



# (12) 发明专利申请

(10) 申请公布号 CN 115697964 A

(43) 申请公布日 2023. 02. 03

(21) 申请号 202180040150.3

(22) 申请日 2021.06.23

(30) 优先权数据

2020-115757 2020.07.03 JP

(85) PCT国际申请进入国家阶段日

2022.12.02

(86) PCT国际申请的申请数据

PCT/JP2021/023740 2021.06.23

(87) PCT国际申请的公布数据

W02022/004516 JA 2022.01.06

(71) 申请人 中央硝子株式会社

地址 日本山口县

(72) 发明人 新免益隆 渡边谦太 三宅梓

(74) 专利代理机构 北京林达刘知识产权代理事

务所(普通合伙) 11277

专利代理师 刘新宇 李茂家

(51) Int.Cl.

C07C 209/90(2006.01)

C07C 211/07(2006.01)

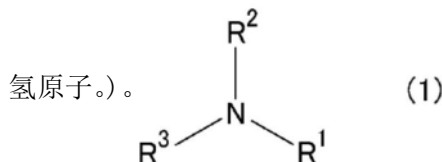
权利要求书1页 说明书7页

(54) 发明名称

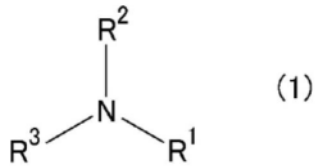
烷基胺组合物和该烷基胺组合物的保存方法

(57) 摘要

本公开的烷基胺组合物的特征在于,包含99.5体积%以上的下述通式(1)所示的烷基胺,且包含10质量ppm以上且100质量ppm以下的水分。(通式(1)中N为氮原子。R<sup>1</sup>为任选具有环、杂原子或卤素原子的碳数1~10的烃基。R<sup>2</sup>和R<sup>3</sup>各自独立地为氢原子,或者为任选具有环、杂原子或卤素原子的碳数1~10的烃基。其中,烃基的碳数为3以上的情况下,任选形成支链结构或者环状结构。烃基的杂原子为氮原子、氧原子、硫原子或磷原子。进而,R<sup>1</sup>与R<sup>2</sup>均为碳数1以上的烃基的情况下,R<sup>1</sup>与R<sup>2</sup>任选直接键合而形成环状结构。进而,R<sup>1</sup>或R<sup>2</sup>由双键直接键合而形成环状结构的情况下,任选形成芳香环而R<sup>3</sup>不存在。另外,R<sup>1</sup>、R<sup>2</sup>和R<sup>3</sup>任选为相同的烃基或不同的烃基。另外,R<sup>1</sup>在与氮原子键合的α位的碳上具有一个以上的



1. 一种烷基胺组合物,其特征在于,包含99.5体积%以上的下述通式(1)所示的烷基胺,且包含10质量ppm以上且100质量ppm以下的水分,



通式(1)中N为氮原子,R<sup>1</sup>为任选具有环、杂原子或卤素原子的碳数1~10的烃基,R<sup>2</sup>和R<sup>3</sup>各自独立地为氢原子,或者为任选具有环、杂原子或卤素原子的碳数1~10的烃基,其中,烃基的碳数为3以上的情况下,任选形成支链结构或者环状结构,烃基的杂原子为氮原子、氧原子、硫原子或磷原子,进而,R<sup>1</sup>与R<sup>2</sup>均为碳数1以上的烃基的情况下,R<sup>1</sup>与R<sup>2</sup>任选直接键合而形成环状结构,进而,R<sup>1</sup>或R<sup>2</sup>由双键直接键合而形成环状结构的情况下,任选形成芳香环而R<sup>3</sup>不存在,另外,R<sup>1</sup>、R<sup>2</sup>和R<sup>3</sup>任选为相同的烃基或不同的烃基,另外,R<sup>1</sup>在与氮原子键合的α位的碳上具有一个以上的氢原子。

2. 根据权利要求1所述的烷基胺组合物,其中,所述通式(1)中,R<sup>2</sup>和R<sup>3</sup>为氢原子。

3. 根据权利要求1或2所述的烷基胺组合物,其中,所述通式(1)中,R<sup>1</sup>为不具有杂原子和卤素原子的烃基。

4. 根据权利要求1~3中任一项所述的烷基胺组合物,其中,所述通式(1)中,R<sup>1</sup>的碳数为3~6。

5. 根据权利要求1所述的烷基胺组合物,其中,所述烷基胺为正丁基胺。

6. 根据权利要求1~5中任一项所述的烷基胺组合物,其还包含1体积ppm以上且1000体积ppm以下的氧。

7. 根据权利要求1~6中任一项所述的烷基胺组合物,其中,包含99.9体积%以上的所述烷基胺。

8. 一种烷基胺组合物的保存方法,其特征在于,包括如下工序:

