

(12) 特許協力条約に基づいて公開された国際出願

(19) 世界知的所有権機関
国際事務局

(43) 国際公開日
2024年9月26日(26.09.2024)



(10) 国際公開番号

WO 2024/195684 A1

(51) 国際特許分類:
C07C 17/395 (2006.01) C07C 19/16 (2006.01)

(21) 国際出願番号: PCT/JP2024/010010

(22) 国際出願日: 2024年3月14日(14.03.2024)

(25) 国際出願の言語: 日本語

(26) 国際公開の言語: 日本語

(30) 優先権データ:
特願 2023-043381 2023年3月17日(17.03.2023) JP

(71) 出願人: ダイキン工業株式会社 (DAIKIN INDUSTRIES, LTD.) [JP/JP]; 〒5300001 大阪府大阪市北区梅田一丁目13番1号 大阪梅田ツインタワーズ・サウス Osaka (JP).

(72) 発明者: 市原 一義 (ICHIHARA, Kazuyoshi); 〒5300001 大阪府大阪市北区梅田一丁目13番1号 大阪梅田ツインタワーズ・サウス ダイキン工業株式会社内 Osaka (JP). 安原 尚史 (YASUHARA, Takashi); 〒5300001 大阪府大阪市北区梅田一丁目13番1号 大阪梅田ツインタワーズ・サウス ダイキン工業株式会社内 Osaka (JP).

(74) 代理人: 弁理士法人とこしえ特許事務所 (TOKOSHIE PATENT FIRM); 〒1600023 東京都新宿区西新宿7丁目22番27号 西新宿KNビル Tokyo (JP).

(81) 指定国(表示のない限り、全ての種類の国内保護が可能): AE, AG, AL, AM, AO, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BH, BN, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CL, CN, CO, CR, CU, CV, CZ, DE, DJ, DK, DM, DO, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, GT, HN, HR, HU, ID, IL, IN, IQ, IR, IS, IT, JM, JO, JP, KE, KG, KH, KN, KP, KR, KW, KZ, LA, LC, LK, LR, LS, LU, LY, MA, MD, MG, MK, MN, MU, 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, ST, SV, SY, TH, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, WS, ZA, ZM, ZW.

(84) 指定国(表示のない限り、全ての種類の広域保護が可能): ARIPO (BW, CV, GH, GM, KE, LR, LS, MW, MZ, NA, RW, SC, SD, SL, ST, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), ユーラシア (AM, AZ, BY, KG, KZ, RU, TJ, TM), ヨーロッパ (AL, AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HR, HU, IE, IS, IT, LT, LU, LV, MC, ME, 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).

添付公開書類:

一 国際調査報告 (条約第21条(3))

(54) Title: METHOD FOR PRODUCING DIIODIDE, AND COMPOSITION CONTAINING DIIODIDE

(54) 発明の名称: ジアイオダイドの製造方法およびジアイオダイドを含有する組成物

(57) Abstract: The present invention provides a method for producing a diiodide by mixing: a crude composition containing at least one component selected from the group consisting of a diiodide represented by the formula $I(CF_2CF_2)_nI$ (in the formula, n is an integer of 1 or more), an ether represented by the formula $I(CF_2CF_2)_mOR^1$ (in the formula, m is an integer of 1 or more, and R^1 is an organic group) and an ester represented by the formula ICF_2COOR^2 (in the formula, R^2 is an organic group); a hydroxide represented by the formula $M(OH)_p$ (in the formula, p is 1 or 2, and M is an alkali metal or an alkaline earth metal); and an aqueous solution that contains water. As a result of the foregoing, a mixture is prepared. The mixture is separated into a phase that contains the diiodide and a phase that contains water, and the phase that contains the diiodide is recovered.

(57) 要約: ジアイオダイドの製造方法であって、 $I(CF_2CF_2)_nI$ (式中、nは1以上の整数) で示されるジアイオダイド、ならびに、 $I(CF_2CF_2)_mOR^1$ (式中、mは1以上の整数、 R^1 は有機基) で示されるエーテル、および、 ICF_2COOR^2 (式中、 R^2 は有機基) で示されるエステルからなる群より選択される少なくとも1種を含有する粗組成物と、 $M(OH)_p$ (式中、pは1または2、Mはアルカリ金属またはアルカリ土類金属) で示される水酸化物、および、水を含有する水溶液と、を混合することにより混合物を調製し、前記混合物を、前記ジアイオダイドを含有する相と、水を含有する相とに分離させ、前記ジアイオダイドを含有する相を回収する製造方法を提供する。



