(12) NACH DEM VERTRAG ÜBER DIE INTERNATIONALE ZUSAMMENARBEIT AUF DEM GEBIET DES PATENTWESENS (PCT) VERÖFFENTLICHTE INTERNATIONALE ANMELDUNG

(19) Weltorganisation für geistiges Eigentum
Internationales Büro

(43) Internationales Veröffentlichungsdatum
24. April 2014 (24.04.2014)

WIPO | PCT

(10) Internationale Veröffentlichungsnummer
WO 2014/060253 A1

(51) Internationale Patentklassifikation:
C07F 7/10 (2006.01) *C07F 9/40* (2006.01)
C07F 7/21 (2006.01) *C07B 47/00* (2006.01)
C07F 9/09 (2006.01) *C07B 61/00* (2006.01)

(21) Internationales Aktenzeichen: PCT/EP2013/071024

(22) Internationales Anmeldedatum:
9. Oktober 2013 (09.10.2013)

(25) Einreichungssprache: Deutsch

(26) Veröffentlichungssprache: Deutsch

(30) Angaben zur Priorität:
10 2012 218 940.8
17. Oktober 2012 (17.10.2012) DE

(71) Anmelder: **WACKER CHEMIE AG** [DE/DE]; Hanns-Seidel-Platz 4, 81737 München (DE).

(72) Erfinder: **LEHNERT, Robert**; Egon-Erwin-Kisch-Str. 17, 01069 Dresden (DE).

(74) Anwälte: **BUDCZINSKI, Angelika** et al.; Wacker Chemie AG, Hanns-Seidel-Platz 4, 81737 München (DE).

(81) Bestimmungsstaaten *(soweit nicht anders angegeben, für jede verfügbare nationale Schutzrechtsart)*: AE, AG, AL, AM, AO, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BH, BN, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CL, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DK, DM, DO, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, GT, HN, HR, HU, ID, IL, IN, IR, IS, JP, KE, KG, KN, KP, KR, KZ, LA, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LY, MA, MD, ME, MG, MK, MN, 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, SM, ST, SV, SY, TH, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, ZA, ZM, ZW.

(84) Bestimmungsstaaten *(soweit nicht anders angegeben, für jede verfügbare regionale Schutzrechtsart)*: ARIPO (BW, GH, GM, KE, LR, LS, MW, MZ, NA, RW, SD, SL, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), eurasisches (AM, AZ, BY, KG, KZ, RU, TJ, TM), europäisches (AL, AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HR, HU, IE, IS, IT, LT, LU, LV, MC, 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).

Veröffentlicht:

— *mit internationalem Recherchenbericht (Artikel 21 Absatz 3)*

WO 2014/060253 A1

(54) **Title**: MIXTURES BASED ON SILAZANES

(54) **Bezeichnung** : MISCHUNGEN AUF DER BASIS VON SILAZANEN

(57) **Abstract**: The invention relates to mixtures based on silazanes, preparable using (A) silazanes of the formula (I) $(R^1{}_3Si)_{3-a}NR_a$ and/or cyclosilazanes of the general formula (II) $[(R^1{}_2Si)NR]_x$ and (B) phosphorus compounds of the formula (III) $(R^3{}_3SiO)_{3-b-c}R^2{}_b(R^4O)_cP=O$, where the radicals and indices are each as defined in claim 1, and the production and use thereof.

(57) **Zusammenfassung**: Die Erfindung betrifft Mischungen auf der Basis von Silazanen herstellbar unter Verwendung von (A) Silazanen der Formel (I) $(R^1{}_3Si)_{3-a}NR_a$ und/oder Cyclosilazanen der allgemeinen Formel (II) $[(R^1{}_2Si)NR]_x$ und (B) Phosphorverbindungen der Formel (III) $(R^3{}_3SiO)_{3-b-c}R^2{}_b(R^4O)_cP=O$, wobei die Reste und Indizes die in Anspruch 1 angegebenen Bedeutungen haben, deren Herstellung sowie deren Verwendung.

Mischungen auf der Basis von Silazanen

Die Erfindung betrifft Mischungen auf der Basis von Silazanen, deren Herstellung sowie deren Verwendung, insbesondere in Verfahren zur Silylierung und Neutralisierung.