填充工序,将权利要求1~7中任一项所述的烷基胺组合物填充至容器;和,  
保存工序,将填充有所述烷基胺组合物的容器以10℃以上且45℃以下保存。

9. 根据权利要求8所述的烷基胺组合物的保存方法,其中,所述保存工序中,即使以25℃保存1个月,亚胺化合物的增加量也为100体积ppm以下。

10. 根据权利要求8或9所述的烷基胺组合物的保存方法,其中,所述容器为不锈钢(SUS)制、锰钢制、镍钢制、或铬钼钢制的容器。

## 烷基胺组合物和该烷基胺组合物的保存方法

### 技术领域

[0001] 本公开涉及烷基胺组合物和该烷基胺组合物的保存方法。

### 背景技术

[0002] 以正丁基胺为代表的烷基胺被用于药品制造工序、半导体器件制造工序。期望这种药品制造工序、半导体器件制造工序中使用的原料的纯度尽可能高。

[0003] 另一方面,烷基胺在保存中大多引起着色、纯度的降低。作为防止这种保存中发生着色的情况的方法,专利文献1中公开了如下方法:通过在芳香族胺中添加胍等从而稳定化,来防止着色。

[0004] 现有技术文献

[0005] 专利文献

[0006] 专利文献1:日本特开平3-287566号公报

### 发明内容

[0007] 发明要解决的问题

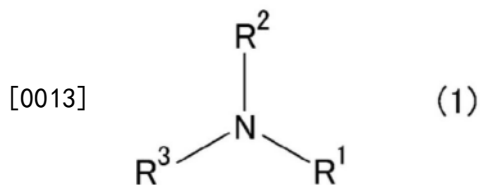
[0008] 然而,专利文献1中记载的方法中,在成为保存对象的化合物中添加了包含胍的添加剂,因此,将包含上述添加剂本身、衍生自添加剂的物质的上述胺组合物用于药品等的制造工序时,存在有可能制造不符合要求特性的制品的问题。

[0009] 本公开鉴于上述课题,其目的在于,提供:包含少量的药品等的制造工序中不易成为问题的成分、保存稳定性优异、通过长期保存杂质也不易增加的烷基胺组合物和该烷基胺组合物的稳定的保存方法。

[0010] 用于解决问题的方案

[0011] 本发明人等进行了深入研究,结果发现:在烷基胺的长期保管中,生成亚胺是纯度降低的原因;和,烷基胺包含微量的水的情况下,能够抑制长期保存期间中亚胺的生成所导致的纯度降低,包含水的杂质的总量也变少,至此完成了本公开。

[0012] 即,本公开的烷基胺组合物的特征在于,包含99.5体积%以上的下述通式(1)所示的烷基胺,且包含10质量ppm以上且100质量ppm以下的水分。



[0014] (通式(1)中N为氮原子。 $R^1$ 为任选具有环、杂原子或卤素原子的碳数1~10的烃基。 $R^2$ 和 $R^3$ 各自独立地为氢原子,或者为任选具有环、杂原子或卤素原子的碳数1~10的烃基。其中,烃基的碳数为3以上的情况下,任选形成支链结构或者环状结构。烃基的杂原子为氮原子、氧原子、硫原子或磷原子。进而, $R^1$ 与 $R^2$ 均为碳数1以上的烃基的情况下, $R^1$ 与 $R^2$ 任选直接键合而形成环状结构。进而, $R^1$ 或 $R^2$ 由双键直接键合而形成环状结构的情况下,任选形成芳

香环而R<sup>3</sup>不存在。另外,R<sup>1</sup>、R<sup>2</sup>和R<sup>3</sup>任选为相同的烃基或不同的烃基。另外,R<sup>1</sup>在与氮原子键合的 $\alpha$ 位的碳上具有一个以上的氢原子。)

[0015] 根据本公开的烷基胺组合物,上述烷基胺组合物中包含10质量ppm以上且100质量ppm以下的水分,因此,可以长期地抑制作为杂质的亚胺的生成。另外,上述烷基胺组合物包含10质量ppm以上且100质量ppm以下的水分,但即使在药品等的制造工序中使用上述烷基胺组合物,也不太可能由于极其微量的水分而制造不符合要求特性的制品。另一方面,通过含有上述水分,从而能够抑制有可能制造不符合要求特性的制品的亚胺的生成。进而,即使认为水为有可能成为问题的杂质的情况下,包含水的杂质的总量也变少,可以适合作为药品等使用。

