

# 公 告 本

申請日期	89 年 3 月 27 日
案 號	89105603
類 別	COND 25/28

A4  
C4

(以上各欄由本局填註)

577881

## 發 明 型 專 利 說 明 書

一、發明 名稱	中 文	可流動之氰尿酸氯、彼之製法及用途
	英 文	Flowable cyanuric chloride, process for the production thereof and use thereof
二、發明 創作人	姓 名	(1) 喬瑟夫·勞特娜 Leutner, Josef (2) 曼佛瑞德·舒米 Schmidt, Manfred
	國 籍	(1) 德國                      (2) 德國
	住、居所	(1) 德國葛羅斯賀巴哈赫夫威斯三號 Hofwiese 3, D-63920 Grossheubach, Germany (2) 德國吉奧森·蘭加斯 27 號 Langgasse 27, D-63571 Gelnhausen, Germany
三、申請人	姓 名 (名稱)	(1) 提古沙-胡斯股份有限公司 Degussa-Huls Aktiengesellschaft
	國 籍	(1) 德國
	住、居所 (事務所)	(1) 德國法蘭克福緬因區 D-60287 Frankfurt am Main, Germany
	代 表 人 姓 名	(1) 武夫剛·偉伯 Weber, Wolfgang 馬特斯·史契夫 Schafer, Matthias

裝 訂 線

經濟部智慧財產局員工消費合作社印製

(由本局填寫)

承辦人代碼：
大 類：
I P C分類：

A6  
B6

本案已向：

國(地區) 申請專利, 申請日期: 案號: , 有 無主張優先權

德國 1999 年 3 月 31 日 199 14 616.0 有主張優先權

有關微生物已寄存於: , 寄存日期: , 寄存號碼:

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁各欄)

裝

訂

線

經濟部智慧財產局員工消費合作社印製

## 五、發明說明(1)

本發明係關於含親水性矽石作為流動輔劑的可流動之氰尿醯氨，其與先前技藝含熱解矽石之氰尿醯氨比較，此種氰尿醯氨顯示改良的性質範圍，本發明還關於改良的可流動之氰尿醯氨之製法及彼之用途。

已知固體氰尿醯氨當在微細分粒的形式下很容易聚集，為了消除儲存及後續加工之必然問題，D E - A S 1 1 3 4 9 9 9 揭示在微細分粒的氰尿醯氨中加入含量為 0.3 至 3 重量% 微細分粒的二氧化矽、二氧化鈦、氧化鋁、矽酸鋁及矽酸鈣之流動助劑，在該文獻列出的矽石中只提到熱解產生的矽石也就是 Aerosil<sup>®</sup> 作為流動助劑，沒有建議使用其他來源之矽石。

根據 D E - A S 2 8 3 9 3 8 4 之揭示，使用疏水性熱解或疏水性沈澱的矽石使其不但可改進氰尿醯氨之可流動性，還可反制氰尿醯氨在儲存及工廠內處理期間發生不要的水解，氰尿醯氨在儲存及轉化期間形成的水解產物會降低反應產物之品質及/或產量。

在根據 E P - A 0 4 1 6 5 8 4 之方法中，經由在捏和機或攪拌機內對氰尿醯氨施加剪力且同時加熱至低於熔點，嘗試改良固體氰尿醯氨之可流動性，但是發現（見實例比較）此產物之反應性降低，由於在此方法中處理的產物之不當的儲存安定性，此方法尚未實際建立，所以大部分商業化產品仍然含親水性熱解矽石或疏水性熱解或沈澱的矽石作為流動助劑。

不但是全部的親水性以及疏水性熱解矽石或者是疏水

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

裝

訂

編

### 五、發明說明(3)

的沈澱矽石及矽膠通常包括 B E T 表面積至少是 1 0 0 平方米 / 克之產品，使用的產品之 B E T 表面積較宜是從 1 0 0 至 5 0 0 平方米 / 克的範圍，特別較宜從 1 5 0 至 3 0 0 平方米 / 克。

