

(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10月3日(03.10.2024)



(10) 国際公開番号

WO 2024/204532 A1

(51) 国際特許分類:
C07C 209/48 (2006.01) C07C 211/27 (2006.01)
C07B 61/00 (2006.01)

(21) 国際出願番号: PCT/JP2024/012623

(22) 国際出願日: 2024年3月28日(28.03.2024)

(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 2023-058898 2023年3月31日(31.03.2023) 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: 杉田 卓也(SUGITA, Takuya); 〒9503121 新潟県新潟市北区松浜町3500 三菱瓦

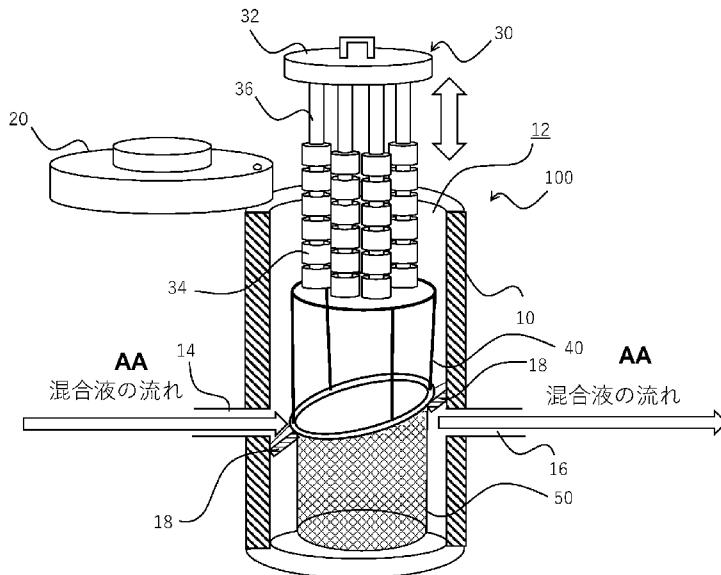
斯化学株式会社 新潟工場内 Niigata (JP). 大谷 貴之(OHTANI, Takayuki); 〒9503121 新潟県新潟市北区松浜町3500 三菱瓦斯化学株式会社 新潟工場内 Niigata (JP). 宗安 邦明(MUNEYASU, Kuniaki); 〒9503121 新潟県新潟市北区松浜町3500 三菱瓦斯化学株式会社 新潟工場内 Niigata (JP).

(74) 代理人: 稲葉 良幸, 外(INABA, Yoshiyuki et al.); 〒1066123 東京都港区六本木6-10-1 六本木ヒルズ森タワー23階 TMI 総合法律事務所 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 XYLYLENEDIAMINE AND METHOD FOR CLEANING MAGNET STRAINER

(54) 発明の名称: キシリレンジアミンの製造方法、及び、マグネットストレーナの清掃方法



AA Flow of liquid mixture

(57) Abstract: Provided is a method for producing xylylenediamine by hydrogenating dicyanobenzene, said method comprising: a step for hydrogenating dicyanobenzene in the presence of a catalyst and obtaining a liquid mixture that contains at least a reaction product and at least part of the catalyst; and a step for passing the liquid mixture through a magnet strainer and separating the catalyst by magnetic adsorption, wherein the magnet strainer is provided with a body that has an opening, a lid material that is installed in the opening of the body, and a magnetic adsorption means that is provided inside the body and that is separated from the lid material.

[続葉有]



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))

(57) 要約: ジシアノベンゼンを水素化してキシリレンジアミンを製造する製造方法であって、前記ジシアノベンゼンを触媒存在下で水素化し、少なくとも反応生成物と前記触媒の少なくとも一部とを含む混合液を得る工程と、マグネットストレーナ内に前記混合液を通過させて磁気吸着によって前記触媒を分離する工程と、を含み、前記マグネットストレーナが、開口部を有する本体と、前記本体の開口部に設置される蓋材と、前記本体の内部に備えられ且つ前記蓋材から分離された磁気吸着手段と、を備えた、キシリレンジアミンの製造方法。

明 細 書

発明の名称：

キシリレンジアミンの製造方法、及び、マグネットストレーナの清掃方法

技術分野

[0001] 本発明は、新規なキシリレンジアミンの製造方法、及び、マグネットストレーナの清掃方法に関する。

背景技術

[0002] キシリレンジアミンは、ポリアミド樹脂、硬化剤等の原料、及びイソシアネート樹脂等の中間原料として有用な化合物である。キシリレンジアミンの製造方法としては、例えば、ジシアノベンゼンの水素化を利用した方法が種々検討されている。ジシアノベンゼンを水素化してキシリレンジアミンを合成する方法の一例としては、ジシアノベンゼンを原料として２段階の水素化反応を行う方法が挙げられ、当該方法によれば高純度のキシリレンジアミンを効率よく製造することができる。２段階の水素化反応を行うことによりキシリレンジアミンを製造するプロセスとしては、例えば、固液分離工程を組み込むことで、シアノベンジルアミン含量の低い高純度のキシリレンジアミンを長期間にわたり安定して得られる方法が提案されている（例えば、下記特許文献１参照。）。

先行技術文献

特許文献

[0003] 特許文献１：特許６８０６２９０号公報

発明の概要

発明が解決しようとする課題

[0004] 上述のように固液分離工程を行う目的の一つとしては、キシリレンジアミン製造時に固定床反応器から生じる触媒由来の触媒粉を固液分離することが挙げられる。このような触媒は水素化によって得られた反応溶液中に存在しており、固液分離手段としては、例えば、磁石を用いたマグネットストレー

ナなどが採用されている。通常、マグネットストレーナを用いた場合、所定の時間触媒粉を除去した後、触媒による後段の閉塞防止のため、棒状のマグネット（磁石）に付着する触媒微粉を定期的に清掃除去する必要がある。

[0005] しかし、一般的なマグネットストレーナはストレーナ蓋部に棒状のマグネットが設置されていることから、マグネットの清掃時にはストレーナ本体を開放後、マグネット部を重量のある蓋ごとチェーンブロックで吊り上げて持ち上げる必要がある。さらに、マグネットストレーナに捕集された触媒の微粉を安全に行うためには清掃を迅速に行う必要があり、簡便で安全なストレーナ清掃方法の開発が望まれている。

[0006] 本発明は、上述の課題を解決すべく、マグネットストレーナの迅速かつ簡便な清掃が可能なキシリレンジアミンの製造方法、及び、マグネットストレーナの清掃方法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

[0007] 本発明者は、蓋材と磁気吸着手段とを分離させた構造のマグネットストレーナを用いることで、清掃時に磁気吸着手段のみを取り外すことで迅速かつ簡便で安全な清掃が可能であることを見出し、本発明に至った。

[0008] <1>

ジシアノベンゼンを水素化してキシリレンジアミンを製造する製造方法であって、

前記ジシアノベンゼンを触媒存在下で水素化し、少なくとも反応生成物と前記触媒の少なくとも一部とを含む混合液を得る工程と、

マグネットストレーナ内に前記混合液を通過させて磁気吸着によって前記触媒を分離する工程と、

を含み、

前記マグネットストレーナが、開口部を有する本体と、前記本体の開口部に設置される蓋材と、前記本体の内部に備えられ且つ前記蓋材から分離された磁気吸着手段と、を備えた、キシリレンジアミンの製造方法。

<2>

前記マグネットストレーナが、前記本体内部に、前記磁気吸着手段を支持するガイドと、前記混合液中の固形物を除去するためのバケットと、を備えた、前記<1>に記載のキシリレンジアミンの製造方法。

<3>

前記磁気吸着手段が、磁石と、前記磁石を保持する保持部材と、を備えた前記<1>に記載のキシリレンジアミンの製造方法。

<4>

前記マグネットストレーナが、前記本体内部に、前記磁気吸着手段を支持するガイドと、前記混合液中の固形物を除去するためのバケットと、を備え、

前記磁気吸着手段が、磁石と、前記磁石を保持する保持部材と、を備え、

前記ガイドによって、前記磁気吸着手段の前記保持部材が支持された、前記<1>に記載のキシリレンジアミンの製造方法。

<5>

さらに、前記マグネットストレーナの前記本体内部から、前記蓋材と分離された前記磁気吸着手段を取り出し、前記磁気吸着手段の清掃を行う工程を含む、前記<1>～<4>のいずれかに記載のキシリレンジアミンの製造方法。

<6>

触媒存在下におけるジシアノベンゼンの水素化によって得られた反応生成物と触媒とを含む混合液から磁気吸着によって前記触媒を除去するマグネットストレーナの清掃方法であって、

前記マグネットストレーナが、開口部を有する本体と、前記本体の開口部に設置される蓋材と、前記本体の内部に備えられ且つ前記蓋材から分離された磁気吸着手段と、を備えており、

前記マグネットストレーナの前記本体内部から、前記蓋材と分離された前記磁気吸着手段を取り出し、前記磁気吸着手段の清掃を行う、マグネットストレーナの清掃方法。

発明の効果

[0009] 本発明によれば、マグネットストレーナの迅速かつ簡便な清掃が可能なキシリレンジアミンの製造方法、及び、マグネットストレーナの清掃方法を提供することができる。