[0016] 上述烷基胺组合物包含低于10质量ppm的水分的情况下,变得不易抑制亚胺的生成,亚胺的含有比例增加,因此,用于药品等的制造工序的情况下,可能会对制品特性造成影响。另一方面,上述烷基胺组合物包含超过100质量ppm的水分时,可以减少亚胺的含有比例,但作为制造药品等时的原料使用的情况下,产生水分本身可能会对制品特性造成影响。

[0017] 本公开的烷基胺组合物中,期望上述烷基胺为正丁基胺。

[0018] 上述烷基胺组合物中,上述烷基胺如果为正丁基胺,则能够作为药品制造用的原料、最适于制造半导体器件时的化合物使用。

[0019] 本公开的烷基胺组合物可以还包含1体积ppm以上且1000体积ppm以下的氧。

[0020] 本公开的烷基胺组合物还包含1体积ppm以上且1000体积ppm以下的氧,由于上述的范围包含水分,因此,也可以长期地抑制亚胺的生成。

[0021] 本公开的烷基胺组合物中,难以使氧的含有比例低于1体积ppm,另一方面,氧的含有比例如果超过1000体积ppm,则水分的含有比例即使为上述范围,亚胺的含有比例也会变多,在用作制造药品等时的原料的情况下,亚胺本身可能会对制品特性造成影响。

[0022] 本公开的烷基胺组合物期望包含上述99.9体积%以上的烷基胺。

[0023] 本公开的烷基胺组合物中,如果包含上述99.9体积%以上的烷基胺,则烷基胺的纯度高,且可以长期地减少杂质的含量,可以更适合作为药品等使用。

[0024] 本公开的烷基胺组合物的保存方法的特征在于,包括如下工序:填充工序,将上述烷基胺组合物填充至容器;和,保存工序,将填充有上述烷基胺组合物的容器以10℃以上且45℃以下保存。

[0025] 根据本公开的烷基胺组合物的保存方法,包括如下工序:将烷基胺组合物填充至容器的填充工序;和,将填充有上述烷基胺组合物的容器以10℃以上且45℃以下保存的保存工序,使用本公开的烷基胺组合物作为烷基胺组合物,保存时的容器的温度也为10℃以上且45℃以下,因此,可以历经长时间地抑制亚胺的生成。

[0026] 本公开的烷基胺组合物的保存方法中,以低于10℃保存填充有烷基胺组合物的容器时,用于冷却的费用增大,故不理想。另一方面,想要以超过45℃的温度保存填充有烷基胺组合物的容器时,变得容易生成亚胺,故不理想。

[0027] 本公开的烷基胺组合物的保存方法中,即使以25℃保存1个月,也可以使亚胺化合物的增加量为100体积ppm以下,长时间保存中也能够抑制亚胺的生成。

[0028] 本公开的烷基胺组合物的保存方法中,期望上述容器为不锈钢(SUS)制、锰钢制、镍钢制、或铬钼钢制的容器。

[0029] 本公开的烷基胺组合物的保存方法中,上述容器如果为不锈钢(SUS)制、锰钢制、镍钢制、或铬钼钢制的容器,则上述容器具有充分的机械强度,因此,能安全地保存,另外,也基本没有杂质自容器溶出,因此,即使长期地保存上述烷基胺组合物,也能够抑制亚胺等杂质的增加。

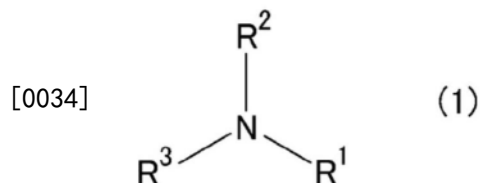
[0030] 发明的效果

[0031] 根据本公开的烷基胺组合物,上述烷基胺组合物包含极其微量水分,但由于微量水分而制造不符合要求特性的制品的可能性小,能够抑制有可能长期用于药品等的制造工序时制造不符合要求特性的制品的亚胺的生成。进而,即使认为水为有可能成为问题的杂质的情况下,包含水的杂质的总量也变少,可以适合作为药品等使用。

