

【公報種別】特許法第 17 条の 2 の規定による補正の掲載

【部門区分】第 3 部門第 2 区分

【発行日】令和 3 年 10 月 7 日 (2021.10.7)

【公表番号】特表 2020-534323 (P2020-534323A)

【公表日】令和 2 年 11 月 26 日 (2020.11.26)

【年通号数】公開・登録公報 2020-048

【出願番号】特願 2020-516627 (P2020-516627)

【国際特許分類】

C 0 7 F 7/12 (2006.01)

B 0 1 J 31/02 (2006.01)

C 0 7 B 61/00 (2006.01)

【F I】

C 0 7 F 7/12 B

C 0 7 F 7/12 M

C 0 7 F 7/12 P

B 0 1 J 31/02 Z

C 0 7 B 61/00 3 0 0

【手続補正書】

【提出日】令和 3 年 8 月 27 日 (2021.8.27)

【手続補正 1】

【補正対象書類名】特許請求の範囲

【補正対象項目名】全文

【補正方法】変更

【補正の内容】

【特許請求の範囲】

【請求項 1】

Me₂Si(H)Cl、MeSi(H)Cl₂、および MeSi(H)₂Cl、好ましくは Me₂Si(H)Cl、および MeSi(H)Cl₂、そして最も好ましくは Me₂Si(H)Cl から選択される、メチルクロロヒドリドモノシランの製造のための方法であって、

(i) モノシラン、

(ii) ジシラン、

(iii) オリゴシラン、

(iv) カルボジシラン

但し、シラン (i) から (iv) の少なくとも 1 つは、少なくとも 1 つのクロロ置換基を有しているという条件である、

からなる群から選択される少なくとも 1 つのシランを含むシラン基材を、

a) 少なくとも 1 つの水素化物供与源との水素化反応、および

b) 再分配反応、および

c) 任意にてジ-またはオリゴシランの Si-Si 結合またはカルボジシランの Si-C 結合の開裂反応、および

d) メチルクロロヒドリドシランの分離ステップに供することを含み、

ここで前記方法は、AlCl₃ の不在下で、好ましくはエーテル溶媒から選択される 1 以上の溶媒の存在下で行われ、

(i) モノシランは一般式 (I) から選択され、

Me_xSiH_yCl_z (I)、

ここで

x = 1 から 3、

$y = 0$ から 3、

$z = 0$ から 3、そして

$x + y + z = 4$ であり、

(i i) ジシランは一般実験式 (I I) から選択され、

$\text{Me}_m \text{Si}_2 \text{H}_n \text{Cl}_o$ (I I)、

ここで

$m = 1$ から 6、

$n = 0$ から 5、

$o = 0$ から 5、そして

$m + n + o = 6$ であり、

(i i i) オリゴシランは一般実験式 (I I I) の直鎖または分岐オリゴシランから選択され、

$\text{Me}_p \text{Si}_q \text{H}_r \text{Cl}_s$ (I I I)、

ここで

$q = 3$ から 7

$p = q$ から $(2q + 2)$

$r, s = 0$ から $(q + 2)$

$r + s = (2q + 2) - p$ であり、

(i v) カルボジシランは、一般式 (I V) から選択され、

$(\text{Me}_a \text{SiH}_b \text{Cl}_e) - \text{CH}_2 - (\text{Me}_c \text{SiH}_d \text{Cl}_f)$ (I V)

ここで

a、c は互いに独立して 1 から 3 であり、

b、d は互いに独立して 0 から 2 であり、

e、f は互いに独立して 0 から 2 であり、

$a + b + e = 3$ 、

$c + d + f = 3$ である、方法。

【請求項 2】

シラン基材は式 (I) から (I V) のシランからなり、好ましくはシラン基材は $\text{Me}_2 \text{SiCl}_2$ である、請求項 1 に記載の方法。

