

【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】平成26年2月13日(2014.2.13)

【公表番号】特表2013-515728(P2013-515728A)

【公表日】平成25年5月9日(2013.5.9)

【年通号数】公開・登録公報2013-022

【出願番号】特願2012-546076(P2012-546076)

【国際特許分類】

C 0 7 D 487/04 (2006.01)

C 0 7 B 61/00 (2006.01)

【F I】

C 0 7 D 487/04 1 3 6

C 0 7 D 487/04 1 4 8

C 0 7 D 487/04 1 4 4

C 0 7 D 487/04 1 5 1

C 0 7 B 61/00 3 0 0

【手続補正書】

【提出日】平成25年12月16日(2013.12.16)

【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】

1, 5, 7-トリアザピシクロ[5.5.0]デセ-5-エン(TBD)を合成する方法であって、スルホン酸の存在下で炭酸グアニジンをビス(3-アミノプロピル)アミンと接触させるステップを含む方法。

【請求項2】

前記接触させるステップは前記反応物の未希釈混合物を加熱するステップを含む、請求項1に記載の方法。

【請求項3】

前記混合物は約80 ~ 約180 の温度に加熱される、請求項2に記載の方法。

【請求項4】

炭酸グアニジンと、ビス(3-アミノプロピル)アミンと、前記スルホン酸とのモル比は約1:1:1である、請求項1に記載の方法。

【請求項5】

前記スルホン酸はメタンスルホン酸を含む、請求項1に記載の方法。

【請求項6】

1, 5, 7-トリアザピシクロ[5.5.0]デセ-5-エン(TBD)を合成する方法であって、スルホン酸の存在下でテトラメチルグアニジンをビス(3-アミノプロピル)アミンと接触させるステップを含む方法。

【請求項7】

前記接触させるステップは前記反応物の未希釈混合物を加熱するステップを含む、請求項6に記載の方法。

【請求項8】

前記混合物は約80 ~ 約180 の温度に加熱される、請求項7に記載の方法。

【請求項9】

炭酸グアニジンと、ビス(3-アミノプロピル)アミンと、前記スルホン酸とのモル比は約1:1:1である、請求項6に記載の方法。

【請求項10】

前記スルホン酸はメタンスルホン酸を含む、請求項6に記載の方法。

【手続補正2】

【補正対象書類名】明細書

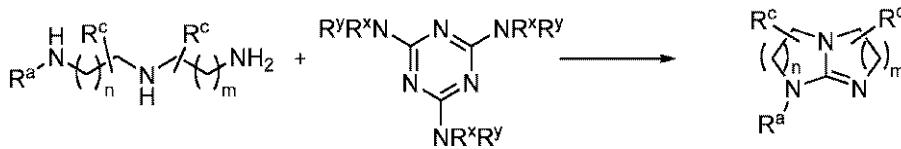
【補正対象項目名】0011

【補正方法】変更

【補正の内容】

【0011】

【化3】



スキーム3

一実施形態において、例えば、以下の項目が提供される。

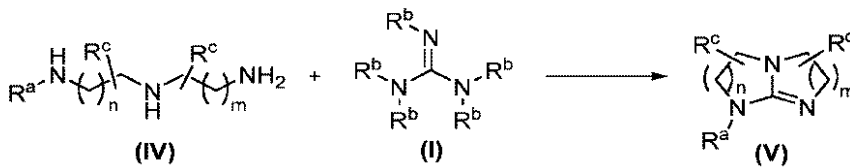
(項目1)

多環式グアニジン化合物の調製方法であって、トリアミン化合物を、グアニジン、非環式グアニジン化合物、シアナミド、シアニミド化合物、メラミンおよびメラミン誘導体からなる群から選択される試薬と接触させるステップを含む方法。

(項目2)

式Vの多環式グアニジン化合物は、式IVのトリアミン化合物を式Iの非環式グアニジン化合物と接触させることにより調製される、項目1に記載の方法：

【化27】



式中、

R^a は、水素、必要に応じて置換されている脂肪族、必要に応じて置換されているヘテロ脂肪族、必要に応じて置換されているアリール、および必要に応じて置換されているヘテロアリールからなる群から選択され、