### 具体实施方式

[0032] 以下,对本公开详细地进行说明,但以下中记载的技术特征的说明是本公开的实施方式的一例,不限于这些具体内容。在其主旨的范围内可以进行各种变形而实施。

[0033] 本公开的烷基胺组合物的特征在于,包含99.5体积%以上的下述通式(1)所示的烷基胺,且包含10质量ppm以上且100质量ppm以下的水分。



[0035] (通式(1)中N为氮原子。 $R^1$ 为任选具有环、杂原子或卤素原子的碳数1~10的烃基。 $R^2$ 和 $R^3$ 各自独立地为氢原子,或者为任选具有环、杂原子或卤素原子的碳数1~10的烃基。其中,烃基的碳数为3以上的情况下,任选形成支链结构或者环状结构。烃基的杂原子为氮原子、氧原子、硫原子或磷原子。进而, $R^1$ 与 $R^2$ 均为碳数1以上的烃基的情况下, $R^1$ 与 $R^2$ 任选直接键合而形成环状结构。进而, $R^1$ 或 $R^2$ 由双键直接键合而形成环状结构的情况下,任选形成芳香环而 $R^3$ 不存在。另外, $R^1$ 、 $R^2$ 和 $R^3$ 任选为相同的烃基或不同的烃基。另外, $R^1$ 在与氮原子键合的 $\alpha$ 位的碳上具有一个以上的氢原子。)

[0036] 根据本公开的烷基胺组合物,上述烷基胺组合物中包含10质量ppm以上且100质量ppm以下的水分,因此,可以长期地抑制作为杂质的亚胺的生成。另外,上述烷基胺组合物包含10质量ppm以上且100质量ppm以下的水分,但将上述烷基胺组合物用于药品等的制造工序的情况下,制造由于极其微量水分而不符合要求特性的制品的可能性也小。另一方面,通过含有上述水分,从而能够抑制有制造不符合要求特性的制品的可能性的亚胺的生成。进而,即使认为水为有成为问题的可能性的杂质的情况下,包含水的杂质的总量也变少,可以适合作为药品等使用。

[0037] 上述通式(1)所示的烷基胺中,作为上述烃基中任选包含的卤素原子,可以举出氟原子、氯原子、溴原子或碘原子。进而,碳数3以上的情况下,烃基可以为异丙基等具有支链的烃基,也可以为苯基等芳香族系烃基、芳香族以外的任选包含共轭双键的环己基等脂环系烃基。上述通式(1)所示的烷基胺可以为具有五元环结构或六元环结构的杂环式胺。

[0038] 作为上述烷基胺的例子,对于叔胺,可以举出三甲基胺、三乙基胺、二甲基乙基胺或二乙基甲基胺。

[0039] 作为上述烷基胺的例子,对于仲胺,可以举出二甲基胺、二乙基胺、二-正丙基胺、二异丙基胺、二丁基胺、N-甲基乙基胺、N-甲基丙基胺、N-甲基丁基胺或N-甲基戊基胺。

[0040] 作为上述烷基胺的例子,对于杂环式胺,可以举出吡咯烷、哌啶、哌嗪、吡啶或吡嗪。

[0041] 作为上述烷基胺的例子,对于伯胺,可以举出甲基胺、乙基胺、正丙基胺、异丙基胺、正丁基胺、仲丁基胺、异丁基胺、正戊基胺、正己基胺或正庚基胺。

[0042] 上述通式(1)中, $R^2$ 和 $R^3$ 优选为氢原子。另外,上述通式(1)中, $R^1$ 优选为不具有杂原子和卤素原子的烃基。

[0043] 另外,上述通式(1)中, $R^1$ 为碳数1~10的烃基、优选碳数1~7的烃基、更优选碳数3~6的烃基。

[0044] 因此,作为上述烷基胺,优选正丙基胺、异丙基胺、正丁基胺、仲丁基胺或异丁基胺,特别优选正丁基胺。

[0045] 上述烷基胺组合物为正丁基胺组合物的情况下,期望异丁基胺等正丁基胺以外的烷基胺的含有比例为0.05体积%以下。正丁基胺以外的烷基胺的含有比例如果多,则有可能在药品等的制造工序中制造不符合要求特性的制品。

[0046] 本公开的烷基胺组合物是包含上述通式(1)所示的烷基胺99.5体积%以上的、高纯度的烷基胺组合物,但期望包含上述99.9体积%以上的烷基胺,特别期望包含99.95体积%以上。上述烷基胺组合物如果为更高纯度,则可以更适合用于药品制造工序、半导体器件制造工序中。