【請求項 3】

(i) モノシランは下記式

MeSiCl_3 、 $\text{Me}_2 \text{SiCl}_2$ 、 $\text{Me}_3 \text{SiCl}$ 、 MeSiHCl_2 、 $\text{Me}_2 \text{SiHCl}$ 、 $\text{MeSiH}_2 \text{Cl}$ 、 MeSiH_3 、 $\text{Me}_2 \text{SiH}_2$ 、および $\text{Me}_3 \text{SiH}$ 、から選択され、

(i i) ジシランは下記式

$\text{Cl}_2 \text{MeSi-SiMeCl}_2$ 、 $\text{Cl}_2 \text{MeSi-SiMe}_2 \text{Cl}$ 、 $\text{Cl}_2 \text{MeSi-SiMe}_3$ 、 $\text{ClMe}_2 \text{Si-SiMe}_2 \text{Cl}$ 、 $\text{Me}_3 \text{Si-SiMe}_2 \text{Cl}$ 、 $\text{HMe}_2 \text{Si-SiMe}_2 \text{Cl}$ 、 $\text{H}_2 \text{MeSi-SiMeClH}$ 、 HClMeSi-SiMeClH 、 ClHMeSi-SiMeCl_2 、 $\text{H}_2 \text{MeSi-SiMeCl}_2$ 、 $\text{HMe}_2 \text{Si-SiMeCl}_2$ 、 $\text{ClMe}_2 \text{Si-SiMeH}_2$ 、 $\text{HMe}_2 \text{Si-SiMeClH}$ 、 $\text{ClMe}_2 \text{Si-SiMeClH}$ 、 $\text{Me}_3 \text{Si-SiMeClH}$ 、 $\text{HMe}_2 \text{Si-SiMe}_2 \text{H}$ 、 $\text{H}_2 \text{MeSi-SiMeH}_2$ 、 $\text{HMe}_2 \text{Si-SiMeH}_2$ 、 $\text{Me}_3 \text{Si-SiMeH}_2$ 、および $\text{Me}_3 \text{Si-SiMe}_2 \text{H}$ 、から選択され、

(i i i) オリゴシランは下記式

$\text{ClMe}_2 \text{Si-SiMe}_2 \text{Cl}$ 、 $\text{ClMe}_2 \text{Si-SiMe}_2 \text{Cl-SiMe}_2 \text{Cl}$ 、 $(\text{ClMe}_2 \text{Si})_3 \text{SiMe}$ 、 $(\text{Cl}_2 \text{MeSi})_2 \text{SiMeCl}$ 、 $(\text{Cl}_2 \text{MeSi})_3 \text{SiMe}$ 、 $(\text{Cl}_2 \text{MeSi})_2 \text{SiMe-SiClMe-SiCl}_2 \text{Me}$ 、 $[(\text{Cl}_2 \text{MeSi})_2 \text{SiMe}]_2$ 、 $[(\text{Cl}_2 \text{MeSi})_2 \text{SiMe}]_2 \text{SiClMe}$

e、 $(\text{Cl}_2\text{MeSi})_2\text{SiMe}-\text{SiMe}_2\text{Cl}$ 、
 $\text{ClMe}_2\text{Si}-\text{SiMe}_2\text{SiMe}_2\text{H}$ 、 $\text{HMe}_2\text{Si}-\text{SiMe}_2-\text{SiMe}_2\text{H}$ 、 $(\text{HMe}_2\text{Si})_3\text{SiMe}$ 、
 $(\text{H}_2\text{MeSi})_2\text{SiMeH}$ 、 $(\text{H}_2\text{MeSi})_3\text{SiMe}$ 、 $(\text{H}_2\text{MeSi})_2\text{SiMe}-\text{SiHMe}-\text{SiH}_2\text{Me}$ 、 $[(\text{H}_2\text{MeSi})_2\text{SiMe}]_2$ 、 $[(\text{H}_2\text{MeSi})_2\text{SiMe}]_2\text{SiHMe}$ 、および $(\text{H}_2\text{MeSi})_2\text{SiMe}-\text{SiMe}_2\text{H}$ 、から選択され、