R^c は必要に応じて存在し、存在するR^c は各々独立に、ハロゲン、必要に応じて置換されている脂肪族、必要に応じて置換されているヘテロ脂肪族、必要に応じて置換されているアリール、および必要に応じて置換されているヘテロアリールからなる群から選択され、2つ以上のR^c基は必要に応じて、介在する原子と一緒に、酸素、窒素または硫黄から選択される1~3個のヘテロ原子を必要に応じて含む1つまたは複数の必要に応じて置換されている環を形成してもよく、

nは1以上4以下の整数であり、

mは1以上4以下の整数であり、

存在するR^bは各々独立に、水素、必要に応じて置換されているC₁₋₂₀脂肪族、必要に応じて置換されているアリールおよびニトリルからなる群から選択される。

(項目3)

存在する R^b は各々、水素またはアルキル基である、項目 2 に記載の方法。

(項目 4)

式 I の前記非環式グアニジン化合物はグアニジンである、項目 2 に記載の方法。

(項目 5)

式 I の前記非環式グアニジン化合物はテトラアルキルグアニジンである、項目 2 に記載の方法。

(項目 6)

式 I の前記非環式グアニジン化合物はテトラメチルグアニジンである、項目 2 に記載の方法。

(項目 7)

式 I の前記非環式グアニジン化合物は塩または付加物の形態である、項目 2 に記載の方法。

(項目 8)

式 I の前記非環式グアニジン化合物は炭酸塩の形態である、項目 2 に記載の方法。

(項目 9)

式 I の前記非環式グアニジン化合物は炭酸グアニジンである、項目 2 に記載の方法。

(項目 10)

式 I の前記非環式グアニジン化合物は硫酸グアニジンである、項目 2 に記載の方法。

(項目 11)

式 I の前記非環式グアニジン化合物は酢酸グアニジンである、項目 2 に記載の方法。

(項目 12)

式 I の前記非環式グアニジン化合物は硝酸グアニジンである、項目 2 に記載の方法。

(項目 13)

式 I の前記非環式グアニジン化合物はグアニジン p - トルエンスルホネートである、項目 2 に記載の方法。

(項目 14)

式 I の前記非環式グアニジン化合物は塩酸グアニジンである、項目 2 に記載の方法。

(項目 15)

式 I の前記非環式グアニジン化合物はリン酸グアニジンである、項目 2 に記載の方法。

(項目 16)

少なくとも 1 つ存在する R^b はニトリルである、項目 2 に記載の方法。

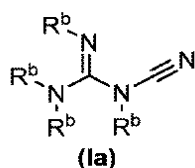
(項目 17)

少なくとも 1 つ存在する R^b はニトリルであり、他に存在する場合はすべて水素またはアルキル基から独立に選択される、項目 2 に記載の方法。

(項目 18)

式 I の前記非環式グアニジン化合物は下記式 I a の非環式グアニジン化合物である、項目 2 に記載の方法

【化 28】



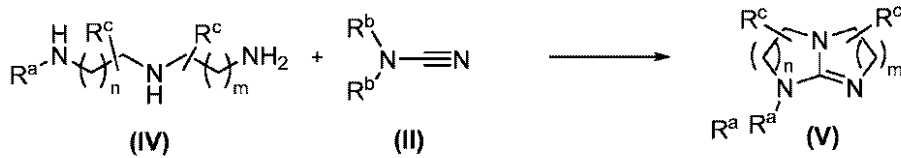
(項目 19)

式 I の前記非環式グアニジン化合物はシアノグアニジンである、項目 2 に記載の方法。

(項目 20)

式 V の多環式グアニジン化合物は、式 I V のトリアミン化合物を式 I I のシアニミド化合物と接触させることにより調製される、項目 1 に記載の方法：

【化 2 9】



式中、

R^a は水素、必要に応じて置換されている脂肪族、必要に応じて置換されているヘテロ脂肪族、必要に応じて置換されているアリール、および必要に応じて置換されているヘテロアリールからなる群から選択され、

R^c は必要に応じて存在し、存在する R^c は各々独立に、ハロゲン、必要に応じて置換されている脂肪族、必要に応じて置換されているヘテロ脂肪族、必要に応じて置換されているアリール、および必要に応じて置換されているヘテロアリールからなる群から選択され、2 つ以上の R^c 基は必要に応じて、介在する原子と一緒に、酸素、窒素または硫黄から選択される 1 ~ 3 個のヘテロ原子を必要に応じて含む 1 つまたは複数の必要に応じて置換されている環を形成してもよく、

n は 1 以上 4 以下の整数であり、

m は 1 以上 4 以下の整数であり、

存在する R^b は各々独立に、水素、必要に応じて置換されている C₁ - C₁₀ 脂肪族、および必要に応じて置換されているアリールからなる群から選択される。

(項目 2 1)