図面の簡単な説明

[0010] [図1]本実施形態におけるマグネットストレーナの構成を示す概略図である。

[図2]マグネットストレーナにおいて蓋材が閉められた状態を示す概略図である。

[図3]本実施形態における清掃工程を説明するための概略図である概略図である。

[図4]本実施形態の基本的な流れを示すフローチャートである。

発明を実施するための形態

[0011] 本実施形態のキシリレンジアミンの製造方法（以下、「本実施形態の製造方法」と称することがある。）は、ジシアノベンゼンを水素化してキシリレンジアミンを製造する製造方法であって、ジシアノベンゼンを触媒存在下で水素化し、少なくとも反応生成物と触媒の少なくとも一部とを含む混合液を得る工程（以下、「第1の水素化工程」と称することがある。）と、マグネットストレーナ内に混合液を通過させて磁気吸着によって触媒を分離する工程（以下、「固液分離工程」と称することがある）と、を含み、マグネットストレーナが、開口部を有する本体と、前記本体の開口部に設置される蓋材と、前記本体の内部に備えられ且つ前記蓋材から分離された磁気吸着手段と、を備える。本実施形態の製造方法は、少なくとも、第1の水素化工程と、固液分離工程と、を含み、さらに必要に応じて、清掃工程、液体アンモニウム除去工程、第2の水素化工程等を含んでもよい。

[0012] また、本実施形態のマグネットストレーナの清掃方法（以下、「本実施形態の清掃方法」と称することがある。）は、触媒存在下におけるジシアノベンゼンの水素化によって得られた反応生成物と触媒とを含む混合液から磁気吸着によって触媒を除去するマグネットストレーナの清掃方法であって、マ

マグネットストレーナが、開口部を有する本体と、本体の開口部に設置される蓋材と、本体の内部に備えられ且つ蓋材から分離された磁気吸着手段と、を備えており、マグネットストレーナの本体内部から、蓋材と分離された磁気吸着手段を取り出し、磁気吸着手段の清掃を行う清掃方法である。本実施形態の清掃方法は、後述する本実施形態の製造方法の清掃工程に相当する。

[0013] 本実施形態の製造方法及び清掃方法によれば、ジシアノベンゼンを触媒存在下で水素化して得られた反応生成物と触媒の少なくとも一部とを含む混合液に対し、蓋材と、当該蓋材から分離された磁気吸着手段と、を備えたマグネットストレーナを用いて磁気吸着によって液中の触媒を除去することができる。一方、上述のように、マグネットストレーナは所定の時間触媒粉の除去に使用された後、触媒による後段の閉塞防止のため、磁気吸着手段の磁石に付着した触媒を除去するために定期的に清掃工程が実施される。本実施形態におけるマグネットストレーナは、従来と異なり磁気吸着手段が蓋材から分離された別の部材であることから、蓋材の自体の重量を低減させることができ、マグネットストレーナの清掃の際に容易に蓋材の開閉を行うことができ、さらに、マグネットストレーナを清掃する際に、磁気吸着手段を重い蓋ごとチェーンブロックで吊り上げる必要がなく、磁気吸着手段のみをマグネットストレーナ内から取り出すことができる。このため、マグネットストレーナ清掃時の作業負担を大幅に低減できる。さらに、チェーンブロックによる作業のための準備も必要なくなり、マグネットストレーナを迅速かつ簡便に清掃できると共に、清掃者の身体にかかる負担を軽減することもできる。また、マグネットストレーナの清掃の際には磁気吸着手段の磁石表面に付着した触媒粉に水を吹きかけるなど触媒の発熱を抑制するために安全処置が施される。本実施形態の本実施形態の製造方法及び清掃方法によれば、簡便に磁気吸着手段を取り出すことができることから、触媒粉への水を吹きかける作業も迅速に行うことができ、より安全に清掃作業を行うことができる。

[0014] 以上のように、本実施形態の製造方法及び清掃方法によれば、マグネットストレーナの迅速かつ簡便な清掃が可能であることから、キシリレンジアミ

ンを効率よく製造することが可能となる。

[0015] また、本実施形態の製造方法によれば、２段階の水素化反応を採用し、第１の水素化工程と第２の水素化工程との間に固液分離工程を含めることで、第２の水素化反応の条件を変えることなく、長期間、安定的に高純度のキシリレンジアミンを製造し続けることができる。その理由は定かではないが、第１の水素化反応に用いられる反応器から流出してくる触媒の微粉を固液分離工程において第２の水素化反応に用いられる反応器に供給する前に除去することで、第２の水素化反応に用いられる反応器における触媒微粉の堆積を防ぐことができ、さらに、堆積した触媒微粉を原因とするキシリレンジアミンの変質とそれによって促進される触媒の凝集を効果的に抑制することができるものと推測される。また、これにより、第２の水素化反応の条件を変えることなく、長期間、安定的に高純度のキシリレンジアミンを製造し続けることができるものと考えられる。

[0016] 《マグネットストレーナ》

まず、本実施形態の製造方法及び清掃方法に用いられるマグネットストレーナについて説明する。本実施形態におけるマグネットストレーナは、開口部を有する本体と、前記本体の開口部に設置される蓋材と、前記本体の内部に備えられ且つ前記蓋材から分離された磁気吸着手段と、を備える。ここで、「蓋材から分離された磁気吸着手段」とは、蓋材と磁気吸着手段とが、直接又は他の部材を介して連結などされておらず、各々別途独立にマグネットストレーナに取り付け可能なことを意味する。

[0017] 図１及び図２を用いて本実施形態におけるマグネットストレーナについて説明する。図１は本実施形態におけるマグネットストレーナの構成の一例を示す概略図である。また、図２はマグネットストレーナ１００において蓋材が閉められた状態を示す概略図である。図１に示すように、マグネットストレーナ１００は、開口部１２を有する本体１０と、本体１０の開口部１２に設置される蓋材２０と、本体１０の内部に備えられ且つ蓋材２０から分離された磁気吸着手段３０と、を備え、さらに、本体１０内部に、磁気吸着手段

３０を支持するガイド４０と、混合液中の固形物を除去するためのバケット５０と、を備える。また、マグネットストレーナ１００は、磁気吸着手段３０が、磁石３４と、磁石３４を保持する保持部材３２と、を備えており、ガイド４０によって、磁気吸着手段３０の保持部材３２が支持されている。ここで、図１は蓋材２０が移動し本体１０の開口部１２が解放された状態を示しており、内部を示すため本体１０の壁面の一部を省略した断面図となっている。なお、図１及び図２は概略図であり、本実施形態におけるマグネットストレーナの構成は図１に示すものに限定されるものではなく、また、各部材の大きさや形状、部材間の比率はこれに限定されるものではない。

[0018] マグネットストレーナ１００は、本実施形態における固液分離工程において設置される装置であり、本体１０内に第１の水素化工程において得られた混合液を通過させることによって、磁気吸着によって混合液から少なくとも触媒を分離する。なお、図１に示す態様において、磁気吸着手段３０、ガイド４０、及び、バケット５０は、清掃工程の際に、各々本体１０内部から開口部１２を介して取り出し可能なように設置されている。

[0019] 本体１０は、開口部１２を有し、内部に磁気吸着手段３０等を設置可能な空間を有している。図２に示すように、固液分離工程においては、蓋材２０が閉まった状態であり、本体１０の開口部１２は閉塞されている。図１及び図２に示すように、本体１０は、供給口１４と排出口１６とを有しており、固液分離工程において、第１の水素化工程で得られた混合液が供給口１４より本体１０の内部に供給される。ついで、本体１０の内部に供給された混合液は、磁気吸着手段３０に接触及びバケット５０に備えられたフィルターを通過し、これにより混合液中の固形物が除去される。磁気吸着手段３０に接触及びバケット５０を通過した混合液は、排出口１６より本体１０外に排出される。

[0020] 開口部１２は本体１０の重量方向上側（図１における紙面上側）に設けられており、清掃工程時に解放され、開口部１２から内部に設置された磁気吸着手段３０を取り出し可能なようにその内径が設定されている。

[0021] 蓋材 20 は、本体 10 上面の開口部 12 の縁端に水平方向に回動可能なように取り付けられており、清掃工程時に蓋材 20 を回動させることによって開口部 12 の開閉を行う。ただし、蓋材 20 の開閉機構は、水平方向の回動に限定されるものではなく、容易に開閉することが可能であれば、水平方向にスライドさせたり、蝶番によって上下方向に開くことによって開閉を行うなど他の機構であってもよい。なお、固液分離工程にて蓋材 20 が開口部 12 を塞いでいる状態においては、蓋材 20 がボルト等によって本体 10 に固定されていてもよい。