可流動之氰尿酸氨的性質範圍之一個特別重要的標準是當使用流動助劑及在定義混合情形下達成的鬆密度，特別有興趣的是對於可流動之氰尿酸氨的包裝體積達成最高的鬆密度，絕對鬆密度不只是決定於流動輔劑含量及混合情形，而且可以了解還決定於使用的氰尿酸氨之粒子大小分佈，經發現當使用根據本發明之流動輔劑而不是使用親水性熱解矽石例如 Aerosil<sup>®</sup> 2 0 0 時，可達成較高的鬆密度，在相同的使用比率及在相同的混合情形下，較佳可流動之氰尿酸氨的鬆密度相當於使用疏水性沈澱矽石所達成的值，但是訝異地高於使用親水性熱解矽石可達成的值。

性質範圍之另一個標準是可流動性：其分級是從使用出口直徑範圍介於 2 . 5 及 1 8 毫米之標準化的流動通道所得的結果，一種產品其從出口直徑為 8 或 5 毫米之通道通過而沒有停留時，其分級分別是 3 或 2，分級為 2 或小於 2 之產品較佳，平均凝結直徑大於 1 5 微米之沈澱矽石或矽膠無法得到任何滿意的可流動性分級。

可流動之氰尿酸氨的反應性構成所要的性質範圍之第三個標準，測定反應性是經由將氰尿酸氨在定義的情形下水解於水性介質並測量 p H 值到達 7 所需的時間，希望有

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

裝

訂

## 五、發明說明(4)

最高的反應性，也就是說短時間內 pH 值到達 7，雖然與使用疏水性沈澱或熱解矽石之未經處理的氰尿醯氨比較，反應性明顯地降低，根據本發明可流動之氰尿醯氨的反應性實質上與未經處理的氰尿醯氨相當，且根據本發明產品之反應性較宜超越未經處理的氰尿醯氨，根據本發明產品之反應性是介於使用親水性熱解矽石可得到之範圍，但是較宜產品有更高的反應性。

根據本發明產品之一個意外的優點是這些產品顯示異常低的水解產物含量，水解產物含量包括經由氰尿醯氨水解形成的不溶於甲苯之產物，在此水解產物含量是在可流動之氰尿醯氨製造後經儲存特定的一段期間後測定，經發現當使用較佳的沈澱矽石及矽膠時，發現的水解產物含量訝異地實質上低於當使用疏水性矽石所得的量，此點很意外因為疏水性矽石迄今是特定用於在對水解敏感之氰尿醯氨粒子提供有效的保護層並阻止水解。

根據本發明使用的沈澱矽石或矽膠包括的產物，由於其製造的結果，可在低於熱解性製造或／及疏水性矽石的成本下獲得，產物之提高的反應性及提高的鬆密度構成另一個優點，根據本發明的產品之另一個優點是當包裝放空時，產品不會變成帶有靜電且因此不會黏附在包裝材料上。

流動輔劑之使用量範圍是從 0.05 至 5 重量%，較宜從 0.05 至 0.5 重量%，且尤其是從 0.1 至 0.3 重量%。

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

裝

訂

結

## 五、發明說明 (5 )

根據本發明的產品是在本身已知的方法下經由均勻混合氰尿酸氨粉末與流動輔劑而製備，慣用的混合裝置可用於此目的，雖然鬆密度可實際經由延長混合時間而增加，根據本發明使用的親水性矽石及熱解親水性矽石之上述差異仍然存在，流動輔劑可在粉狀的氰尿酸氨生產後立即摻混或可經由分離的混合方法達成。

因為可流動之氰尿酸氨保持高的反應性，其可用於生產氰尿酸氨衍生物，其中氰尿酸氨的一、二或三個氮原子經取代，在此情形下，高反應性及低水解產物含量得到短的反應時間及純的產物。