式 I I の前記シアニミド化合物はシアナミドである、項目 2 0 に記載の方法。

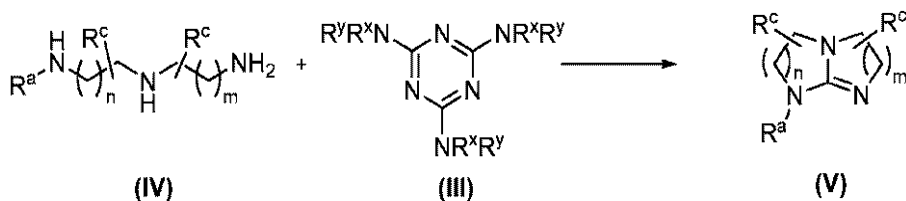
(項目 2 2)

存在する R^b は各々、水素またはアルキル基である、項目 2 0 に記載の方法。

(項目 2 3)

式 V の多環式グアニジン化合物は、式 I V のトリアミン化合物を式 I I I のメラミンまたはメラミン誘導体と接触させることにより調製される、項目 1 に記載の方法：

【化 3 0】



式中、

R^a は水素、必要に応じて置換されている脂肪族、必要に応じて置換されているヘテロ脂肪族、必要に応じて置換されているアリール、および必要に応じて置換されているヘテロアリールからなる群から選択され、

R^c は必要に応じて存在し、存在する R^c は各々独立に、ハロゲン、必要に応じて置換されている脂肪族、必要に応じて置換されているヘテロ脂肪族、必要に応じて置換されているアリール、および必要に応じて置換されているヘテロアリールからなる群から選択され、2 つ以上の R^c 基は必要に応じて、介在する原子と一緒に、酸素、窒素または硫黄から選択される 1 ~ 3 個のヘテロ原子を必要に応じて含む 1 つまたは複数の必要に応じて置換されている環を形成してもよく、

n は 1 以上 4 以下の整数であり、
m は 1 以上 4 以下の整数であり、
存在する R^x および R^y は各々独立に水素、必要に応じて置換されている C₁₋₂₀ 脂肪族、および必要に応じて置換されているアールからなる群から選択される。

(項目 24)

存在する R^x および R^y は各々独立に水素またはアルキル基である、項目 23 に記載の方法。

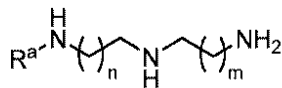
(項目 25)

式 V の前記多環式グアニジン化合物は式 I V のトリアミン化合物をメラミンと接触させることにより調製される、項目 23 に記載の方法。

(項目 26)

式 I V の前記トリアミン化合物は式 I V a のトリアミン化合物である、項目 2、20 または 23 のいずれか 1 項に記載の方法

【化 31】



(IVa)

。

(項目 27)

前記トリアミン化合物は必要に応じて置換されているビス(アミノプロピル)アミンである、項目 1 に記載の方法。

(項目 28)

前記トリアミン化合物は必要に応じて置換されているビス(アミノエチル)アミンである、項目 1 に記載の方法。

(項目 29)

前記トリアミン化合物は必要に応じて置換されている 2, 6 - ビス(アミノメチル)ピペリジンである、項目 1 に記載の方法。

(項目 30)

前記トリアミン化合物は必要に応じて置換されている 2, 6 - ビス(アミノエチル)ピペリジンである、項目 1 に記載の方法。

(項目 31)

前記トリアミン化合物は必要に応じて置換されている 2, 5 - ビス(アミノメチル)ピロリジンである、項目 1 に記載の方法。

(項目 32)

前記トリアミン化合物は必要に応じて置換されている 2, 5 - ビス(アミノエチル)ピロリジンである、項目 1 に記載の方法。

(項目 33)

前記トリアミン化合物は必要に応じて置換されている N - (2 - アミノエチル) - 1, 3 - プロパンジアミンである、項目 1 に記載の方法。

(項目 34)

前記トリアミン化合物は必要に応じて置換されている N - (2 - アミノエチル) - 1, 4 - ブタンジアミンである、項目 1 に記載の方法。

(項目 35)

前記トリアミン化合物は必要に応じて置換されている N - (2 - アミノプロピル) - 1, 4 - ブタンジアミンである、項目 1 に記載の方法。

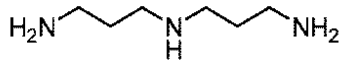
(項目 36)