[0022] 磁気吸着手段 30 は、図 1 に示すように、磁石 34 と、磁石 34 を保持する保持部材 32 と、を備えており、磁石 34 が本体 10 に供給された混合液と接触することによって、混合液内の触媒を吸着除去することができる。図 1 に示すように、保持部材 32 の重力方向下方（図 1 における紙面下方）には、複数のマグネット部材 36 が取り付けられており、各マグネット部材 36 には複数の磁石 34 が備えられている。磁気吸着手段 30 の磁力については、磁気吸着手段 30 のサイズや溶液の流速等を考慮して、触媒微粉が除去可能な磁力を選択することが望ましいが、具体的には、マグネット部材 36 の 1 本あたり 0.1 ～ 3 テスラ（T）が好ましく、0.5 ～ 2 テスラ（T）がより好ましい。

[0023] 図 1 において、マグネット部材 36 は、棒状の形状を有している。ここで、図 1 においては磁気吸着手段 30 を本体 10 内から取り出した状態が示されているが、固液分離工程においては、磁気吸着手段 30 は本体 10 の内部に格納されており、具体的には、マグネット部材 36 の磁石 34 を有する部位の少なくとも一部が、バケット 50 内に収容されるように磁気吸着手段 30 の保持部材 32 がガイド 40 によって支持されている。なお、図 1 における磁気吸着手段 30 は、保持部材 32 に対し棒状のマグネット部材 36 を介して磁石 34 が備えられた構成が示されているが、本実施形態における磁気吸着手段の構成は当該態様に限定されるものではなく、例えば、棒状の磁石が直接又は間接的に保持部材に取り付けられた態様など他の構成であっても

よい。

[0024] 図1に示すように、マグネットストレーナ100は、必要に応じて、本体10内部に、磁気吸着手段30を支持するガイド40と、混合液中の固形物を除去するためのバケット50と、を備えることができる。ガイド40は、本体10内で磁気吸着手段30の保持部材32を支持する役割を有する。これにより、バケット50を設置した際に、バケット50によって直接磁気吸着手段30を支持する場合に比して、磁気吸着手段30の加重を外周部に分散させることができ、バケット50にかかる負荷を軽減させることができる。また、ガイド40は、複数のリング状部材を組み合わせて構成することができるが、本体10内で磁気吸着手段30の保持部材32を支持できるものであれば、その構成は限定されるものではない。なお、図1において、ガイド40の形状は、バケット50の上部の形状と併せて、その(下部が断面視で斜めにカットされた形状とされているが、ガイド40の形状はこれに限定されるものではない。

[0025] バケット50は、フィルターを備えた部材であり、バケット50を通過する混合液内の固形物をフィルターによって除去することができる。図1においてバケット50は円筒状の部材を断面視で斜めにカットされた形状を有している。具体的には、混合液中の固形物をバケット50内で捕集できるように、バケット50の形状は供給口14側の壁面の高さが供給口14よりも低く、且つ、排出口16側の壁面の高さが排出口16よりも高くなるように構成されている。これにより、供給口14から供給された混合液が排出口16に向かって流れる過程において混合液中の固形物がバケット50の排出口16側のフィルターにより捕集され、バケット50内にて固形物を収集することができる。ただし、バケット50は当該形状に限定されるものではなく、混合液内の固形物をフィルターによって除去することができる形状であれば、その形状は特に限定されるものではない。

[0026] 図1に示すように、本体10の内壁には、内壁に沿ってリング状の突起部18が設けられており、突起部18によってバケット50が本体10内に中

空で固定されるように支持されている。これにより、バケット５０によって直接磁気吸着手段３０を支持する場合に比して、磁気吸着手段３０の加重を突起部１８より本体１０内周部にも分散させることができ、バケット５０にかかる負荷を軽減させることができる。また、バケット５０が中空で固定されるように突起部１８に支持されることで、バケット５０の底面からも液流れが生じ、混合液の全量がバケット５０を通過させることができる。

[0027] 《清掃方法（清掃工程）》

つぎに、本実施形態の清掃方法（清掃工程）について、図３を用いて説明する。図３は、本実施形態における清掃工程を説明するための概略図である。図３において、図３（Ａ）は固液分離工程におけるマグネットストレーナ１００の状態を示す。清掃工程は、マグネットストレーナの本体内部から、蓋材と分離された磁気吸着手段を取り出し、磁気吸着手段の清掃を行う工程である。本実施形態の製造方法は、固液分離工程によって所定の期間触媒粉を除去した後、触媒による後段の閉塞防止のため、磁気吸着手段の磁石に付着した触媒を除去するために定期的に清掃工程を実施することが好ましい。

[0028] 固液分離工程においては、図３（Ａ）中矢印で示されるように、第１の水素化工程で得られた混合液がマグネットストレーナ１００内部に供給される。マグネットストレーナ１００内において、混合液が磁気吸着手段３０に接触すると、混合液中の触媒が除去される。また、混合液中の他の固形物はバケット５０を通過する際にバケット５０のフィルターにより除去される。触媒等の固形物が除去された混合液は、図３（Ａ）中矢印で示されるようにマグネットストレーナ１００外に排出される。

[0029] 図３において、図３（Ｂ）及び（Ｃ）は、清掃工程におけるマグネットストレーナ１００の状態を示す。清掃工程においては、混合液の供給を停止した後、図３（Ｂ）に示されるように、蓋材２０を水平方向に回転させることによってマグネットストレーナ１００の開口部１２を開放する。ついで、図３（Ｃ）に示すように、マグネットストレーナ１００内から磁気吸着手段３０を取り出し、磁石に吸着した粉上の触媒等を除去する。この際、上述のよ

うに触媒が外気に触れて発熱するのを抑制すべく、磁気吸着手段30をマグネットストレーナ100内から取り出した後、速やかに磁石に吸着した触媒に対し水などを吹きかけることが好ましい。

[0030] また、清掃工程においては、磁気吸着手段30と共に、ガイド40及びバケット50をマグネットストレーナ100内から取り出して、バケット50にて捕集された固形物を除去するのが好ましい。

清掃が完了すると、マグネットストレーナ100内の所定の位置に磁気吸着手段30等を戻し、蓋材20を閉め、再び固液分離工程が実施される。

[0031] 本実施形態の清掃方法（清掃工程）においては、マグネットストレーナを1つのみ用いてもよいし、複数用いてもよい。また、複数のマグネットストレーナを用いる場合複数のマグネットストレーナは、第1の水素化工程から供給される混合液の流れに対し、直列に配置されていてもよいし、並列に配置されていてもよいし、直列及び並列の組み合わせであってもよい。また、複数のマグネットストレーナを用いる場合、清掃の対象となるマグネットストレーナの供給口及び排出口に設置されるバルブを閉めて、清掃の対象外となるマグネットストレーナのみに第1の水素化工程からの混合液が供給されるように、混合液の流れを切り替えることができる。これにより、清掃工程の実施によりキシリレンジアミンの製造工程を停止する必要がなく、継続して行うことができる。

[0032] 《キシリレンジアミンの製造方法》

上述のように、本実施形態の製造方法は、第1の水素化工程、及び、固液分離工程を含み、さらに、固液分離工程で使用されたマグネットストレーナ内を清掃（磁気吸着手段の清掃）する清掃工程を含むことが好ましいが、その他、必要に応じて、アンモニア分離工程や精製工程を設けることができる。

[0033] また、本実施形態の製造方法は、例えば、2段階の水素化反応を採用することができる。第1の水素化工程に加えて第2の水素化工程を設けると、第1の水素化工程において副生するシアノベンジルアミンを、第2の水素化工

程において水素化することで効率良くキシリレンジアミンに変換することができる。さらに、第1の水素化工程と第2の水素化工程との間に固液分離工程を含めることで、第2の水素化反応の条件を変えことなく、長期間、安定的に高純度のキシリレンジアミンを製造し続けることができる。

[0034] 本実施形態の製造方法の好ましい一例としては、下記(1)～(5)の工程を含む方法が挙げられる。

(1) ジシアノベンゼンと、液体アンモニアを含有する溶媒との混合物を、触媒存在下、固定床反応器で水素化し、反応生成物と触媒とを含む混合液を得る第1の水素化工程、

(2) 混合液に含まれる液体アンモニアを分離除去するアンモニア分離工程、

(3) マグネットストレーナ内に混合液を通過させて固液分離し、触媒等の固体成分を除去する固液分離工程、

(4) 固体成分を除去した混合液について、固定床反応器で水素化を行う第2の水素化工程；及び、

(5) マグネットストレーナの本体内から、蓋材と分離された磁気吸着手段を取り出し、磁気吸着手段の清掃を行う工程

[0035] 本実施形態の製造方法において、固液分離工程をアンモニア分離工程の後に実施すると、固液分離工程において流通させる液量が少なくなるため、設備を小さく、かつ低圧にすることができ工業的に有利である。ただし、上述の(2)アンモニア分離工程と(3)固液分離工程とは、順序が逆であってもよく、固液分離工程を行った後に、アンモニア分離工程を実施してもよい。