經由下列實例及實例比較說明本發明，同時也說明測試方法。

### 測定鬆密度 ( B D )

在一個剛好於 1 0 0 毫升處截去之 1 0 0 毫升測量圓柱中經由漏斗加入產品並刮除物質的突起錐體，清除黏附在測量圓柱外面之任何產品，然後秤重圓柱，單位為克/升。

### 測定可流動性 ( F )

將測量的樣品加入圓柱形流動容器內，其下面部份為漏斗狀，並保持出口封閉，如果出口打開時，產品流出而沒有停留，如果需要時，可用刮勺敲打容器而開始流出，有 5 個不同大小出口之流動容器。

## 五、發明說明 (6)

容器：高度 = 90 毫米，內部直徑 = 42 毫米

容器編號	出口直徑(毫米)
1	2.5
2	5
3	8
4	12
5	18

分級：1 = 平順流經容器 1 (最小的孔)

5 = 流經容器 5 (最大的孔)

6 = 沒有流經容器 5

### 測定反應性 (R)

氰尿酸在水溶液中進行水解，氰尿酸水解形成尿酸，當測量氰尿酸之反應性時使用此反應，其進行時隨著反應性之快或慢而降低 pH 值，經由 pH 計監視 pH 值之下降，使用到達 pH 為 7 所需的時間 (分鐘) 作為測量反應性。

將剛好 9.22 克氰尿酸 (0.05 莫耳) 之樣品秤入 150 毫升的燒杯內，加入攪拌棒並將燒杯放在磁性攪拌器上，經由吸管精確加入 100 毫升 1 當量濃度的 NaOH (0.1 莫耳)，加入 NaOH 後，啓動碼表及攪拌器並將混合物激烈攪拌使充分混合，經剛好 1 分鐘後

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

裝

訂

線

## 五、發明說明 (7 )

，將燒杯放入調整至 30 °C 之水浴中並插入 pH 電極，監視 NaOH 之消耗且同時激烈攪拌混合物（氰尿酸必須在溶液中形成漩渦），在 pH 為 7 到達測定的終點並停止計時。

### 測定水解產物含量

使用精確天平將精確度達 0.1 克之約 5 克氰尿酸稱出至磨口連接的錐形燒瓶內並混合約 100 毫升的甲苯，當錐形燒瓶密封後，經由搖動加速溶解氰尿酸，如果當氰尿酸完全溶解而沒有看到渾濁時，水解產物含量是 < 0.1 % 且可以結束測定，如果渾濁或形成沈澱，將溶液經由乾燥且配衡的玻璃過濾坩堝過濾且隨後用 20 毫升甲苯清洗，過濾坩堝必須在約 120 °C 之乾燥腔內乾燥至恆重，最終重量相對應於水解產物與流動輔劑之總和，流動輔劑之比率可用熱水瀝濾沈澱物並乾燥殘留物而測定。

### 實例 B 1 至 B 3 及實例比較 V B 1 至 V B 3

製造可流動之氰尿酸是經由將微細分粒之氰尿酸（批次 391）及 0.3 重量 % 所述之矽石（S）在輥裝置上的容器內經由容器緩慢滾動而混合 15 分鐘，表 1 列出鬆密度（BD）、反應性（R）及可流動性（F）之結果。

（請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁）

裝

訂

備

## 五、發明說明(8)

表 1

編號	矽石*) (分級)	BD (克/升)	R (分鐘)	F
VB1	-----	655	7.5	4-5
VB2	Aerosil® 200 親水性，熱解	746	8.5	2
VB3	Aerosil® R812 疏水性，熱解	764	18.5	2
B1	FK 320 DS 親水性，沈澱； d <sub>50</sub> =4 微米； DBP 吸收 230 克/100 克	778	6.7	1
B2	Sipernat 50 S 親水性，沈澱； DBP 吸收 330 克/100 克	790	7.5	3-4**)
B3	FK 500 LS 親水性，沈澱； d <sub>50</sub> =3.5 微米； DBP 吸收 330 克/100 克	755	6.8	3**)