[0047] 本公开的烷基胺组合物包含10质量ppm以上且100质量ppm以下的水分,但期望包含30质量ppm以上且80质量ppm以下的水分。这是由于能够进一步抑制亚胺的生成。通过蒸馏等而纯化的烷基胺中,有时包含低于10ppm的水分,但该情况下,通过添加超纯水等水分,从而调整水分含有比例。此时,期望要添加的水分的溶存氧事先用氮鼓泡等预先去除。

[0048] 本公开的烷基胺组合物可以包含1体积ppm以上且1000体积ppm以下的氧,也可以包含10体积ppm以上且100体积ppm以下的氧。

[0049] 烷基胺在长期保存中容易生成亚胺,但此时同时也生成水。在烷基胺组合物的保存过程中生成的亚胺是具有碳氮双键( $C=N$ )的化合物,同时也生成水( $H_2O$ ),因此推断烷基胺组合物中所含的氧与胺发生反应,生成了亚胺。因此,认为烷基胺组合物中的氧少时不易生成亚胺,但难以使氧的含有比例低于1体积ppm。另外,烷基胺组合物中,即使以1000体积ppm以下的比例包含氧,通过使烷基胺组合物中的水分的含有比例为10质量ppm以上且100质量ppm以下,从而也可以可靠地抑制亚胺的生成。

[0050] 上述烷基胺组合物中,可以包含烷基胺、水分、氧以外的其他杂质。作为其他杂质,可以举出非活性气体、氮气等。这些杂质的含有比例期望20体积ppm以下。

[0051] 接着,对上述烷基胺组合物的保存方法进行说明。

[0052] 本公开的烷基胺组合物的保存方法的特征在于,包括如下工序:填充工序,将本公开的上述烷基胺组合物填充至容器;和,保存工序,将填充有上述烷基胺组合物的容器以10℃以上且45℃以下保存。

[0053] 本公开的烷基胺组合物的保存方法中,作为填充工序,将上述烷基胺组合物填充至容器。

[0054] 此时,期望以液体的状态填充。本公开的烷基胺组合物在上述温度下基本为液体,因此,可以以液体的状态填充至保存容器。本公开的烷基胺组合物即使在常温下为气体,通过在施加了压力的状态下进行填充,从而也能够液化。该情况下,由于蒸气压不太高,因此,通常可以使用泵等安全地填充至储气罐等中使用的金属制的容器中。

[0055] 填充上述烷基胺组合物的容器没有特别限定,例如可以举出不锈钢(SUS)制、锰钢制、镍钢制、铬钼钢制的容器等。

[0056] 将上述烷基胺组合物填充至容器后保存时,将填充有烷基胺组合物的容器以10℃以上且45℃以下保存。

[0057] 想要使保存时的温度低于10℃时,需要将保存容器冷却至低于10℃,用于保存的费用增大,故不优选。另一方面,保存时,如果设定为超过45℃的温度,则需要加热,耗费用于加热的费用,亚胺也变得容易生成,故不优选。

[0058] 保存工序中,只要在能在室温附近的温度下保存的保存库中,保存填充有烷基胺组合物的容器就没有问题,但优选保存在能在25℃左右的恒温下保存的保存库。

[0059] 本公开的烷基胺组合物中,即使以25℃保存1个月,亚胺化合物的增加量也可以为100体积ppm以下。因此,根据本公开的烷基胺组合物的保存方法,即使为长时间的保存,也可以充分地抑制亚胺的生成。

[0060] 将上述烷基胺组合物以25℃保存1个月时,亚胺化合物的增加量期望为80体积ppm以下,更期望为30体积ppm以下。

[0061] 保存填充有烷基胺组合物的容器规定的时间后,用于实际时,将保存有烷基胺组合物的容器转移至现场后,将上述容器加热至烷基胺组合物的沸点或接近于沸点的温度,从而使其气化形成气体组合物,可以借助配管等供给至目标装置。另外,保存本公开的烷基胺组合物后,可以直接将烷基胺组合物以液体取出,借助配管等供给至目标装置。

[0062] 保管场所与制造装置等接近的情况下,如果事先将保存容器与制造装置等用配管连接,则可以适宜将本公开的烷基胺组合物供给至制造装置等。

[0063] 作为上述容器的加热手段,例如可以举出用有罩加热器覆盖容器的方法;用热水、蒸气等热介质流通的夹套覆盖容器的方法等。

[0064] 气体组合物的流量根据规定的装置的构成而不同,没有特别限定,但气体组合物的流量的控制例如可以利用质量流量控制器等而进行。

[0065] 实施例

[0066] 以下,示出更具体地公开了本公开的实施方式的实施例。需要说明的是,本公开不仅限于这些实施例。

[0067] [实施例1]