(iv) カルボシランは下記式

$\text{Cl}_2\text{MeSi}-\text{CH}_2-\text{SiMeCl}_2$ 、 $\text{ClMe}_2\text{Si}-\text{CH}_2-\text{SiMeCl}_2$ 、
 $\text{ClMe}_2\text{Si}-\text{CH}_2-\text{SiMe}_2\text{Cl}$ 、
 $\text{Me}_3\text{Si}-\text{CH}_2-\text{SiMeCl}_2$ 、 $\text{Me}_3\text{Si}-\text{CH}_2-\text{SiMe}_2\text{Cl}$ 、 $\text{HClMeSi}-\text{CH}_2-\text{SiMeClH}$ 、
 $\text{HMe}_2\text{Si}-\text{CH}_2-\text{SiMeCl}_2$ 、 $\text{HMe}_2\text{Si}-\text{CH}_2-\text{SiMe}_2\text{Cl}$ 、 $\text{Me}_3\text{Si}-\text{CH}_2-\text{SiMeClH}$ 、
 $\text{H}_2\text{MeSi}-\text{CH}_2-\text{SiMeH}_2$ 、 $\text{HMe}_2\text{Si}-\text{CH}_2-\text{SiMeH}_2$ 、 $\text{HMe}_2\text{Si}-\text{CH}_2-\text{SiMe}_2\text{H}$ 、
 $\text{Me}_3\text{Si}-\text{CH}_2-\text{SiMeH}_2$ 、および $\text{Me}_3\text{Si}-\text{CH}_2-\text{SiMe}_2\text{H}$ 、から選択され、

ただし、前記方法で使用されるシランの少なくとも1つは、少なくとも1つのクロロ置換基を有しているという条件である、前記請求項のいずれかに記載の方法。

【請求項4】

シラン基材は、 MeSiCl_3 、 Me_2SiCl_2 、 Me_3SiCl 、 MeSiHCl_2 、 Me_2SiHCl 、 MeSiH_2Cl 、 MeSiH_3 、 Me_2SiH_2 、 Me_3SiH 、 $\text{Cl}_2\text{MeSi}-\text{SiMeCl}_2$ 、 $\text{Cl}_2\text{MeSi}-\text{SiMe}_2\text{Cl}$ 、 $\text{Cl}_2\text{MeSi}-\text{SiMe}_3$ 、
 $\text{ClMe}_2\text{Si}-\text{SiMe}_2\text{Cl}$ 、 $\text{Me}_3\text{Si}-\text{SiMe}_2\text{Cl}$ 、 $\text{Cl}_2\text{MeSi}-\text{CH}_2-\text{SiMeCl}_2$ 、 $\text{ClMe}_2\text{Si}-\text{CH}_2-\text{SiMeCl}_2$ 、 $\text{ClMe}_2\text{Si}-\text{CH}_2-\text{SiMe}_2\text{Cl}$ 、 $\text{Me}_3\text{Si}-\text{CH}_2-\text{SiMeCl}_2$ 、および $\text{Me}_3\text{Si}-\text{CH}_2-\text{SiMe}_2\text{Cl}$ からなる群から選択される少なくとも1つ、好ましくは1つより多くのシランを含む、前記請求項のいずれかに記載の方法。

【請求項5】

水素化物供与源は金属水素化物から選択され、好ましくは水素化物供与源は水素化リチウムである、前記請求項のいずれかに記載の方法。

【請求項6】

シランの再分配反応は、1つの特定のクロロヒドリドメチルシランの形成をもたらす、2つの異なるメチルシラン、特に、さらなる置換基として塩素のみを有する1つのメチルシラン、およびさらなる置換基として水素のみを有する1つのメチルシランの均等化を含む、前記請求項のいずれかに記載の方法。