Silazanhaltige Mischungen sind bereits bekannt. Bei dem im Stand der Technik üblichen Silylierungsmittelgemisch aus Hexamethyldisilazan (HMDZ; [$(Me_3Si)_2NH$]) und Trimethylchorsilan (TMCS; [Me_3SiCl]) bildet sich bereits beim Mischen durch Feuchtigkeitsspuren bzw. OH-Spuren augenblicklich ein zum Teil stark störender Niederschlag. Das sich spontan bildende in organischen und siliciumorganischen Verbindungen unlösliche Ammoniumchlorid reagiert in Kontakt mit Wasser sauer. Die unlöslichen Verbindungen führen zu Verstopfungen. Entstehende Chloridionen bewirken eine Korrosion. Um entstehendes Ammoniumchlorid zu umgehen wird in DE-A 26 49 536 die Verwendung eines Gemisches aus HMDZ bzw. Silylamin mit Bis(Trimethylsilyl)sulfat zur Silylierung organischer Verbindungen vorgeschlagen.

Gegenstand der Erfindung sind Mischungen auf der Basis von Silazanen herstellbar unter Verwendung von
(A) Silazanen der Formel

$$(R^1_3Si)_{3-a}NR_a \qquad (I)$$

und/oder

Cyclosilazanen der allgemeinen Formel

$$[(R^1_2Si)NR]_x \qquad (II),$$

wobei

R gleich oder verschieden sein kann und die Bedeutung von Wasserstoffatom oder gegebenenfalls substituiertem Kohlenwasserstoffrest hat,
R^1 gleich oder verschieden sein kann und Wasserstoffatom oder SiC-gebundener, gegebenenfalls substituierter Kohlenwasserstoffrest bedeutet,
a gleich 0 oder 1 ist und
x gleich eine ganze Zahl von 3 bis 8, bevorzugt 3 bis 5, bedeutet,

und

(B) Phosphorverbindungen der Formel

$$(R^3{}_3SiO)_{3-b-c}R^2{}_b(R^4O)_cP{=}O \qquad (III),$$

wobei
R^2 die Bedeutung von Wasserstoffatom oder gegebenenfalls substituiertem Kohlenwasserstoffrest hat,
R^3 gleich oder verschieden sein kann und Wasserstoffatom oder SiC-gebundener, gegebenenfalls substituierter Kohlenwasserstoffrest oder Alkoxyrest bedeutet,
R^4 die Bedeutung von Wasserstoffatom oder gegebenenfalls substituiertem Kohlenwasserstoffrest hat,
b gleich 0, 1 oder 2, bevorzugt 0 oder 1, ist und
c gleich 0, 1 oder 2, bevorzugt 0 oder 1, ist, mit der Maßgabe, dass die Summe aus b+c 0, 1 oder 2, bevorzugt 0 oder 1, ist.

Beispiele für Kohlenwasserstoffreste R sind Alkylreste, wie der Methyl-, Ethyl-, n-Propyl-, iso-Propyl-, 1-n-Butyl-, 2-n-Butyl-, iso-Butyl-, tert.-Butyl-, n-Pentyl-, iso-Pentyl-, neo-Pentyl-, tert.-Pentylrest; Hexylreste, wie der n-Hexylrest; Heptylreste, wie der n-Heptylrest; Octylreste, wie der n-Octyl-

rest und iso-Octylreste, wie der 2,2,4-Trimethylpentylrest; Nonylreste, wie der n-Nonylrest; Decylreste, wie der n-Decylrest; Dodecylreste, wie der n-Dodecylrest; Octadecylreste, wie der n-Octadecylrest; Cycloalkylreste, wie der Cyclopentyl-, Cyclohexyl-, Cycloheptylrest und Methylcyclohexylreste; Alkenylreste, wie der Vinyl-, 1-Propenyl- und der 2-Propenylrest; Arylreste, wie der Phenyl-, Naphthyl-, Anthryl- und Phenanthrylrest; Alkarylreste, wie o-, m-, p-Tolylreste; Xylylreste und Ethylphenylreste; und Aralkylreste, wie der Benzylrest, der α- und der β-Phenylethylrest.

Beispiele für substituierte Reste R sind der Trifluorpropylrest, der Aminopropylrest, der Aminoethylaminopropylrest und der Glycidoxypropylrest.

Bevorzugt handelt es sich bei Rest R um Wasserstoffatom und gegebenenfalls mit Halogen-, Amino- oder Glycidoxyreste substituierte Kohlenwasserstoffreste mit 1 bis 18 Kohlenstoffatomen, besonders bevorzugt um Wasserstoffatom oder um Kohlenwasserstoffreste mit 1 bis 6 Kohlenstoffatomen, insbesondere um Wasserstoffatom oder um Kohlenwasserstoffreste mit 1 bis 2 Kohlenstoffatomen.

Beispiele für R^1 gleich gegebenenfalls substituierte Kohlenwasserstoffreste sind die oben für R angegebenen Beispiele.