\* ) 使用的產品是 Degussa-Hüls AG 之矽石，實例 B 1 至 B 3 之矽石是粉碎的產品。

\*\* ) 使用些許較高含量之流動輔劑或 Sipernat 50 S 或 FK 500 LS 與例如 FK 320 DS 之混合物

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

裝

訂

線

## 五、發明說明(9)

，可以達到 F 值小於 3。

實例 B 4 及 B 5 及實例比較 V B 4 至 V B 6

使用 0.25 重量%之 Aerosil® (sic)或

FK 320 DS 使氰尿醯氯 (CC) (批次 391)

及更微細分粒之批次 (批次 399) 具有流動性，結果列在下表，其為 5 次測定之平均。

表 1

編號	CC* (分級)	矽石 (分級)	BD (克/升)	R (分鐘)	F
VB1	391	-----	655	7.5	4-5
VB4	391	Aerosil® 200	733	7.9	2
B4	391	FK 320 DS	773	7.0	2
VB5	399	-----	636	7.6	4-5
VB6	399	Aerosil® 200	795	6.8	2
B5	399	FK 320 DS	830	6.8	1-2

實例 B 6 及實例比較 V B 7 至 V B 8

製造可流動之氰尿醯氯，其中使用的氰尿醯氯不如批次 391 及 399 之微細分粒，流動輔劑之含量是 0.3 重量%，在輥裝置上旋轉的混合容器內進行混合 15 分鐘，結果列在表 3，鬆密度、反應性、水解產物含量及可流動性值各為 10 次測定之平均並列出標準偏差 s 之%。

表

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

裝

訂

編

## 五、發明說明(10)

編號	矽石 (分級)	BD (克/升) (s %)	R (分鐘) (s %)	F	水解產物 (%) (s %)
VB7	-----	731	12.1	4-5	<0.05
VB4	FK 320 DS 沈澱；親水性	866 0.7)	10.9 (8)	1	0.33 (1.6)
VB8	Aerosil® R974 疏水性	844 (0.6)	14.8 (7.2)	1-2	0.47 (4.8)

這些實例說明與實例比較相比之獨特性質組合。

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

裝

訂

號

四、中文發明摘要(發明之名稱：可流動之氰尿酸氯、彼之製法及用途)

本發明係關於一種含矽石作為流動輔劑的可流動之氰尿酸氯，雖然迄今是使用熱解或疏水性矽石，根據本發明提供一種替代方法經由使用平均凝結直徑  $d_{50}$  低於 15 微米之沈澱矽石或矽膠，較佳的產品顯示關於鬆密度、反應性及／或可流動性之性質範圍經改良。

英文發明摘要(發明之名稱：)

**Flowable cyanuric chloride, process for the production thereof and use thereof**

This invention relates to flowable cyanuric chloride which contains a silica as flow auxiliary. While pyrogenic or hydrophobic silicas have hitherto been used, an alternative is provided according to the invention by the use of a precipitated silica or a silica gel having an average agglomerate diameter  $d_{50}$  of less than 15  $\mu\text{m}$ . Preferred products exhibit an improved range of properties with regard to bulk density, reactivity and/or flowability.

本頁 1 頁

補充

## 五、發明說明 ( 2 )

性沈澱的矽石之一個實質上的問題是其製造方法需要的高價格，專家圈據此有興趣於較低成本之替代物，其中這些替代物必須至少有相當的性質。

本發明之目的據此是提供一種氰尿醯氨其可在經濟方式下獲得且具有至少等於目前商業化產品之性質，且較宜在一或其他方面超越目前的產品，這些性質實質上包括

( i ) 最大的鬆密度

( i i ) 良好的可流動性，相當於低於或等於 3 之等級，較宜低於或等於 2，及

( i i i ) 最大的反應性，其中此後者性質與未經處理之氰尿醯氨比較必須沒有減弱，且必須較宜再經改良。

此目的是經由含親水性矽石作為流動輔劑且可流動性等級低於或等於 3 的可流動之氰尿醯氨達成，此種氰尿醯氨之特徵是該親水性矽石是沈澱矽石或矽膠，其使用 Coulter Counter 測量之平均凝結直徑低於 1.5 微米，附隨的申請專利範圍係關於可流動之氰尿醯氨的較佳具體實施例，以沈澱矽石較佳。