からなる群から選択される、項目 2、20 または 23 のいずれか 1 項に記載の方法。

(項目 37)

前記トリアミン化合物は下記構造のトリアミン化合物である、項目 2、20 または 23 のいずれか 1 項に記載の方法

【化 34】

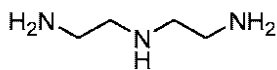


°

(項目 38)

前記トリアミン化合物は下記構造のトリアミン化合物である、項目 2、20 または 23 のいずれか 1 項に記載の方法

【化 35】

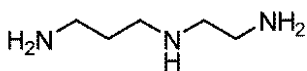


°

(項目 39)

前記トリアミン化合物は下記構造のトリアミン化合物である、項目 2、20 または 23 のいずれか 1 項に記載の方法

【化 36】



°

(項目 40)

前記トリアミン化合物と前記試薬とは溶媒の存在下で接触する、項目 1 に記載の方法。

(項目 41)

前記トリアミン化合物と前記試薬とは溶媒の非存在下で接触する、項目 1 に記載の方法

°

(項目 42)

前記トリアミン化合物と前記試薬との混合物を加熱するステップをさらに含む、項目 1 に記載の方法。

(項目 43)

前記混合物は約 50 ~ 約 250 の温度に加熱される、項目 42 に記載の方法。

(項目 44)

前記混合物は約 80 ~ 約 200 の温度に加熱される、項目 42 に記載の方法。

(項目 45)

前記混合物は約 100 ~ 約 180 の温度に加熱される、項目 42 に記載の方法。

(項目 46)

前記混合物は約 140 ~ 約 160 の温度に加熱される、項目 42 に記載の方法。

(項目 47)

前記トリアミン化合物と前記試薬とは促進剤の存在下で接触する、項目 1 に記載の方法

°

(項目48)

前記促進剤は酸である、項目47に記載の方法。

(項目49)

前記酸は鉱酸およびスルホン酸からなる群から選択される、項目48に記載の方法。

(項目50)

前記促進剤はスルホン酸である、項目49に記載の方法。

(項目51)

前記酸はリン酸である、項目48に記載の方法。

(項目52)

前記酸は硫酸である、項目48に記載の方法。

(項目53)

前記スルホン酸はメタンスルホン酸、エタンスルホン酸、p-トルエンスルホン酸およびトリフルオロメチルスルホン酸 (trifluoromethyl sulfonic acid) からなる群から選択される、項目50に記載の方法。

(項目54)

前記試薬と前記トリアミン化合物との反応から生成された粗生成物を強塩基で処理するステップをさらに含む、項目48に記載の方法。

(項目55)

前記強塩基は金属アルコキシドである、項目54に記載の方法。

(項目56)

酸促進剤と試薬とのモル比は約2:1~約2:2である、項目48に記載の方法。

(項目57)

酸促進剤と試薬とのモル比は約1:1である、項目48に記載の方法。

(項目58)

トリアミン化合物と試薬とのモル比は約2:1~約2:2である、項目1に記載の方法。

(項目59)

トリアミン化合物と試薬とのモル比は約1:1である、項目58に記載の方法。

(項目60)

1,5,7-トリアザピシクロ[5.5.0]デセ-5-エン(TBD)を合成する方法であって、スルホン酸の存在下で炭酸 Guanidinium をビス(3-アミノプロピル)アミンと接触させるステップを含む方法。

(項目61)

前記接触させるステップは前記反応物の未希釈混合物を加熱するステップを含む、項目60に記載の方法。

(項目62)

前記混合物は約80~約180の温度に加熱される、項目61に記載の方法。

(項目63)

炭酸 Guanidinium と、ビス(3-アミノプロピル)アミンと、前記スルホン酸とのモル比は約1:1:1である、項目60に記載の方法。

(項目64)

前記スルホン酸はメタンスルホン酸を含む、項目60に記載の方法。

(項目65)

1,5,7-トリアザピシクロ[5.5.0]デセ-5-エン(TBD)を合成する方法であって、スルホン酸の存在下でテトラメチル Guanidinium をビス(3-アミノプロピル)アミンと接触させるステップを含む方法。

(項目66)

前記接触させるステップは前記反応物の未希釈混合物を加熱するステップを含む、項目65に記載の方法。

(項目67)