Bevorzugt handelt es sich bei Rest R^1 um Wasserstoffatom oder SiC-gebundene Kohlenwasserstoffreste mit 1 bis 12 Kohlenstoffatomen, besonders bevorzugt um Kohlenwasserstoffreste mit 1 bis 8 Kohlenstoffatomen, insbesondere um den Methyl- und den Vinylrest.

In Formel (I) ist a vorzugsweise 1.

Bevorzugt handelt es sich bei den erfindungsgemäß eingesetzten Silazanen (A) um solche der Formel (I).

Beispiele für die erfindungsgemäß eingesetzten Silazane (A) sind $(Me_3Si)_2NH$, $(ViMe_2Si)_2NH$, $(Me_3Si)_3N$, $(HMe_2Si)_2NH$, $(PhMe_2Si)_2NH$, $(Me_3Si)_2NMe$ sowie $(Me_2SiNH)_3$ und $(Me_2SiNH)_4$, wobei $(Me_3Si)_2NH$, $(ViMe_2Si)_2NH$ und $(Me_3Si)_3N$ bevorzugt und $(Me_3Si)_2NH$ besonders bevorzugt sind, mit Me gleich Methylrest, Vi gleich Vinylrest und Ph gleich Phenylrest.

Bei der Silazan-Komponente (A) handelt es sich um handelsübliche Verbindungen bzw. können diese nach in der Chemie gängigen Methoden hergestellt werden.

Beispiele für R^2 gleich gegebenenfalls substituierte Kohlenwasserstoffreste sind die oben für R angegebenen Beispiele.

Bevorzugt handelt es sich bei Rest R^2 um Kohlenwasserstoffreste mit 1 bis 20 Kohlenstoffatomen, besonders bevorzugt um Kohlenwasserstoffreste mit 1 bis 12 Kohlenstoffatomen, insbesondere um Octylreste.

Beispiele für R^3 sind die oben für R^1 angegebenen Beispiele sowie Alkoxyreste, wie beispielsweise der Methoxy-, Ethoxyrest oder iso-Propylrest.

Bevorzugt handelt es sich bei Rest R^3 um Wasserstoffatom oder gegebenenfalls substituierte Kohlenwasserstoffreste mit 1 bis 12 Kohlenstoffatomen oder Alkoxyreste, besonders bevorzugt um Kohlenwasserstoffreste mit 1 bis 6 Kohlenstoffatomen und Alkoxyreste mit 1 bis 2 Kohlenstoffatomen, insbesondere um den Methyl-, Vinyl- und Methoxyrest.

Beispiele für R^4 gleich gegebenenfalls substituierte Kohlenwasserstoffreste sind die oben für R angegebenen Beispiele.

Bevorzugt handelt es sich bei Rest R^4 um Kohlenwasserstoffreste mit 1 bis 20 Kohlenstoffatomen, besonders bevorzugt um Octylreste.

Beispiele für die erfindungsgemäß eingesetzten Phosphorverbindungen (B) sind $(Me_3SiO)_3P=O$, $(Me_3SiO)_2(HO)P=O$, $(Me_3SiO)_2OctP=O$, $((MeO)_2MeSiO)_3P=O$, $((MeO)_2MeSiO)_2(OctO)P=O$, $((MeO)_2MeSiO)(OctO)_2P=O$, wobei $(Me_3SiO)_3P=O$, $(Me_3SiO)_2OctP=O$, $((MeO)_2MeSiO)_3P=O$ und $((MeO)_2MeSiO)_2(OctO)P=O$ bevorzugt und $(Me_3SiO)_3P=O$ und $((MeO)_2MeSiO)_2(OctO)P=O$ besonders bevorzugt sind, mit Me gleich Methylrest und Oct gleich Octylrest.

Bei den erfindungsgemäß eingesetzten Phosphorverbindungen (B) handelt es sich bevorzugt um solche mit einem Gehalt an OH-Gruppen von kleiner 1 Gew.-%, besonders bevorzugt von kleiner 0,1 Gew.-%.

Phosphorverbindungen (B) sind handelsübliche Verbindungen bzw. können sie nach in der Chemie gängigen Methoden hergestellt werden. Beispielsweise kann $((MeO)_2MeSiO)_2(OctO)P=O$ durch Umsetzung von Octylphosphorsäure mit $MeSi(OMe)_3$ im Überschuss und

Abdestillieren des entstandenen Methanols mit dem nicht reagierten Überschuss $MeSi(OMe)_3$ hergestellt werden.