WO 2024/195684 A1

明 細 書

発明の名称：

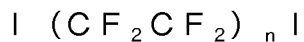
ジアイオダイドの製造方法およびジアイオダイドを含有する組成物

技術分野

[0001] 本開示は、ジアイオダイドの製造方法およびジアイオダイドを含有する組成物に関する。

背景技術

[0002] 特許文献1には、触媒量の遊離ラジカル触媒の存在下に1, 2-ジヨードテトラフルオロエチレンとテトラフルオロエチレンとを反応させて次式



(式中、nは2～10である)のテロマー性生成物を形成させ、このテロマー性生成物を反応混合物から吸収することを特徴とするアルファ-オメガ-ジヨード化フッ化アルカン類の製法が記載されている。

先行技術文献

特許文献

[0003] 特許文献1：特開昭47-2573号公報

発明の概要

発明が解決しようとする課題

[0004] 本開示では、高純度ジアイオダイドを製造する製造方法を提供することを目的とする。

課題を解決するための手段

[0005] 本開示によれば、ジアイオダイドの製造方法であって、

一般式(1-1)： $\text{I}(\text{CF}_2\text{CF}_2)_n\text{I}$ (式中、nは1以上の整数)

で示されるジアイオダイド、ならびに、

一般式(1-2)： $\text{I}(\text{CF}_2\text{CF}_2)_m\text{OR}^1$ (式中、mは1以上の整数、

R¹は有機基)で示されるエーテル、および、

一般式（１－３）： $\text{ICF}_2\text{COOR}^2$ （式中、 R^2 は有機基）で示されるエステル

からなる群より選択される少なくとも１種

を含有する粗組成物と、

一般式（２－１）： $\text{M}(\text{OH})_p$ （式中、 p は１または２、 M はアルカリ金属またはアルカリ土類金属）で示される水酸化物、および、水を含有する水溶液と、

を混合することにより混合物を調製し、

前記混合物を、前記ジアイオダイドを含有する相と、水を含有する相とに分離させ、前記ジアイオダイドを含有する相を回収する製造方法が提供される。

発明の効果

[0006] 本開示によれば、高純度ジアイオダイドを製造する製造方法を提供することができる。

発明を実施するための形態

[0007] 以下、本開示の具体的な実施形態について詳細に説明するが、本開示は、以下の実施形態に限定されるものではない。

[0008] 特許文献１では、１，２－ジヨードテトラフルオロエチレンをテロゲンとし、テトラフルオロエチレンをタクソゲンとするテロメリゼーション反応により、テロマー性生成物を形成させるアルファ－オメガ－ジヨード化フッ化アルカン類の製造方法が提案されている。また、特許文献１には、テロマーは希望ならば減圧におけるテロマー混合物の分別蒸留により分離されることが記載されている。

[0009] しかしながら、このような従来の製造方法で生成したテロマー性生成物を分別蒸留して、テロマー（ジアイオダイド）を分離して回収しようとした場合、各テロマーを十分な収率で回収できない問題がある。

[0010] そこで、この問題の原因を鋭意検討したところ、テロメリゼーション反応によって、ジアイオダイドに加えて、エーテルまたはエステルが生成してい

ること、しかも、生成した反応生成物中のエーテルまたはエステルが、分別蒸留によるジアイオダイドの分離を妨げていることが、収率が向上しない原因であることが見出された。さらに、この問題の解決手段についても鋭意検討したところ、テロメリゼーション反応によって生成するエーテルまたはエステルを、反応生成物から除去する手段が見いだされるとともに、エーテルまたはエステルを除去した反応生成物を分別蒸留することによって、炭素数の異なるジアイオダイドを分離して、各々のジアイオダイドを高収率で回収できることが見出された。

[0011] すなわち、本開示によれば、ジアイオダイドの製造方法であって、

一般式 (1-1) : $I(CF_2CF_2)_nI$ (式中、 n は 1 以上の整数) で示されるジアイオダイドと、

一般式 (1-2) : $I(CF_2CF_2)_mOR^1$ (式中、 m は 1 以上の整数、 R^1 は有機基) で示されるエーテル、および、一般式 (1-3) : ICF_2COOR^2 (式中、 R^2 は有機基) で示されるエステルからなる群より選択される少なくとも 1 種と、

を含有する粗組成物と、

一般式 (2-1) : $M(OH)_p$ (式中、 p は 1 または 2、 M はアルカリ金属またはアルカリ土類金属) で示される水酸化物、および、水を含有する水溶液と、

を混合することにより混合物を調製し、

前記混合物を、前記ジアイオダイドを含有する相と、水を含有する相とに分離させ、前記ジアイオダイドを含有する相を回収する製造方法が提供される。

[0012] 本開示の製造方法によれば、ジアイオダイドを含有する粗組成物中のエーテルまたはエステルを、該粗組成物から分離することができ、ジアイオダイドを高純度で含有する組成物を高収率で回収することができる。さらには、ジアイオダイドを高純度で含有する組成物を、分別蒸留、水蒸気蒸留などの方法により蒸留することによって、目的とする n 数を有するジアイオダイド