【請求項7】

再分配反応b)は、好ましくは

- R_4PCl 、ここでRは水素またはオルガニル基であり、これらは同一でも異なってもよく、より好ましくは芳香族基または脂肪族炭化水素基、さらにより好ましくはn-アルキル基、そして最も好ましくはn-ブチル基であり、
- トリオルガノホスフィン、ここでRは水素またはオルガニル基であり、好ましくは PPh_3 または $\text{n-Bu}_3\text{P}$ 、
- トリオルガノアミン、ここでRはオルガニル基であり、好ましくは $\text{n-Bu}_3\text{N}$ または NPh_3 、
- N-複素環アミン、好ましくは非N-置換メチルイミダゾール、例えば2-メチルイミダゾール、および4-メチルイミダゾール、
- 四級アンモニウム化合物、好ましくは $\text{n-Bu}_4\text{NCl}$ 、

- － アルカリ金属ハロゲン化物、
- － アルカリ土類金属ハロゲン化物、
- － アルカリ金属水素化物、および
- － アルカリ土類金属水素化物

からなる群から選択される少なくとも1つの再分配触媒の存在下で行われる、前記請求項のいずれかに記載の方法。

【請求項8】

開裂反応c)は、好ましくは

- － 四級15族オニウム化合物 R_4QX 、ここで各Rは独立して水素またはオルガニル基であり、Qはリン、ヒ素、アンチモンまたはビスマスであり、そしてXは、F、Cl、BrおよびIからなる群から選択されるハロゲン化物であり、
- － 複素環アミン、
- － 複素環式アンモニウムハロゲン化物、
- － R_3P およびRXの混合物、ここでRは前記定義通りであり、そしてXは前記定義通りであり、
- － アルカリ金属ハロゲン化物、
- － アルカリ土類金属ハロゲン化物、
- － アルカリ金属水素化物、
- － アルカリ土類金属水素化物、またはそれらの混合物

からなる群から選択される少なくとも1つの開裂触媒の存在下にて、任意にて塩化水素(HCl)の存在下にて行われる、前記請求項のいずれかに記載の方法。

【請求項9】

水素化反応a)、再分配反応b)、および任意にて開裂反応c)は、同時におよび／または段階的に、好ましくは同時に行われる、前記請求項のいずれかに記載の方法。

【請求項10】

反応シーケンスは、以下のプロセス選択肢

- > 水素化反応a)および再分配反応b)が同時に行われ、任意の開裂反応c)が続いて行われる、
 - > 水素化反応a)、再分配反応b)、および開裂反応c)が同時に行われる、
 - > 最初に水素化反応a)が個別に行われ、そして次に再分配反応b)および任意にて開裂反応c)が、同時にまたは別々に行われ、任意にて本実施形態では、水素化反応a)後に、再分配反応b)および任意の開裂反応c)を誘導する前に既に形成されたメチルクロロヒドリドモノシランが分離されることができ、
 - > 最初に水素化反応a)が行われ、次に任意にて開裂反応c)が行われ、そして次に再分配反応b)が行われ、任意にて本実施形態では、水素化反応a)後に、開裂反応c)および再分配反応b)を誘導する前に既に形成されたメチルクロロヒドリドモノシランが分離されることができ、
 - > シラン基材はモノシランから選択され、そしてそのような基材は、最初に水素化反応a)に、そしてその後再分配反応b)に供され、またはそのような基材は、水素化反応a)および再分配反応b)に同時に供される、
- の1つ以上から選択される、前記請求項のいずれかに記載の方法。

【請求項11】

シラン基材は、ミュラー・ロショー直接法の生成物を含む、前記請求項のいずれかに記載の方法。

【請求項12】

シラン基材は、ミュラー・ロショー直接法の生成物全体、またはミュラー・ロショー直接法の生成物の一部(画分)を含む、前記請求項のいずれかに記載の方法。

【請求項13】

シラン基材は、ミュラー・ロショー直接法生成物のモノシラン画分を含む、前記請求項のいずれかに記載の方法。

【請求項 14】

シラン基材は、ミュラー・ロショー直接法生成物のより高いシラン画分（2以上のSi原子を有するシラン）である、前記請求項のいずれかに記載の方法。

【請求項 15】

水素化物供与源はLiHであり、前記方法は、形成されたLiClを分離するステップ、および任意にて分離されたLiClからのLiHの再生のステップを任意に含む、前記請求項のいずれかに記載の方法。