Zusätzlich zu den Komponenten (A) und (B) können zur Herstellung der erfindungsgemäßen Mischungen weitere Stoffe eingesetzt werden, was jedoch nicht bevorzugt ist. Falls weitere Stoffe eingesetzt werden, weisen diese bevorzugt keine OH-Gruppen auf.

Die Herstellung der erfindungsgemäßen Mischungen erfolgt nach an sich bekannten Verfahren. Üblicherweise erfolgt die Herstellung durch einfaches Verrühren der Bestandteile.

Ein weiterer Gegenstand der vorliegenden Erfindung ist ein Verfahren zur Herstellung der erfindungsgemäßen Mischungen durch Verrühren der Bestandteile.

Das erfindungsgemäße Verfahren wird bei Temperaturen von vorzugsweise 1 bis 50 °C, besonders bevorzugt 20 bis 25 °C, durchgeführt.

Das erfindungsgemäße Verfahren wird vorzugsweise beim Druck der umgebenden Atmosphäre, also ca. 900 bis 1100 hPa, durchgeführt.

Das erfindungsgemäße Verfahren wird bevorzugt unter weitestgehendem Ausschluss von Luftfeuchtigkeit durchgeführt.

Besonders bevorzugt wird das erfindungsgemäße Verfahren in Anwesenheit von maximal 0,1 Gew.-% Wasser, bezogen auf das Ge-

samtgewicht der erfindungsgemäßen Zusammensetzung, durchgeführt.

Bei dem erfindungsgemäßen Verfahren werden Komponente (A) zu Komponente (B) in einem Molverhältnis von bevorzugt 10:1 bis 1:10, besonders bevorzugt von 1:2 bis 2:1, eingesetzt.

Bei den im erfindungsgemäßen Verfahren eingesetzten Komponenten kann es sich jeweils um eine Art einer solchen Komponente wie auch um ein Gemisch aus mindestens zwei Arten einer jeweiligen Komponente handeln.

Die erfindungsgemäßen Mischungen sind bevorzugt klare Flüssigkeiten.

Die erfindungsgemäßen Mischungen können nun außer den eingesetzten Komponenten auch noch Reaktionsprodukte von (A) und (B) sowie gegebenenfalls mit Luftfeuchte enthalten, wie z.B. Siloxane.

Die erfindungsgemäßen Mischungen können nun für alle Zwecke eingesetzt werden, für die auch bisher silazanhaltige Zusammensetzungen bzw. schwerlösliche Ammoniumhydrogenphosphate eingesetzt wurden.

Bevorzugt werden die erfindungsgemäßen Mischungen in Verfahren zur Silylierung, vorzugsweise equimolar oder im Überschuss in Bezug auf die zu silylierende Verbindung sowie in Verfahren zur Neutralisierung, vorzugsweise im Unterschuss bezogen auf die zu neutralisierende Verbindung, eingesetzt.

Ein weiterer Gegenstand der Erfindung ist ein Verfahren zur Silylierung von Verbindungen mit mindestens einem aktiven Was-

serstoffatom, dadurch gekennzeichnet, dass die erfindungsgemäße Mischung eingesetzt wird.

Beispiele für Verbindungen mit mindestens einem aktiven Wasserstoffatom sind n-Butanol und Benzoesäure.

Die Bedingungen der erfindungsgemäßen Silylierung können die gleichen sein wie in den bisher bekannten Silylierungsverfahren beschrieben. Hierzu sei beispielsweise auf DE-A 26 49 536, insbesondere auf Beispiele 2 und 3, verwiesen, die zum Offenbarungsgehalt der vorliegenden Erfindung zu zählen ist.

Ein weiterer Gegenstand der Erfindung ist ein Verfahren zum Abpuffern von Säure- oder Basespuren in organischen oder siliciumorganischen Zusammensetzungen, dadurch gekennzeichnet, dass die erfindungsgemäße Mischung, bevorzugt im Unterschuss, eingesetzt wird.

Beispiele für Zusammensetzungen, die erfindungsgemäß abgepuffert werden können, sind Alkylalkoxysilane, Siloxanharzmischungen und Siliconöle. Bevorzugt werden zwischen 0,1 und 0,001 Gewichtsteile der erfindungsgemäßen Zusammensetzungen pro 100 Gewichtsteile der abzupuffernden Substanz, z.B. Glycidoxypropyltrimethoxysilan, zugesetzt.

Bei der erfindungsgemäßen Abpufferung werden bevorzugt erfindungsgemäße Mischungen eingesetzt, bei denen das Mol-Verhältnis von (A) zu (B) im Bereich von 1,4:1 bis 1,6:1 liegt.