前記混合物は約 80 ~ 約 180 の温度に加熱される、項目 66 に記載の方法。

(項目 68)

炭酸 Guanidine と、ビス(3-アミノプロピル)アミンと、前記スルホン酸とのモル比は約 1 : 1 : 1 である、項目 65 に記載の方法。

(項目 69)

前記スルホン酸はメタンスルホン酸を含む、項目 65 に記載の方法。

【**手続補正 3**】

【**補正対象書類名**】**図面**

【**補正対象項目名**】**図 1**

【**補正方法**】**変更**

【**補正の内容**】

【 図 1 】

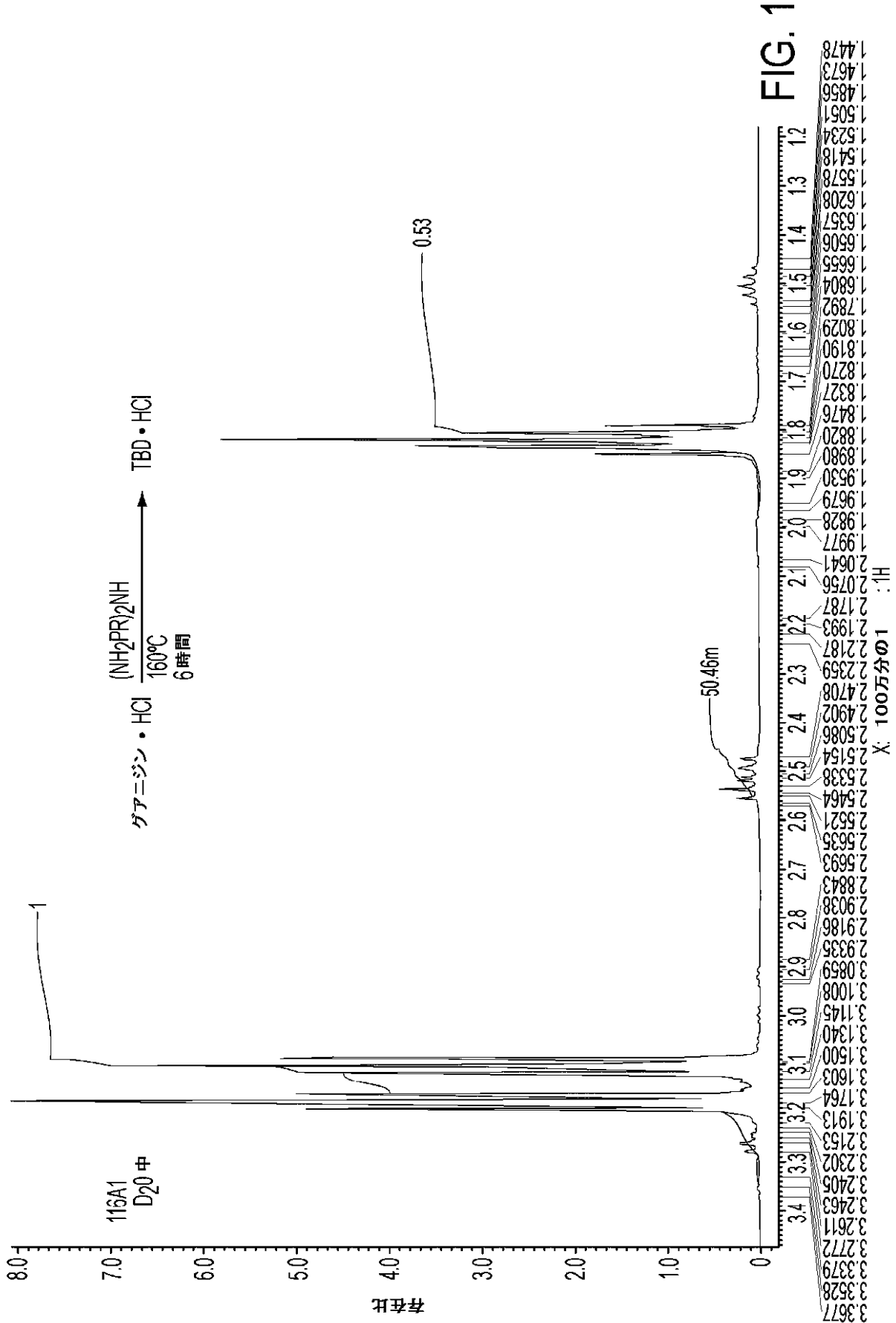


FIG. 1