以下、本実施形態の製造方法の各工程について詳細に説明する。

[0036] <第1の水素化工程>

第1の水素化工程は、ジシアノベンゼンを触媒存在下で水素化し、少なくとも反応生成物と触媒の少なくとも一部とを含む混合液を得る工程である。本工程としては、例えば、ジシアノベンゼンと液体アンモニアを含有する溶

媒とを含む溶液を固定床反応器で水素化し、反応生成物を得ることができる。

[0037] (ジシアノベンゼン)

本工程に用いるジシアノベンゼンは、特に限定はなく、どのような方法によって得られるものでもよいが、例えば、キシレンのアンモ酸化反応によって得られるものであることが工業的に好ましい。

[0038] アンモ酸化反応

ジシアノベンゼンを得るためのアンモ酸化反応は公知の方法で実施することが可能である。具体的には、触媒、キシレン、酸素、及び、アンモニアを混合した反応原料を反応させることによって行うことができる。アンモ酸化反応は、流動床又は固定床のいずれも可能である。アンモ酸化の触媒は公知の触媒を使用することが出来るが、バナジウム又はクロムを含有することが好ましく、バナジウムとクロムを含有することがより好ましい。

[0039] アンモニアの量はキシレン 1 モルに対して 2～20 モルが好ましく、6～15 モルがより好ましい。アンモニアの量が上述の範囲内であるとジシアノベンゼンの収率が良好であり、空時収率も高い。酸素は、酸素を窒素、炭酸ガス等で希釈して酸素含有ガスとして用いることもできる。

[0040] 酸素含有ガスとしては、空気を用いることが好ましい。酸素の量は、キシレン 1 モルに対して 3 モル以上が好ましく、4～100 モルがより好ましい。酸素の量が上述の範囲内であるとジシアノベンゼンの収率が良好であり、空時収率も高い。反応温度は 300～500℃が好ましく、330～470℃がより好ましい。温度が上述の範囲内であるとキシレンの転化率が良好であり、副生成物が抑制され、ジシアノベンゼンを良好な収率で製造することができる。圧力は、常圧（大気圧）～300 kPa が好ましく、反応原料の空間速度（Gas Hourly Space Velocity=GHSV）は 500～5000 h⁻¹ が好ましい。

[0041] 前記反応で得られたジシアノベンゼンを捕集し、原料として、第1の水素化工程に用いることができる。ジシアノベンゼンの捕集については、ガス状

のアンモ酸化反応生成物をジシアノベンゼンが析出する温度まで冷却してから捕集してもよいし、水や適当な有機溶媒でガス状のアンモ酸化反応生成物を捕集してもよい。捕集に用いられる有機溶媒は、ジシアノベンゼンの溶解度が高く、かつジシアノベンゼンに対して不活性な1種類以上の有機溶媒であることが好ましく、その中でもトルニトリルがさらに好ましい。ジシアノベンゼン捕集液は、そのまま第1の水素化工程に用いてもよいが、第1の水素化工程に用いる前に、前記有機溶媒を含むジシアノベンゼンよりも低い沸点を有する成分（低沸点成分）の一部又は全部を蒸留により分離することが好ましい。このように蒸留によって低沸点成分を分離することで、ジシアノベンゼンを得ることができると共に、回収した有機溶媒を再び反応生成物の捕集に使用することができる。また、ジシアノベンゼンよりも高い沸点を有する成分（高沸点成分）の一部又は全部についても、蒸留あるいは抽出により分離してもよい。

[0042] ジシアノベンゼンとしては、例えば、フタロニトリル（1，2-ジシアノベンゼン）、イソフタロニトリル（1，3-ジシアノベンゼン）又はテレフタロニトリル（1，4-ジシアノベンゼン）の3種の異性体を用いることができる。上述のアンモ酸化方法によれば、対応するキシレンであるオルト-キシレン、メタ-キシレン、パラ-キシレンを適宜選定することで所望のジシアノベンゼンを製造することができる。本実施形態の製造方法においては、第1の水素化工程におけるジシアノベンゼンがイソフタロニトリルであり、得られるキシリレンジアミンがメタ-キシリレンジアミンであることが好ましい。

[0043] （液体アンモニアを含有する溶媒）

本工程においては、ジシアノベンゼンを、液体アンモニアを含有する溶媒に溶解させた後、触媒の存在下で、液相で水素化を行うことができる。

液体アンモニアを含有する溶媒としては、（i）液体アンモニア、（ii）液体アンモニアと芳香族炭化水素との混合溶媒、（iii）液体アンモニアとキシリレンジアミンとの混合溶媒、（iv）液体アンモニア、芳香族炭

化水素、及びキシリレンジアミンの混合溶媒等が挙げられる。芳香族炭化水素は、一種又は二種以上を混合して用いてもよい。

[0044] ジシアノベンゼンの水素化反応の収率を高める点から、溶媒中の液体アンモニア濃度は高い方が好ましく、具体的には60質量%以上がより好ましく、100質量%が更に好ましい。本工程における液体アンモニアを含有する溶媒の量は、特に限定はないが、ジシアノベンゼン1質量部に対して1～99質量部が好ましく、3～66質量部がより好ましく、5～49質量部が更に好ましい。溶媒の量が上述の範囲内であると溶媒回収に要するエネルギーが少なく、経済的に有利であり、水素化反応におけるキシリレンジアミンの選択率も良好である。

[0045] ジシアノベンゼンの液体アンモニアを含有する溶媒への溶解手段は特に限定はないが、スタティックミキサー等の混合機を用いる他、析出した不溶成分の混合機等への付着を防ぐ観点からは、予め溶解槽内にてジシアノベンゼンと液体アンモニアを含有する溶媒とを混合して溶解させることが好ましい。この際、溶解槽内に、熔融状ジシアノベンゼンと液体アンモニアを含有する溶媒とを供給して溶解させることが好ましく、必要であれば攪拌手段を用いてもよい。

[0046] ジシアノベンゼンを、液体アンモニアを含有する溶媒に溶解する際、溶解槽内の圧力及び温度は、溶液が液相を保つように調整することが好ましい。例えば、溶解槽内の圧力は0.5～15MPaが好ましく、0.7～10MPaがより好ましく、1～8MPaが更に好ましい。また、溶解槽内の溶液温度は3～140℃が好ましく、5～120℃がより好ましく、10～100℃が更に好ましい。

[0047] ー固定床反応器ー

本工程における水素化反応は固定床反応器を用いて行うことができる。固定床反応は、回分式、連続式のいずれでもよいが、本発明の効果を十分に発揮させるためには、連続式が好ましい。

連続反応を行う場合、水素化反応器出口から得られる水素化反応液の一部

を水素化反応器に連続的に戻す循環方式を用いてもよく、特開 2008-31155 号公報に記載されているように循環方式とワンパス方式を組み合わせ用いてもよい。連続式で行う場合、反応原料の空間速度 (Liquid Hourly Space Velocity=LHSV) は 0.1~10 h⁻¹ が好ましい。

回分式で行う場合、水素化反応時間は 0.5~8 時間が好ましい。

[0048] (触媒)

本工程に用いられる触媒としては、公知の担持金属触媒、非担持金属触媒、ラネー触媒、スポンジ触媒、貴金属触媒等を用いることができる。特に、強磁性体であるニッケル及び／又はコバルトを含有する触媒を用いることが好ましい。触媒の使用量は公知のジシアノベンゼンの液相水素化に使用されている量であればよい。

[0049] (第 1 の水素化工程の反応条件)

本工程で用いる水素は、反応に関与しない不純物、例えばメタン、窒素等を含んでいてもよい。ただし、水素中の不純物濃度が高いと、必要な水素分圧を確保するために反応全圧を高める必要があり工業的に不利となることから、水素を含むガス中の水素濃度は、50 モル%以上が好ましく、80 モル%以上がより好ましい。

[0050] 本工程において、キシリレンジアミンを効率良く製造するためには、ニトリル基のアミノメチル基への水素化反応の進行度合いを高めることが好ましく、水素化反応後に得られる反応生成物を含む混合液中のジシアノベンゼン及びシアノベンジルアミンの濃度を低い状態に保つ反応条件を選択することが好ましい。具体的には、水素化反応後に得られる反応生成物中でのキシリレンジアミンに対するシアノベンジルアミンの量を 5.0 質量%以下に保つことが好ましく、1.0 質量%以下に保つことがより好ましく、0.2 質量%以下に保つことが更に好ましい。また、ジシアノベンゼンの転化率は 99.50%以上が好ましく、99.90%以上がより好ましく、99.95%以上が更に好ましい。

[0051] 水素化反応の圧力及び温度は、溶液が液相を保つように調整することが好ましい。水素化反応の温度は20～200℃が好ましく、30～150℃がより好ましく、40～120℃が更に好ましい。水素圧力は1～30MPaが好ましく、2～25MPaがより好ましく、3～20MPaが更に好ましい。

[0052] <アンモニア分離工程>

アンモニア分離工程は、混合液に含まれる液体アンモニアを分離除去する工程である。アンモニア分離工程は、第1の水素化工程と固液分離工程との間で行ってもよいし、固液分離工程と第2の水素化工程との間で行ってもよい。