Die erfindungsgemäßen Mischungen haben den Vorteil, dass sie lagerstabil sind und über einen längeren Zeitraum eine klare Flüssigkeit bleiben, auch bei Zutritt von Luftfeuchtigkeit bei der Entnahme von Anteilen.

Die erfindungsgemäßen Mischungen haben ferner den Vorteil, dass bei deren Einsatz weder Chlorid- noch Sulfationen entstehen.

Ein weiterer Vorteil besteht darin, dass bei der Anwendung in Anwesenheit von Wasser bzw. OH-Gruppen sich erst nach gewisser Zeit, wie z. B. nach mindestens 30 Sekunden, ein in organischem Medium schlecht lösliches Ammoniumhydrogenphosphat bildet. Diese Zeit reicht im Allgemeinen aus um eine homogene Mischung zu erzielen ohne dass sich an der Dosierstelle, an der Konzentrationsgradienten unvermeidbar sind, schon unlösliche Reaktionsprodukte bilden.

Des Weiteren haben die erfindungsgemäßen Mischungen den Vorteil, dass sie als ausgezeichnet handhabbares Silylierungsmittel mit variabel einstellbaren Eigenschaften eingesetzt werden können.

Außerdem bewirkt die erfindungsgemäße Mischung schon in geringen Mengen zu organischen bzw. siliciumorganischen Substanzen zugesetzt eine optimale Neutralisation von sowohl Säure als auch Base, was sehr vorteilhaft ist.

Die erfindungsgemäßen Mischungen haben den Vorteil, dass sie kostengünstig herstellbar sind.

Die erfindungsgemäßen Mischungen haben den Vorteil, dass sie einfach in der Handhabung sind.

Das Verfahren zur Herstellung der erfindungsgemäßen Mischungen hat den Vorteil, dass es einfach in der Durchführung ist.

In den nachfolgenden Beispielen beziehen sich alle Angaben von Teilen und Prozentsätzen, soweit nicht anders angegeben, auf das Gewicht. Sofern nicht anders angegeben, werden die folgenden Beispiele bei einem Druck der umgebenden Atmosphäre, also bei etwa 1000 hPa, und bei Raumtemperatur, also etwa 20 °C bzw. einer Temperatur, die sich beim Zusammengeben der Reaktanden bei Raumtemperatur ohne zusätzliche Heizung oder Kühlung einstellt, durchgeführt. Alle in den Beispielen angeführten Viskositätsangaben sollen sich auf eine Temperatur von 25 °C beziehen.

In den Beispielen werden die folgenden Abkürzungen verwendet:
Me: Methyltrest
Vi: Vinylrest

Vergleichsbeispiel 1

16 ml $(ViMe_2Si)_2NH$ werden mit 10 ml $ViMe_2SiCl$ gemischt. Das Gemisch wird sofort trüb. Kann so zur Silylierung eingesetzt werden, führt aber an engen Dosierstellen zu Verstopfungen.

Beispiel 1

31 ml Hexamethyldisilazan $(Me_3Si)_2NH$ werden mit 33 ml (Tris-(trimethylsilyl)phosphat (TTP; $(Me_3SiO)_3P=O$) gemischt. Das Silylierungsgemisch ist auch nach einem Monat noch eine klare Lösung und kann problemlos durch Kanülen dosiert werden.

Beispiel 2

5,5 g Cyclosilazan, bestehend aus 70 Mol-% $(Me_2SiNH)_3$ und 30 Mol-% $(Me_2SiNH)_4$, werden mit 21 g 2-Ethylhexylphosphorsäuresilylester, bestehend aus 50 Mol-% $((MeO)_2MeSiO)_2(OctO)P=O$ und 50 Mol-% $((MeO)_2MeSiO)(OctO)_2P=O$ gemischt. Das so erhaltene Gemisch ist auch nach einem Monat noch eine klare Lösung und kann problemlos durch Kanülen dosiert werden.

Beispiel 3

In einem 10 mm NMR-Röhrchen werden in 2 ml Deuterochloroform 0,5 ml n-Butanol mit 1 ml der nach Beispiel 1 hergestellten Flüssigkeit versetzt. Der Inhalt erwärmt sich ca. 10 Sekunden nach dem Mischen und kühlt sich dann auf Raumtemperatur ab. Der silylierte Alkohol wird über 29-Si-NMR nachgewiesen. Durch die nicht zu heftige Erwärmung bei der Umsetzung lässt sich diese auch in Gegenwart niedrigsiedender Lösungsmittel durchführen, wie z. B. in Deuterochloroform.