較佳的產物是平均凝結直徑低於 7 微米，較宜低於 5 微米，還經證明顯示 D B P 吸收小於 270 克 / 100 克之特別親水性之沈澱矽石，可提供特別好的性質之可流動之氰尿醯氨，沈澱矽石及矽膠由於其製造的結果而顯現不同的結構，流動輔劑較宜含粉碎的沈澱矽石，尤其是平均凝結直徑低於 5 微米且 D B P 吸收在從 200 至 260 克 / 100 克範圍之蒸汽或空氣噴射粉碎的沈澱矽石，所述

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

裝

訂

線

## 六、申請專利範圍

附件 4(a)：第 89105603 號 專利 申請 案

中文 申請 專利 範圍 替換 本

民國 93 年 1 月 9 日 修正

1 . 一種 可 流動 之 氰 尿 醯 氨 ， 其 可 流動 性 分 級 低 於 或 等 於 3 且 含 親 水 性 矽 石 作 為 流 動 輔 劑 ， 其 特 徵 是 該 親 水 性 矽 石 是 沈 澱 矽 石 或 矽 膠 ， 其 使 用 Coulter Counter 測 量 之 平 均 凝 結 直 徑 低 於 1.5 微 米 。

2 . 根 據 申 請 專 利 範 圍 第 1 項 之 可 流 動 之 氰 尿 醯 氨 ， 其 特 徵 是 該 親 水 性 矽 石 顯 示 的 D B P 吸 收 低 於 270 克 / 100 克 。

3 . 根 據 申 請 專 利 範 圍 第 1 項 之 可 流 動 之 氰 尿 醯 氨 ， 其 特 徵 是 該 親 水 性 矽 石 為 粉 碎 且 顯 示 的 平 均 凝 結 直 徑 低 於 7 微 米 。

4 . 根 據 申 請 專 利 範 圍 第 1 項 之 可 流 動 之 氰 尿 醯 氨 ， 其 特 徵 是 該 流 動 輔 劑 是 蒸 汽 或 空 氣 噴 射 粉 碎 之 沈 澱 矽 石 ， 其 平 均 凝 結 直 徑 低 於 5 微 米 。

5 . 根 據 申 請 專 利 範 圍 第 2 項 之 可 流 動 之 氰 尿 醯 氨 ， 其 特 徵 是 該 親 水 性 矽 石 為 沈 澱 矽 石 且 根 據 DIN 53601 顯 示 之 D B P 吸 收 值 低 於 270 克 / 100 克 。

6 . 根 據 申 請 專 利 範 圍 第 1 項 之 可 流 動 之 氰 尿 醯 氨 ， 其 特 徵 是 該 沈 澱 矽 石 顯 示 的 B E T 表 面 積 為 100 至 500 平 方 米 / 克 ， 尤 其 是 150 至 300 平 方 米 / 克 。

7 . 根 據 申 請 專 利 範 圍 第 1 項 之 可 流 動 之 氰 尿 醯 氨 ，

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

訂

## 六、申請專利範圍

其特徵是含總量為 0 . 0 5 至 0 . 5 重量 % 且平均凝結直徑低於或等於 1 5 微米之一或多種沈澱矽石及 / 或矽膠。

8 . 一種製造根據申請專利範圍第 1 項之可流動之氰尿酸氫之方法，其特徵是將氰尿酸氫及平均凝結直徑低於或等於 1 5 微米之一或多種沈澱矽石或 / 及矽膠均勻混合在一起。

9 . 根據申請專利範圍第 1 項之可流動之氰尿酸氫，其係用於製造氰尿酸氫衍生物，其中氰尿酸氫之一、二或三個氮原子被取代。

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

訂