[0053] 本工程は、前工程で用いた、液体アンモニアを含有する溶媒中の液体アンモニアの全部又は一部を分離除去する。液体アンモニアを含有する溶媒が芳香族炭化水素等の液体アンモニア以外の溶媒を含む場合、液体アンモニアのみを分離除去してもよく、液体アンモニアと液体アンモニア以外の溶媒を同時に分離除去してもよい。工業的な観点からは、液体アンモニアと液体アンモニア以外の溶媒を同時に分離除去することが好ましい。

[0054] 本工程において、液体アンモニアを分離除去する方法は特に制限されるものではないが、例えば、蒸留によって液体アンモニアを分離除去する方法が好ましい。前記蒸留は加圧条件で行うのが好ましく、その際の圧力は0.2～3MPaが好ましい。また、蒸留の際の温度は50～200℃が好ましく、70～180℃がより好ましい。本工程で用いることのできる蒸留装置としては充填塔、棚段塔、フラッシュドラム等の公知の蒸留装置が使用可能であり、蒸留は回分式又は連続式で実施することができる。

[0055] また、本工程の蒸留後に得られる混合液におけるアンモニアの量は1.0質量%以下であることが好ましい。アンモニアの量が1.0質量%以下であると、蒸留後の溶液の分圧の上昇を防ぐことが可能であり、後のプロセスにおいて高圧の反応器が不要となり経済的に有利である。

[0056] <固液分離工程>

固液分離工程は、マグネットストレーナ内に前記混合液を通過させて磁気吸着によって前記触媒を分離する工程であり、混合液中の触媒等の固形物を除去する工程である。

[0057] 本工程における固体成分は、主として第1の水素化工程において生じた不溶成分であるが、主成分は、第1の水素化工程にて用いられた触媒由来の触媒粉であり、具体的には、粒径が1～500 μ mである触媒微粉が主成分であると考えられる。

[0058] 本工程においては、上述のように本実施形態におけるマグネットストレーナを用いた磁気吸着による固液分離が行われる。本実施形態の製造方法は、磁気吸着を採用することで、ニッケルやコバルト等の強磁性を有する成分を使用している触媒を由来とする触媒微粉を効率的に除去することが可能であり、触媒微粉がほとんど残存しない溶液を得ることができる。なお、本工程においては、マグネットストレーナを用いた磁気吸着に加えて、フィルターを用いた濾過等、磁気吸着と公知の吸着（分子間力による吸着等）、濾過又は沈降分離手段を併用してもよい。

[0059] 濾過に用いる濾過器については特に限定されないが、例えば、焼結金属フィルターを用いることができる。焼結金属フィルターを用いる場合、該焼結金属フィルターの濾過径は、100 μ m以下が好ましく、50 μ m以下がより好ましく、10 μ m以下が更に好ましい。焼結金属フィルターの濾過径が100 μ m以下であると、第1の水素化工程より流出する触媒の微粉を効率よく除去することができる。

沈降分離には、静置分離、遠心分離等が挙げられる。

[0060] <第2の水素化工程>

第2の水素化工程本工程は、固液分離工程によって触媒等を除去した混合液中の反応生成物について、さらに固定床反応器等で水素化を行う工程である。本工程においては、反応生成物に含まれる第1の水素化工程において副生したシアノベンジルアミンを水素化することでキシリレンジアミンを得ることができ、反応生成物中のキシリレンジアミンの純度を高めることができ

る。

[0061] 本工程の水素化は連続式の固定床反応で行うことが好ましい。本工程で使用する触媒としては、公知の担持金属触媒、非担持金属触媒、ラネー触媒、スポンジ触媒、貴金属触媒等を使用できる。特にニッケル及び／又はコバルトを含有する触媒が好適に用いられる。

第1の水素化工程において芳香族炭化水素等の液体アンモニア以外の溶媒を含む場合、アンモニア分離工程で液体アンモニア以外の溶媒を分離除去せずに、本工程にそのまま用いてもよい。

[0062] 本工程における水素化反応の温度は30～150℃が好ましく、40～120℃がより好ましく、50～100℃が更に好ましい。30℃以上であればシアノベンジルアミンの転化率の低下を効果的に防ぐことができ、150℃以下であればキシリレンジアミンの核水素化及び脱アミノ化が進行することを防ぎ、キシリレンジアミン自体の熱変質も効果的に防ぐことができる。本工程における水素化反応の水素圧力は0.1～10MPaが好ましく、0.5～8MPaがより好ましく、1～4MPaが更に好ましい。0.1MPa以上であればシアノベンジルアミンの転化率の低下を効果的に防ぐことができ、10MPa以下であればキシリレンジアミンの核水素化及び脱アミノ化が進行することを効果的に防ぐことができる。

[0063] 第2の水素化工程を連続式で行う場合、反応原料の空間速度(LHSV)は0.1～10h⁻¹が好ましく、0.1～3.0h⁻¹がより好ましい。0.1h⁻¹以上であれば、時間あたりに処理できる量が多くなり、工業的に有利となる。また10h⁻¹以下であればシアノベンジルアミンの転化率を高くすることができる。

本工程における水素化反応を回分式で行う場合、水素化反応時間は0.5～8時間が好ましい。

[0064] 本工程において水素化反応後に得られる溶液中でのキシリレンジアミンに対するシアノベンジルアミンの量は0.02質量%以下に保つことが好ましく、0.01質量%以下に保つことがより好ましく、0.005質量%以下

に保つことが更に好ましく、0.001質量%以下に保つことがより更に好ましい。上述の範囲にシアノベンジルアミンの量を保つように温度、水素圧力、反応時間又はLHSV等の反応条件を適宜調整することで、高純度のキシリレンジアミンを得ることができる。

[0065] <精製工程>

本実施形態の製造方法は、第2の水素化工程の後、キシリレンジアミンを精製する工程を含んでいてもよい。精製工程によれば、第2の水素化工程で得られた反応生成物を精製して、より高純度のキシリレンジアミンを得ることができる。

本工程における、精製方法は、例えば、蒸留による方法が好ましく、当該蒸留は理論段数2以上の蒸留塔を用いることが好ましく、理論段数5以上の蒸留塔を用いることがより好ましい。蒸留条件は、減圧で行うことが好ましく、圧力は1～10kPaであることが好ましい。

[0066] <清掃工程>

本実施形態の製造方法においては、上述のように、固液分離工程によって、所定の時間触媒粉を除去した後、触媒による後段の閉塞防止のため、磁気吸着手段の磁石に付着した触媒を除去するために定期的に清掃工程を実施することが好ましい。

[0067] <本実施形態の製造方法の流れ>

本実施形態の製造方法の基本的な流れについて図4を用いて説明する。図4は、本実施形態の基本的な流れを示すフローチャートである。図4に示すように、本実施形態の製造方法は、第1の水素化工程、及び、固液分離工程に加えて、第2の水素化工程と、清掃工程と、を含めることが出来る。なお、図4においては、マグネットストレーナを一つ用いた態様を例に説明する。

[0068] 本実施形態の製造方法においては、図4に示すように本実施形態の製造方法が開始されると、まず、ステップS1に示すように第1の水素化工程において、ジシアノベンゼンを触媒存在下で水素化し、少なくとも反応生成物と

触媒の少なくとも一部とを含む混合液が得られる。第１の水素化工程は、例えば、水素化反応器で実施することができる。第１の水素化工程において得られた混合液は固液分離工程に送られ、ステップＳ２に移行する。

[0069] ステップＳ２に示すように、第１の水素化工程において得られた混合液は、固液分離工程に送られる。固液分離工程においては、マグネットストレーナ内に混合液が供給され、磁気吸着手段にて混合液中の触媒が分離される。固液分離工程にて触媒等の固形物が分離された混合液は、第２の水素化工程に送られ、ステップＳ３に移行する。なお、図示を省略するが、上述のように、固液分離工程の前工程（ステップＳ１とステップＳ２との間）、又は、後工程（ステップＳ２とステップＳ３との間）にて、アンモニア分離工程を実施し、混合液中の液体アンモニアを除去することができる。

[0070] ステップＳ３に示すように、固液分離工程に触媒等の固体物が除去された混合液は、第２の水素化工程に送られる。第２の水素化工程においては、混合液中の反応生成物について、さらに固定床反応器等で水素化が行われる。第２の水素化工程において、反応生成物に含まれる第１の水素化工程において副生したシアノベンジルアミンを水素化することで反応生成物中のキシリレンジアミンの純度を高めることができる。ステップＳ３によって生成されたキシリレンジアミンは、必要に応じて精製工程等を経た後、製品として出荷される。