Patentansprüche

1. Mischungen auf der Basis von Silazanen herstellbar unter Verwendung von

(A) Silazanen der Formel

$$(R^1_3Si)_{3-a}NR_a \qquad (I)$$

und/oder

Cyclosilazanen der allgemeinen Formel

$$[(R^1_2Si)NR]_x \qquad (II),$$

wobei
R gleich oder verschieden sein kann und die Bedeutung von Wasserstoffatom oder gegebenenfalls substituiertem Kohlenwasserstoffrest hat,
R^1 gleich oder verschieden sein kann und Wasserstoffatom oder SiC-gebundener, gegebenenfalls substituierter Kohlenwasserstoffrest bedeutet,
a gleich 0 oder 1 ist und
x gleich eine ganze Zahl von 3 bis 8 bedeutet,

und

(B) Phosphorverbindungen der Formel

$$(R^3_3SiO)_{3-b-c}R^2_b(R^4O)_cP=O \qquad (III),$$

wobei
R^2 die Bedeutung von Wasserstoffatom oder gegebenenfalls substituiertem Kohlenwasserstoffrest hat,

R^3 gleich oder verschieden sein kann und Wasserstoffatom oder SiC-gebundener, gegebenenfalls substituierter Kohlenwasserstoffrest oder Alkoxyrest bedeutet,
R^4 die Bedeutung von Wasserstoffatom oder gegebenenfalls substituiertem Kohlenwasserstoffrest hat,
b gleich 0, 1 oder 2 ist und
c gleich 0, 1 oder 2 ist, mit der Maßgabe, dass die Summe aus b+c 0, 1 oder 2 ist.

2. Mischungen gemäß Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, dass a gleich 1 ist.

3. Mischungen gemäß Anspruch 1 oder 2, dadurch gekennzeichnet, dass es sich bei Komponente (A) um $(Me_3Si)_2NH$, $(ViMe_2Si)_2NH$, $(Me_3Si)_3N$, $(HMe_2Si)_2NH$, $(PhMe_2Si)_2NH$, $(Me_3Si)_2NMe$ sowie $(Me_2SiNH)_3$ und $(Me_2SiNH)_4$ mit Me gleich Methylrest, Vi gleich Vinylrest und Ph gleich Phenylrest handelt.

4. Mischungen gemäß einem oder mehreren der Ansprüche 1 bis 3, dadurch gekennzeichnet, dass es sich bei Komponente (A) um $(Me_3Si)_2NH$, $(ViMe_2Si)_2NH$ und $(Me_3Si)_3N$ handelt mit Me gleich Methylrest und Vi gleich Vinylrest.

5. Mischungen gemäß einem oder mehreren der Ansprüche 1 bis 4, dadurch gekennzeichnet, dass es sich bei Komponente (B) um $(Me_3SiO)_3P=O$, $(Me_3SiO)_2OctP=O$, $((MeO)_2MeSiO)_3P=O$ und $((MeO)_2MeSiO)_2(OctO)P=O$ handelt mit Me gleich Methylrest und Oct gleich Octylrest.

6. Verfahren zur Herstellung der Mischungen gemäß einem oder mehreren der Ansprüche 1 bis 5 durch Verrühren der Bestandteile.

7. Verfahren zur Silylierung von Verbindungen mit mindestens einem aktiven Wasserstoffatom, dadurch gekennzeichnet, dass die Mischung gemäß einem oder mehreren der Ansprüche 1 bis 5 oder hergestellt nach Anspruch 6 eingesetzt wird.

8. Verfahren zum Abpuffern von Säure- oder Basespuren in organischen oder siliciumorganischen Zusammensetzungen, dadurch gekennzeichnet, dass die Mischung gemäß einem oder mehreren der Ansprüche 1 bis 5 oder hergestellt nach Anspruch 6 eingesetzt wird.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No
PCT/EP2013/071024

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER
INV. C07F7/10 C07F7/21 C07F9/09 C07F9/40 C07B47/00
C07B61/00
ADD.
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)
C07F C07B

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)
EPO-Internal, CHEM ABS Data, WPI Data

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	EP 0 524 507 A1 (BAYER AG [DE]) 27 January 1993 (1993-01-27) examples 3-5; table 2 -----	1-8
X	FR 2 433 509 A1 (SHELUDYAKOV VIKTOR SHELUDYAKOV VIKTOR [SU]) 14 March 1980 (1980-03-14) claim 1 table 2 Eintrag I8 ----- -/--	1-8

[X] Further documents are listed in the continuation of Box C.