[0068] 将包含正丁基胺的原料蒸馏,从而得到纯度为99.99体积%、水分为8质量ppm的正丁基胺组合物。认为,氧浓度为1体积ppm以上且1000体积ppm以下。此处,氧浓度可以通过如下方式计算,使用气相色谱分析装置(GC-2030、株式会社岛津制作所制、检测器:FID)实施液相分析,由亚胺化合物的含量进行换算,从而计算。具体而言,可以根据由2mol的丁基胺与1mol的O<sub>2</sub>生成1mol的亚胺化合物的推测机制计算出氧浓度。

[0069] 之后,添加超纯水,制备水分含有比例为50质量ppm的正丁基胺组合物。需要说明的是,超纯水中的溶存氧的量小至能忽视的程度,因此,各实施例中正丁基胺组合物的氧浓

度基本相同。

[0070] 将通过上述制备得到的正丁基胺组合物0.9L在室温下填充至SUS制1L的容器中，以25℃保管。

[0071] 之后，每隔1个月进行内部的正丁基胺组合物的取样，利用使用了气相色谱分析装置(GC-2030、株式会社岛津制作所制、检测器:FID)的气相色谱仪，测定正丁基胺的纯度和亚胺化合物(N-丁亚基丁胺)的含有比例。另外，水分含有比例用卡尔费歇尔水分计(设备:京都电子制MKC-610)测定。将结果示于表1。

[0072] [表1]

	正丁基胺纯度 (体积%)	水分含有比例 (质量ppm)	正丁基丁烷亚胺 含有比例(体积ppm)
[0073] 试验前	99.99	50	0
1个月后	99.99	51	10
2个月后	99.99	52	12
3个月后	99.99	54	14

[0074] [实施例2]

[0075] 通过添加超纯水，从而制备水分含有比例为90质量ppm的正丁基胺组合物，除此之外，将与实施例1同样地通过制备得到的正丁基胺组合物在室温下填充至容器，以25℃保管。然后，每隔1个月利用气相色谱仪测定正丁基胺组合物中的正丁基胺的纯度和亚胺化合物(N-丁亚基丁胺)的含有比例，用卡尔费歇尔水分计测定水分含有比例。将结果示于表2。

[0076] [表2]

	正丁基胺纯度 (体积%)	水分含有比例 (质量ppm)	正丁基丁烷亚胺 含有比例(体积ppm)
[0077] 试验前	99.99	90	0
1个月后	99.99	90	0
2个月后	99.99	91	5
3个月后	99.99	91	5

[0078] [比较例1]

[0079] 与实施例1同样地将包含正丁基胺的原料蒸馏，从而得到纯度为99.99体积%、水分量为8质量ppm的正丁基胺后，完全不添加超纯水，除此之外，将与实施例1同样地得到的正丁基胺组合物0.9L填充至SUS制1L的容器，以25℃保管。

[0080] 之后，每隔1个月利用气相色谱仪测定正丁基胺组合物中的正丁基胺的纯度和亚胺化合物(N-丁亚基丁胺)的含有比例，用卡尔费歇尔水分计测定水分含有比例。将结果示于表3。

[0081] [表3]

	正丁基胺纯度 (体积%)	水分含有比例 (质量ppm)	正丁基丁烷亚胺 含有比例(体积ppm)
[0082] 试验前	99.99	8	0
1个月后	99.98	20	130
2个月后	99.98	24	141
3个月后	99.98	27	146

[0083] 由表1~表3所示的结果表明:水分的含有比例低于10质量ppm的比较例1中,随着时间的经过,亚胺化合物的量大幅增加,伴随于此,水分稍增加,而水分的含有比例为10质量ppm以上的实施例1和2中,亚胺化合物的量迄今为止未大幅增加。如果认为水与亚胺化合物的合计是杂质的量,则特意添加水时,抑制亚胺化合物的生成,因此,与比较例1相比,实施例1和2成为杂质的浓度少的结果。

[0084] 本申请将2020年7月3日申请的日本专利申请2020-115757号作为基础,要求基于巴黎公约乃至进入的国家中的法规的优先权。该申请的内容其整体作为参照引入至本申请中。