[0071] 本実施形態の製造方法においては、ステップＳ１～ステップＳ３が連続的に繰り返し行われ、所定の期間が経過された後ステップＳ４（清掃工程）に移行する。ステップＳ４においては、上述のように、マグネットストレーナ中の磁気吸着手段の表面に付着した触媒等を除去するために、本実施形態の清掃方法（清掃工程）が実施される。本実施形態の製造方法において、清掃工程が実施される周期は特に限定はなく、装置の規模やキシリレンジアミンの生産量に応じて適宜決定される。本実施形態の製造方法においては、清掃工程が終了すると再びステップＳ１に移行し、キシリレンジアミンの製造工程が開始される。なお、図４においては一つのマグネットストレーナを用い

た例について説明したが、上述のように、本実施形態の製造方法は、複数のマグネットストレーナを用い、清掃対象となるマグネットストレーナの供給口及び排出口の各バルブを閉鎖し、他のマグネットストレーナはそのまま稼働させたままとすることで、キシリレンジアミンの製造工程を止めることなく、マグネットストレーナの清掃を行うことができる。この場合、ステップ S 1 ～ 3 とステップ S 4 とが並行に実施されることとなる。

[0072] 以上、本実施形態の製造方法及び清掃方法について説明したが、本発明は上述の説明に限定されるものでない。

実施例

[0073] 以下、本実施形態の製造方法について具体的に説明する。ただし、本発明は以下の実施例に限定されるものではない。

[実施例 1]

図 1 に示す構造を有するマグネットストレーナを用いて、第 1 の水素化工程と固液分離工程とを実施し、イソフタロニトリルと液体アンモニアの混合液を原料として、メターキシリレンジアミンを合成した。反応液を合計 6 1 0 k g 通液後、ストレーナ前後のバルブを閉めて混合液の流れを止めた上で、ストレーナ下部の捨て弁を開けて残液を抜液した。

その後、上部蓋部のボルトを外して蓋をずらし、マグネット棒が付いたパーツ（磁気吸着手段）を取り出した。その後、マグネット棒に付着した微粉を水で洗い流し、ウエスでふき取って磁気吸着手段の洗浄を行った。マグネットストレーナの清掃に要した総作業時間は 3 0 分間であり、作業人数 2 人が必要であった。

[0074] [比較例 1]

蓋部にマグネット部が連結された構造を有する従来のマグネットストレーナを用いて、第 1 の水素化工程と固液分離工程とを実施し、イソフタロニトリルと液体アンモニアの混合液を原料として、メターキシリレンジアミンを合成した。反応液を合計 6 1 0 k g 通液後、ストレーナ前後のバルブを閉めて混合液の流れを止めた上で、ストレーナ下部の捨て弁を開けて残液を抜液

した。

その後、上部蓋部のボルトを外して取手にチェーンブロックを取り付け、マグネット部（磁気吸着手段）が露出するまで70－80cmほど上方に引っ張り上げた。蓋を持ちながら横にずらして下ろし、マグネット部についた微粉を水で洗い流した後に、ウエスでふき取って磁気吸着手段の洗浄を行った。マグネットストレーナの清掃に要した総作業時間は1時間、作業人数3人であり、実施例1と比較して、時間、人員ともに多く必要であった。

[0075] 2023年3月31日に出願された日本国特許出願2023-058898号の開示は、その全体が参照により本明細書に取り込まれる。

また、明細書に記載された全ての文献、特許出願、及び技術規格は、個々の文献、特許出願、及び技術規格が参照により取り込まれることが具体的かつ個々に記された場合と同程度に、本明細書中に参照により取り込まれる。

符号の説明

[0076] 100：マグネットストレーナ、10：本体、12：開口部、20：蓋材、30：磁気吸着手段、32：保持部材、34：磁石、36：マグネット部材、40：ガイド、50：バケット

請求の範囲

- [請求項1] ジシアノベンゼンを水素化してキシリレンジアミンを製造する製造方法であって、
- 前記ジシアノベンゼンを触媒存在下で水素化し、少なくとも反応生成物と前記触媒の少なくとも一部とを含む混合液を得る工程と、
- マグネットストレーナ内に前記混合液を通過させて磁気吸着によって前記触媒を分離する工程と、
- を含み、
- 前記マグネットストレーナが、開口部を有する本体と、前記本体の開口部に設置される蓋材と、前記本体の内部に備えられ且つ前記蓋材から分離された磁気吸着手段と、を備えた、キシリレンジアミンの製造方法。
- [請求項2] 前記マグネットストレーナが、前記本体内部に、前記磁気吸着手段を支持するガイドと、前記混合液中の固形物を除去するためのバケットと、を備えた、請求項1に記載のキシリレンジアミンの製造方法。
- [請求項3] 前記磁気吸着手段が、磁石と、前記磁石を保持する保持部材と、を備えた請求項1に記載のキシリレンジアミンの製造方法。
- [請求項4] 前記マグネットストレーナが、前記本体内部に、前記磁気吸着手段を支持するガイドと、前記混合液中の固形物を除去するためのバケットと、を備え、
- 前記磁気吸着手段が、磁石と、前記磁石を保持する保持部材と、を備え、
- 前記ガイドによって、前記磁気吸着手段の前記保持部材が支持された、請求項1に記載のキシリレンジアミンの製造方法。
- [請求項5] さらに、前記マグネットストレーナの前記本体内部から、前記蓋材と分離された前記磁気吸着手段を取り出し、前記磁気吸着手段の清掃を行う工程を含む、請求項1～4のいずれか一項に記載のキシリレンジアミンの製造方法。

アミンの製造方法。

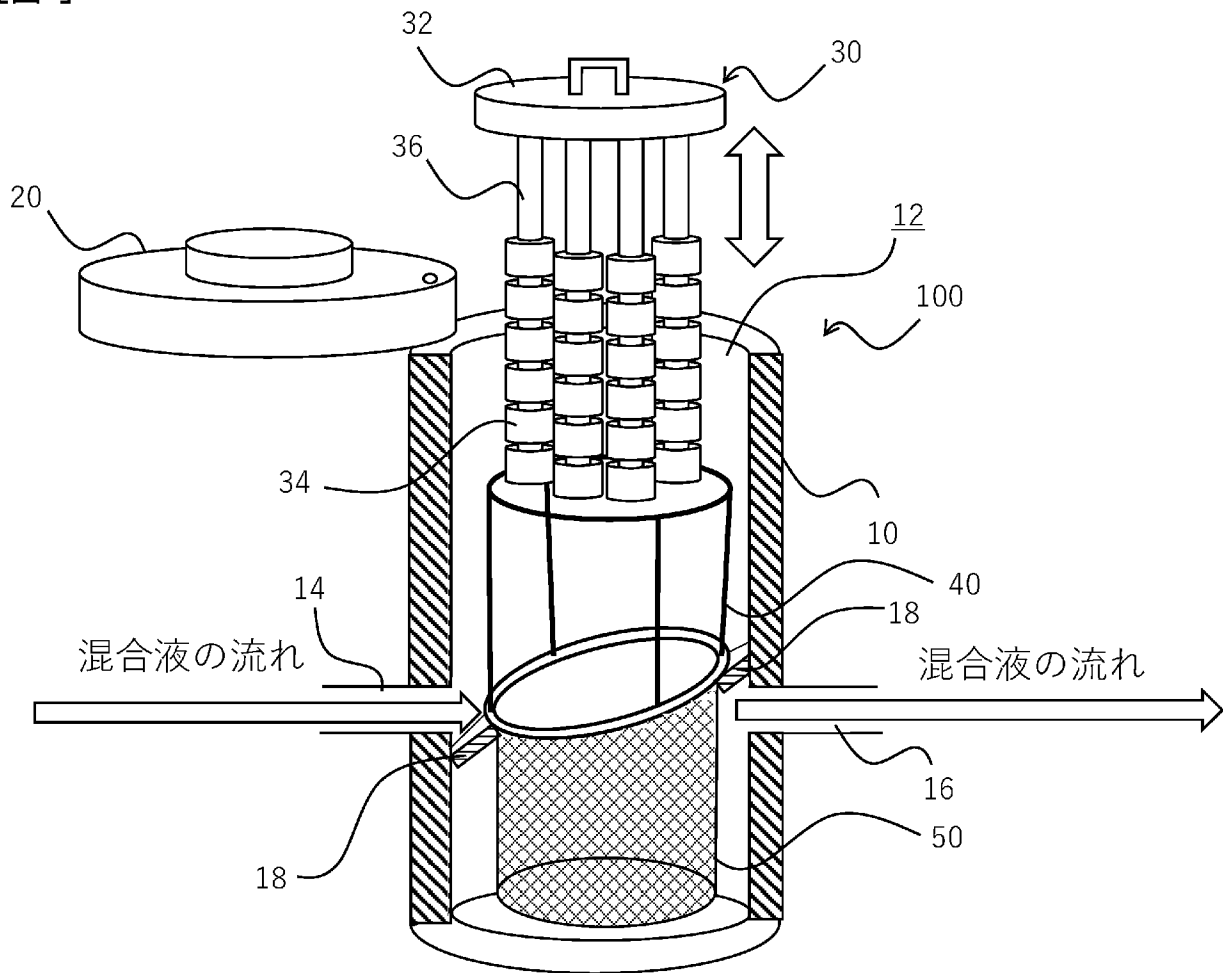
[請求項6]