[X] 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

"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	Date of mailing of the international search report
2 January 2014	20/01/2014

Name and mailing address of the ISA/	Authorized officer
European Patent Office, P.B. 5818 Patentlaan 2 NL - 2280 HV Rijswijk Tel. (+31-70) 340-2040, Fax: (+31-70) 340-3016	Eberhard, Michael

1

C(Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	DATABASE CA [Online] CHEMICAL ABSTRACTS SERVICE, COLUMBUS, OHIO, US; JIANG, LING ET AL: "Nonaqueous electrolyte for lithium secondary battery capable of improving high-voltage cycle performance and electrolyte storage performance of lithium ion battery", XP002718105, retrieved from STN Database accession no. 2011:1554125 abstract & CN 102 263 292 A (JIUJIANG TINCI MATERIALS TECHNOLOGY CO., LTD., PEOP. REP. CHINA) 30 November 2011 (2011-11-30) -----	1-6,8
X	KURT ; ISSLEIB: "Synthese von 1-Amino-alkanphosphonsaeuren via Mono- und Bis(trimethylsilyl)phosphit", ZEITSCHRIFT FUER CHEMIE, vol. 23, no. 12, 1 January 1983 (1983-01-01), pages 434-436, XP055094076, the whole document -----	1-4,6-8
X	MIKHAIL V ; LIVANTSOV: "Synthesis of new functionalized mono- and bisorganophosphorus acids and their derivatives with unsaturated and aromatic fragments", HETEROATOM CHEMISTRY, vol. 23, no. 1, 9 August 2011 (2011-08-09), pages 32-40, XP055094088, the whole document & ANDREY A. PRISHCHENKO ET AL: "Synthesis of new functionalized mono- and bisorganophosphorus acids and their derivatives with unsaturated and aromatic fragments", HETEROATOM CHEMISTRY, vol. 23, no. 1, 9 August 2011 (2011-08-09), pages 32-40, XP055094081, ISSN: 1042-7163, DOI: 10.1002/hc.20749 -----	1-4,6-8

1

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

Information on patent family members

International application No
PCT/EP2013/071024

Patent document cited in search report	Publication date	Patent family member(s)	Publication date
EP 0524507 A1	27-01-1993	AT 119877 T	15-04-1995
		BR 9202828 A	23-03-1993
		CA 2074226 A1	24-01-1993
		DE 4124318 A1	28-01-1993
		EP 0524507 A1	27-01-1993
		ES 2069939 T3	16-05-1995
		JP 3199853 B2	20-08-2001
		JP H05194353 A	03-08-1993
		US 5386054 A	31-01-1995
FR 2433509 A1	14-03-1980	NONE	

INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

Internationales Aktenzeichen
PCT/EP2013/071024

A. KLASSIFIZIERUNG DES ANMELDUNGSGEGENSTANDES
INV. C07F7/10 C07F7/21 C07F9/09 C07F9/40 C07B47/00
C07B61/00
ADD.
Nach der Internationalen Patentklassifikation (IPC) oder nach der nationalen Klassifikation und der IPC

B. RECHERCHIERTE GEBIETE

Recherchierter Mindestprüfstoff (Klassifikationssystem und Klassifikationssymbole)
C07F C07B

Recherchierte, aber nicht zum Mindestprüfstoff gehörende Veröffentlichungen, soweit diese unter die recherchierten Gebiete fallen

Während der internationalen Recherche konsultierte elektronische Datenbank (Name der Datenbank und evtl. verwendete Suchbegriffe)
EPO-Internal, CHEM ABS Data, WPI Data

C. ALS WESENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN

Kategorie*	Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommenden Teile	Betr. Anspruch Nr.
X	EP 0 524 507 A1 (BAYER AG [DE]) 27. Januar 1993 (1993-01-27) Beispiele 3-5; Tabelle 2 -----	1-8
X	FR 2 433 509 A1 (SHELUDYAKOV VIKTOR SHELUDYAKOV VIKTOR [SU]) 14. März 1980 (1980-03-14) Anspruch 1 Tabelle 2 Eintrag I8 ----- -/--	1-8

[X] Weitere Veröffentlichungen sind der Fortsetzung von Feld C zu entnehmen [X] Siehe Anhang Patentfamilie

