officer ¹⁶	
ISA/SU		

ОТЧЕТ О МЕЖДУНАРОДНОМ ПОИСКЕ

Международная заявка № PCT/SU 84/00002

I. КЛАССИФИКАЦИЯ ОБЪЕКТА ИЗОБРЕТЕНИЯ (если применяются несколько классификационных индексов, укажите все) ³		
В соответствии с Международной классификацией изобретений (МКИ) или как в соответствии с национальной классификацией, так и с МКИ МКИ⁴ C07D 209/48		
II. ОБЛАСТИ ПОИСКА		
Минимум документации, охваченной поиском ⁴		
Система классификации	Классификационные рубрики	
МКИ³	C07D 209/48	
Документация, охваченная поиском и не входившая в минимум документации, в той мере, насколько она входит в область поиска ⁵		
III. ДОКУМЕНТЫ, ОТНОСЯЩИЕСЯ К ПРЕДМЕТУ ПОИСКА¹⁴		
Категория*	Ссылка на документ ¹⁶ , с указанием, где необходимо, частей, относящихся к предмету поиска ¹⁷	Относится к пункту формулы №18
A	US , A, 4020089, (General Electric Company), 26 апреля 1977 (26.04.77), см. колонки 2,4 описания	I
A	US , A, 4001273, (BASF Aktiengesellschaft), 04 января 1977 (04.01.77), см. колонки 5,6 и п.1 формулы & GB, A, 1465756	I
* Особые категории ссылочных документов ¹⁵ :		
.A* документ, определяющий общий уровень техники, который не имеет наиболее близкого отношения к предмету поиска.		
.E* более ранний патентный документ, но опубликованный на дату международной подачи или после нее.		
.L* документ, подвергающий сомнению притязание(я) на приоритет, или который приводится с целью установления даты публикации другого ссылочного документа, а также в других целях (как указано).		
.O* документ, относящийся к устному раскрытию, применению, выставке и т. д.		
.P* документ, опубликованный до даты международной подачи, но на дату испрашиваемого приоритета или после нее.		
.T* более поздний документ, опубликованный на или после даты международной подачи или даты приоритета и не порочащий заявку, но приведенный для понимания принципа или теории, на которых основывается изобретение.		
.X* документ, имеющий наиболее близкое отношение к предмету поиска; заявленное изобретение не обладает новизной и изобретательским уровнем.		
.Y* документ, имеющий наиболее близкое отношение к предмету поиска; документ в сочетании с одним или несколькими подобными документами порочит изобретательский уровень заявленного изобретения, такое сочетание должно быть очевидно для лица, обладающего познаниями в данной области техники.		
& документ, являющийся членом одного и того же патентного семейства.		
IV. УДОСТОВЕРЕНИЕ ОТЧЕТА		
Дата действительного завершения международного поиска ²	Дата отправки настоящего отчета о международном поиске ²	
13 сентября 1984 (13.09.84)	18 октября 1984 (18.10.84)	
Международный поисковый орган ¹	Подпись уполномоченного лица ²⁰	
ISA/SU	Н.Шепелев	