触媒存在下におけるジシアノベンゼンの水素化によって得られた反応生成物と触媒とを含む混合液から磁気吸着によって前記触媒を除去するマグネットストレーナの清掃方法であって、

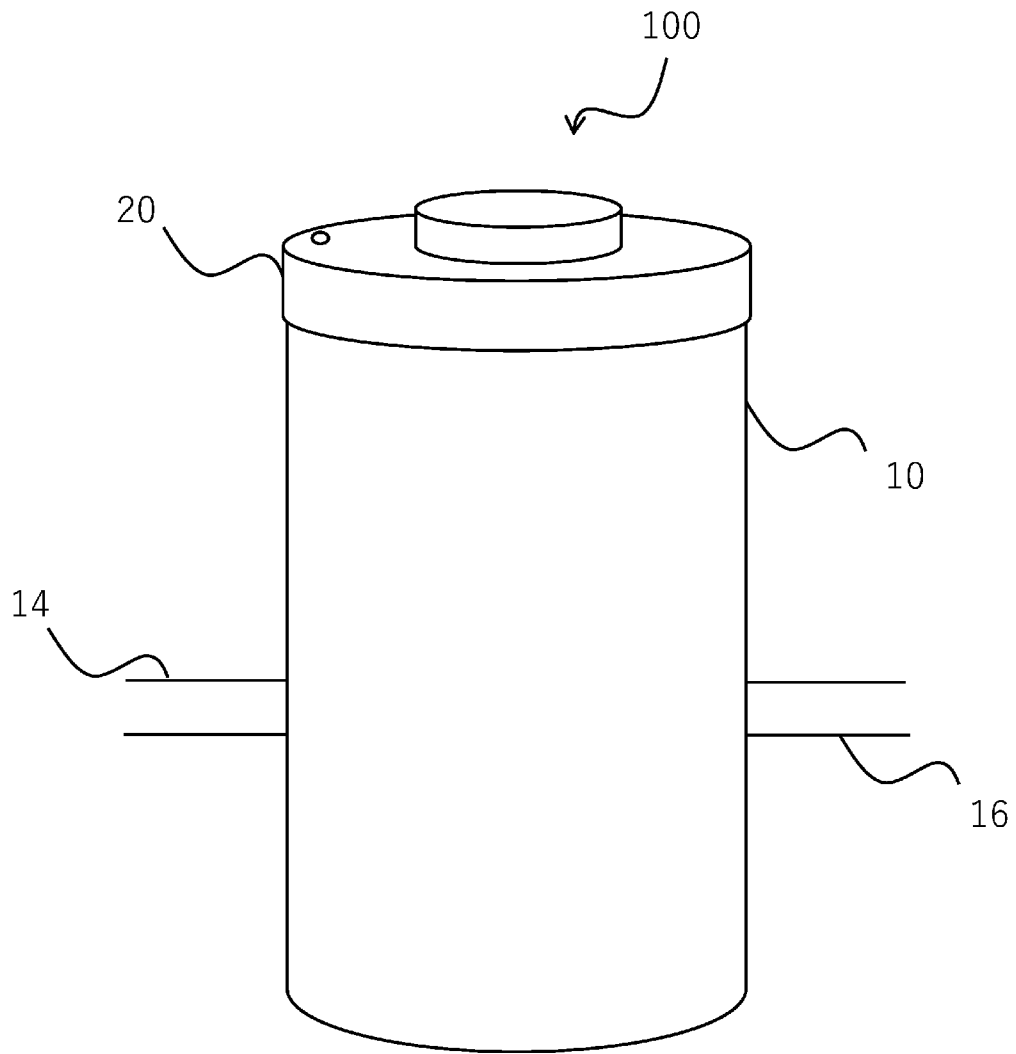
前記マグネットストレーナが、開口部を有する本体と、前記本体の開口部に設置される蓋材と、前記本体の内部に備えられ且つ前記蓋材から分離された磁気吸着手段と、を備えており、

前記マグネットストレーナの前記本体内から、前記蓋材と分離された前記磁気吸着手段を取り出し、前記磁気吸着手段の清掃を行う、マグネットストレーナの清掃方法。

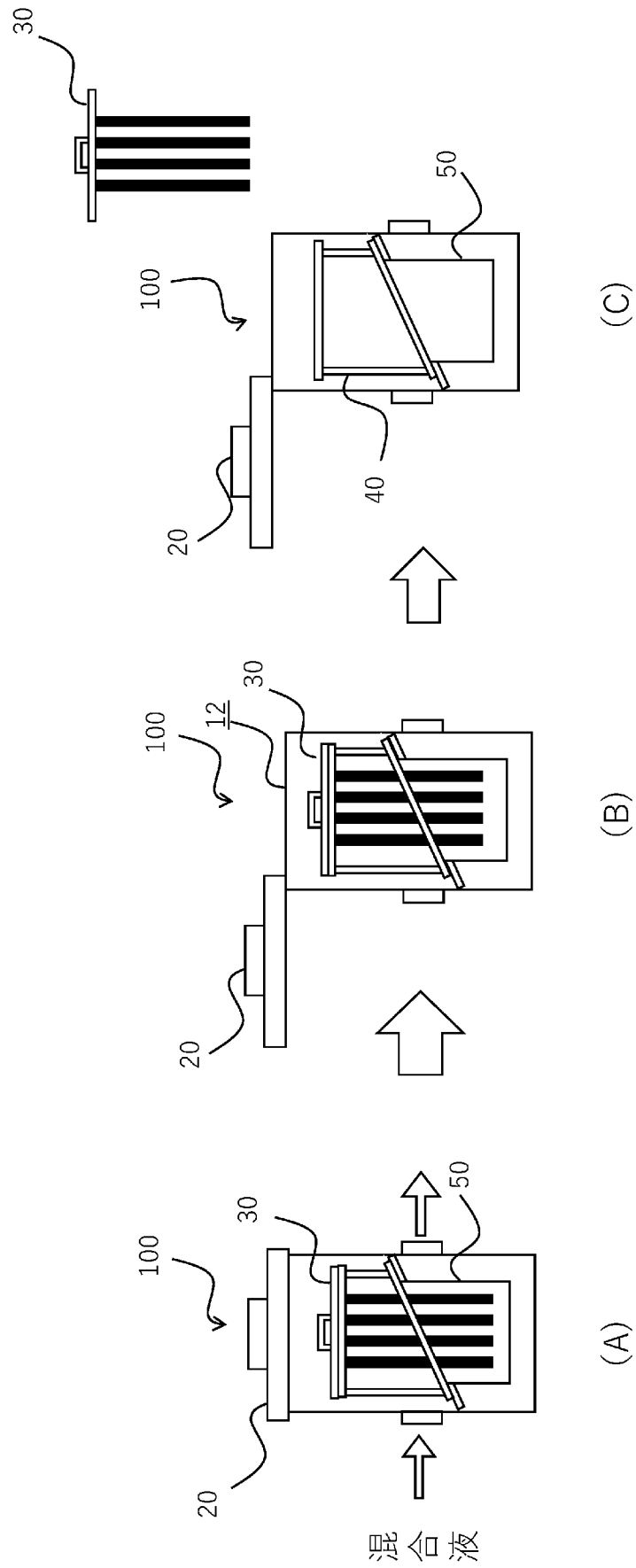
[図1]