* Besondere Kategorien von angegebenen Veröffentlichungen :
"A" Veröffentlichung, die den allgemeinen Stand der Technik definiert, aber nicht als besonders bedeutsam anzusehen ist
"E" frühere Anmeldung oder Patent, die bzw. das jedoch erst am oder nach dem internationalen Anmeldedatum veröffentlicht worden ist
"L" Veröffentlichung, die geeignet ist, einen Prioritätsanspruch zweifelhaft erscheinen zu lassen, oder durch die das Veröffentlichungsdatum einer anderen im Recherchenbericht genannten Veröffentlichung belegt werden soll oder die aus einem anderen besonderen Grund angegeben ist (wie ausgeführt)
"O" Veröffentlichung, die sich auf eine mündliche Offenbarung, eine Benutzung, eine Ausstellung oder andere Maßnahmen bezieht
"P" Veröffentlichung, die vor dem internationalen Anmeldedatum, aber nach dem beanspruchten Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist
"T" Spätere Veröffentlichung, die nach dem internationalen Anmeldedatum oder dem Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist und mit der Anmeldung nicht kollidiert, sondern nur zum Verständnis des der Erfindung zugrundeliegenden Prinzips oder der ihr zugrundeliegenden Theorie angegeben ist
"X" Veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung kann allein aufgrund dieser Veröffentlichung nicht als neu oder auf erfinderischer Tätigkeit beruhend betrachtet werden
"Y" Veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung kann nicht als auf erfinderischer Tätigkeit beruhend betrachtet werden, wenn die Veröffentlichung mit einer oder mehreren Veröffentlichungen dieser Kategorie in Verbindung gebracht wird und diese Verbindung für einen Fachmann naheliegend ist
"&" Veröffentlichung, die Mitglied derselben Patentfamilie ist

Datum des Abschlusses der internationalen Recherche	Absendedatum des internationalen Recherchenberichts
2. Januar 2014	20/01/2014

Name und Postanschrift der Internationalen Recherchenbehörde	Bevollmächtigter Bediensteter
Europäisches Patentamt, P.B. 5818 Patentlaan 2 NL - 2280 HV Rijswijk Tel. (+31-70) 340-2040, Fax: (+31-70) 340-3016	Eberhard, Michael

1

C. (Fortsetzung) ALS WESENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN

Kategorie*	Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommenden Teile	Betr. Anspruch Nr.
X	DATABASE CA [Online] CHEMICAL ABSTRACTS SERVICE, COLUMBUS, OHIO, US; JIANG, LING ET AL: "Nonaqueous electrolyte for lithium secondary battery capable of improving high-voltage cycle performance and electrolyte storage performance of lithium ion battery", XP002718105, gefunden im STN Database accession no. 2011:1554125 Zusammenfassung & CN 102 263 292 A (JIUJIANG TINCI MATERIALS TECHNOLOGY CO., LTD., PEOP. REP. CHINA) 30. November 2011 (2011-11-30) -----	1-6,8
X	KURT ; ISSLEIB: "Synthese von 1-Amino-alkanphosphonsaeuren via Mono- und Bis(trimethylsilyl)phosphit", ZEITSCHRIFT FUER CHEMIE, Bd. 23, Nr. 12, 1. Januar 1983 (1983-01-01), Seiten 434-436, XP055094076, das ganze Dokument -----	1-4,6-8
X	MIKHAIL V ; LIVANTSOV: "Synthesis of new functionalized mono- and bisorganophosphorus acids and their derivatives with unsaturated and aromatic fragments", HETEROATOM CHEMISTRY, Bd. 23, Nr. 1, 9. August 2011 (2011-08-09), Seiten 32-40, XP055094088, das ganze Dokument & ANDREY A. PRISHCHENKO ET AL: "Synthesis of new functionalized mono- and bisorganophosphorus acids and their derivatives with unsaturated and aromatic fragments", HETEROATOM CHEMISTRY, Bd. 23, Nr. 1, 9. August 2011 (2011-08-09), Seiten 32-40, XP055094081, ISSN: 1042-7163, DOI: 10.1002/hc.20749 -----	1-4,6-8

1

INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

Angaben zu Veröffentlichungen, die zur selben Patentfamilie gehören

Internationales Aktenzeichen
PCT/EP2013/071024

Im Recherchenbericht angeführtes Patentdokument	Datum der Veröffentlichung	Mitglied(er) der Patentfamilie	Datum der Veröffentlichung
EP 0524507 A1	27-01-1993	AT 119877 T	15-04-1995
		BR 9202828 A	23-03-1993
		CA 2074226 A1	24-01-1993
		DE 4124318 A1	28-01-1993
		EP 0524507 A1	27-01-1993
		ES 2069939 T3	16-05-1995
		JP 3199853 B2	20-08-2001
		JP H05194353 A	03-08-1993
		US 5386054 A	31-01-1995
FR 2433509 A1	14-03-1980	KEINE	