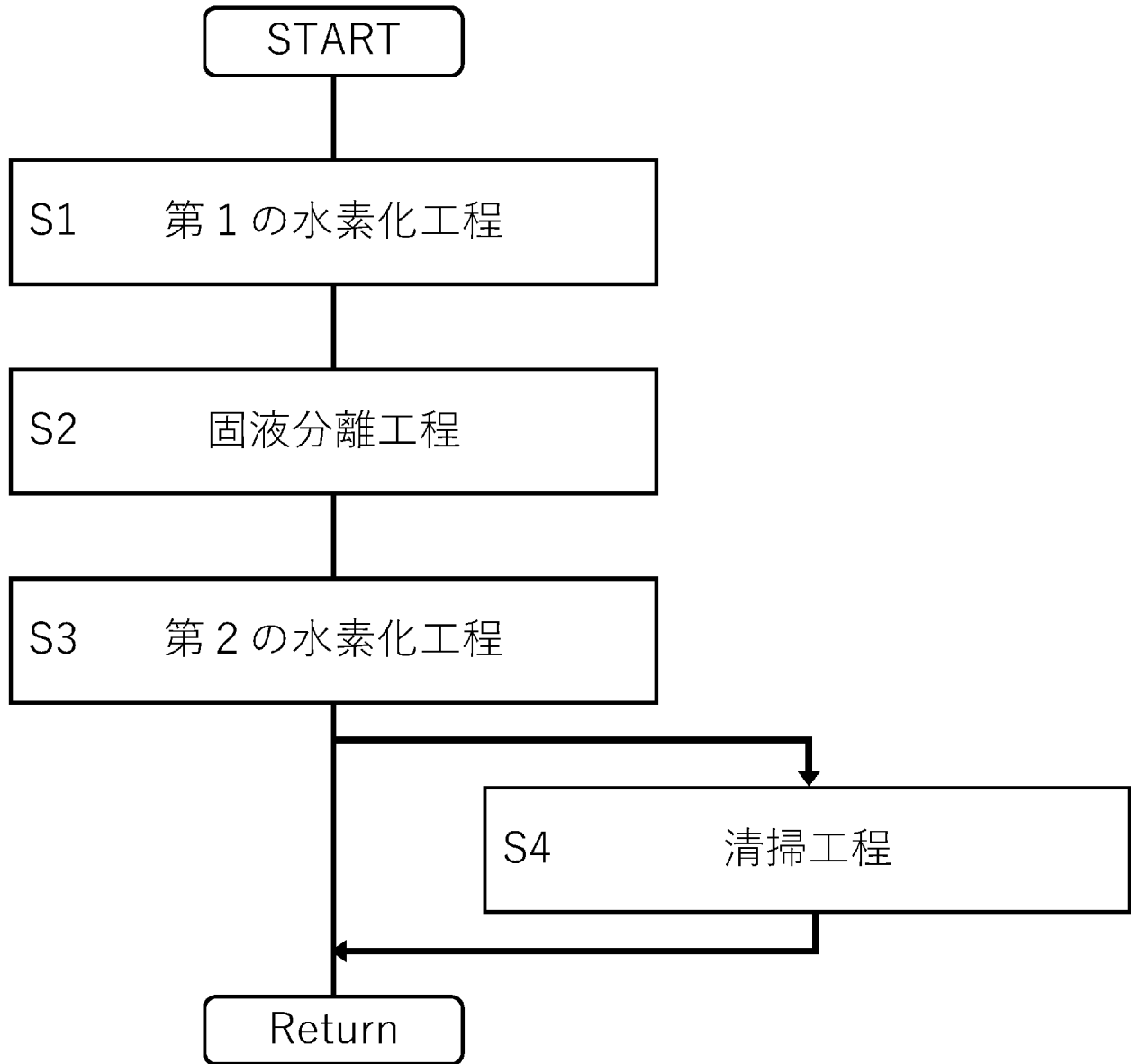
[図2]



[図3]



[図4]



INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2024/012623

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER <i>C07C 209/48</i> (2006.01)i; <i>C07B 61/00</i> (2006.01)i; <i>C07C 211/27</i> (2006.01)i FI: C07C209/48; C07C211/27; C07B61/00 300 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) C07C209/48; C07B61/00; C07C211/27; B01D35/00; B01J23/00 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) 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.
Y	WO 2020/189227 A1 (MITSUBISHI GAS CHEMICAL CO., INC.) 24 September 2020 (2020-09-24) claims, paragraph [0010], examples, fig. 1	1-6
Y	JP 2013-508501 A (CPC CORPORATION, TAIWAN) 07 March 2013 (2013-03-07) claims, paragraphs [0024]-[0030], examples, fig. 1-4	1-6
A	JP 2021-116234 A (MITSUI CHEMICALS, INC.) 10 August 2021 (2021-08-10) entire text, all drawings	1-6
A	WO 2012/105498 A1 (MITSUBISHI GAS CHEMICAL CO., INC.) 09 August 2012 (2012-08-09) entire text, all drawings	1-6
A	JP 3118569 U (DEISUPENPAKKU JAPAN KK) 02 February 2006 (2006-02-02) entire text, all drawings	1-6
☒ 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 30 May 2024		Date of mailing of the international search report 11 June 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.

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	JP 2010-168374 A (MITSUBISHI GAS CHEMICAL CO., INC.) 05 August 2010 (2010-08-05) entire text, all drawings	1-6
A	JP 2006-335812 A (SAGAMI CHEMICAL METAL CO., LTD.) 14 December 2006 (2006-12-14) entire text, all drawings	1-6
A	JP 2010-65031 A (AIR PRODUCTS AND CHEMICALS, INC.) 25 March 2010 (2010-03-25) entire text, all drawings	1-6
A	JP 2007-533614 A (BASF AKTIENGESELLSCHAFT) 22 November 2007 (2007-11-22) entire text, all drawings	1-6

INTERNATIONAL SEARCH REPORT
Information on patent family members

International application No.

PCT/JP2024/012623

Patent document cited in search report			Publication date (day/month/year)	Patent family member(s)	Publication date (day/month/year)
WO	2020/189227	A1	24 September 2020	US 2022/0153682 A1 claims, paragraph [0042], examples, fig. 1 CN 113365975 A KR 10-2021-0141451 A	
JP	2013-508501	A	07 March 2013	WO 2011/049544 A1 claims, p. 1, lines 5-18, p. 12, line 1 to p. 14, line 9, examples, fig. 1-4 KR 10-2012-0083482 A CN 102686294 A	
JP	2021-116234	A	10 August 2021	(Family: none)	
WO	2012/105498	A1	09 August 2012	US 2013/0296609 A1 entire text, all drawings CN 103339098 A TW 201237010 A	
JP	3118569	U	02 February 2006	(Family: none)	
JP	2010-168374	A	05 August 2010	US 2010/0168474 A1 claims CN 101768083 A KR 10-2010-0076883 A	
JP	2006-335812	A	14 December 2006	(Family: none)	
JP	2010-65031	A	25 March 2010	US 2010/0048954 A1 claims KR 10-2010-0024372 A CN 101747205 A	
JP	2007-533614	A	22 November 2007	US 2006/0258889 A1 entire text, all drawings EP 1663942 A1 CN 1849295 A KR 10-2006-0119948 A	

A. 発明の属する分野の分類（国際特許分類（IPC））

C07C 209/48(2006.01)i; C07B 61/00(2006.01)i; C07C 211/27(2006.01)i

FI: C07C209/48; C07C211/27; C07B61/00 300

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））

C07C209/48; C07B61/00; C07C211/27; B01D35/00; B01J23/00

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）

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
Y	WO 2020/189227 A1（三菱瓦斯化学株式会社）24.09.2020（2020-09-24） 特許請求の範囲、段落[0010]、実施例、図1	1-6
Y	JP 2013-508501 A（シーピーシー コーポレイション タイワン）07.03.2013（2013-03-07） 特許請求の範囲、段落[0024]～[0030]、実施例、図1～4	1-6
A	JP 2021-116234 A（三井化学株式会社）10.08.2021（2021-08-10） 全文、全図	1-6
A	WO 2012/105498 A1（三菱瓦斯化学株式会社）09.08.2012（2012-08-09） 全文、全図	1-6
A	JP 3118569 U（株式会社ディスペンパックジャパン）02.02.2006（2006-02-02） 全文、全図	1-6
A	JP 2010-168374 A（三菱瓦斯化学株式会社）05.08.2010（2010-08-05） 全文、全図	1-6

☒ 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

30.05.2024

国際調査報告の発送日

11.06.2024

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）

高森 ひとみ 4H 1778

電話番号 03-3581-1101 内線 3443

様式 PCT/ISA/210（第2ページ）（2022年7月）

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 2006-335812 A (株式会社相模化学金属) 14.12.2006 (2006 - 12 - 14) 全文、全図	1-6
A	JP 2010-65031 A (エア プロダクツ アンド ケミカルズ インコーポレイテッド) 25.03.2010 (2010 - 03 - 25) 全文、全図	1-6
A	JP 2007-533614 A (ビーイーエスエフ アクチエンゲゼルシャフト) 22.11.2007 (2007 - 11 - 22) 全文、全図	1-6

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/JP2024/012623

引用文献			公表日	パテントファミリー文献	公表日
WO	2020/189227	A1	24.09.2020	US 2022/0153682 A1 特許請求の範囲、段落 [O O 4 2]、EXAMPLES、FIG. 1 CN 113365975 A KR 10-2021-0141451 A	
JP	2013-508501	A	07.03.2013	WO 2011/049544 A1 特許請求の範囲、第 1 頁第 5 行目～第 1 8 行目、第 1 2 頁第 1 行目～第 1 4 頁第 9 行目、Examples、Fig.1-4 KR 10-2012-0083482 A CN 102686294 A	
JP	2021-116234	A	10.08.2021	(ファミリーなし)	
WO	2012/105498	A1	09.08.2012	US 2013/0296609 A1 全文、全図 CN 103339098 A TW 201237010 A	
JP	3118569	U	02.02.2006	(ファミリーなし)	
JP	2010-168374	A	05.08.2010	US 2010/0168474 A1 特許請求の範囲 CN 101768083 A KR 10-2010-0076883 A	
JP	2006-335812	A	14.12.2006	(ファミリーなし)	
JP	2010-65031	A	25.03.2010	US 2010/0048954 A1 特許請求の範囲 KR 10-2010-0024372 A CN 101747205 A	
JP	2007-533614	A	22.11.2007	US 2006/0258889 A1 全文、全図 EP 1663942 A1 CN 1849295 A KR 10-2006-0119948 A	