を高収率で分離回収することができる。

[0013] 以下に、本開示の製造方法について、さらに詳細に説明する。

[0014] 本開示は、ジアイオダイドを高純度で含有する組成物の製造方法に関する。本開示の製造方法は、ジアイオダイド、ならびに、エーテルおよびエステルからなる群より選択される少なくとも1種を含有する粗組成物と、水酸化物および水を含有する水溶液とを混合して混合物を調製し、得られる混合物を2相に分離させ、ジアイオダイドを高純度で含有する相を回収する。

[0015] 一実施形態において、粗組成物は、1, 2-ジヨードテトラフルオロエチレンをテロゲンとし、テトラフルオロエチレンをタクソゲンとするテロメリゼーション反応により、調製される。このテロメリゼーション反応により、一般式(1-1)で示されるジアイオダイドに加えて、一般式(1-2)で示されるエーテル、あるいは、一般式(1-3)で示されるエステルを含有する粗組成物が生成する。粗組成物と水酸化物を含有する水溶液とを混合すると、粗組成物中のエーテルおよびエステルが水酸化物と反応して分解される。一方で、ジアイオダイドは分解されることなく混合物中に維持される。得られる混合物を静置すると、ジアイオダイドを主成分として含有する相と、水または水酸化物を主成分として含有する相との2相に分離する。ジアイオダイドを主成分として含有する相を回収することにより、ジアイオダイドを高純度で含有する組成物を製造することができる。

[0016] すなわち、

一般式(1-1)： $\text{I}(\text{CF}_2\text{CF}_2)_n\text{I}$ (式中、 n は1以上の整数)で示されるジアイオダイドと、

一般式(1-2)： $\text{I}(\text{CF}_2\text{CF}_2)_m\text{OR}^1$ (式中、 m は1以上の整数、 R^1 は有機基)で示されるエーテル、および、一般式(1-3)： $\text{ICF}_2\text{COOR}^2$ (式中、 R^2 は有機基)で示されるエステルからなる群より選択される少なくとも1種と、

を含有する組成物は、ジアイオダイドを高純度で含有する組成物を製造するための重要な原料である。

- [0017] 上記の粗組成物に含有されるジアイオダイドは、一般式 $(1-1) : I(CF_2CF_2)_nI$ (式中、 n は 1 以上の整数) で示される。 n は、1~20 の整数であってよく、1~10 の整数であってよく、1~8 の整数であってよい。一実施形態において、粗組成物は、 n が 1~8 の整数である一般式 $(1-1)$ で示されるジアイオダイドを少なくとも含有する。
- [0018] 一実施形態において、粗組成物は、 n が 1~8 の整数である一般式 $(1-1)$ で示されるジアイオダイドを含有し、なおかつ、 n が 9 以上の整数である一般式 $(1-1)$ で示されるジアイオダイドを含有する。
- [0019] 粗組成物は、一般式 $(1-1)$ で示されるジアイオダイドを少なくとも含有すればよく、たとえば、 n が任意の数値である一般式 $(1-1)$ で示されるジアイオダイドの 1 種のみを含有してもよい。しかしながら、粗組成物は、一般式 $(1-1)$ で示されるジアイオダイドであって、 n の数値が異なる 2 種以上のジアイオダイドを少なくとも含有することが好ましい。すなわち、粗組成物は、一般式 $(1-1)$ で示されるジアイオダイドであって、 n の数値が異なる 2 種以上のジアイオダイドを含有するジアイオダイド混合物であることが好ましい。
- [0020] 一実施形態において、粗組成物は、ジアイオダイドとして、 $I(CF_2CF_2)_1I$ 、 $I(CF_2CF_2)_2I$ および $I(CF_2CF_2)_3I$ を少なくとも含有する。一実施形態において、粗組成物は、 n が 1~8 である一般式 $(1-1)$ で示される 8 種類のジアイオダイドを少なくとも含有する。
- [0021] 粗組成物は、ジアイオダイドに加えて、一般式 $(1-2) : I(CF_2CF_2)_mOR^1$ (式中、 m は 1 以上の整数、 R^1 は有機基) で示されるエーテル、および、一般式 $(1-3) : ICF_2COOR^2$ (式中、 R^2 は有機基) で示されるエステルからなる群より選択される少なくとも 1 種をさらに含有する。
- [0022] 粗組成物は、
一般式 $(1-1)$ で示されるジアイオダイド、および、一般式 $(1-2)$ で示されるエーテルを含有する粗組成物、
一般式 $(1-1)$ で示されるジアイオダイド、および、一般式 $(1-$

3) で示されるエステルを含有する粗組成物、または、

一般式 (1-1) で示されるジアイオダイド、ならびに、一般式 (1-2) で示されるエーテルおよび一般式 (1-3) で示されるエステルを含有する粗組成物であってよい。

[0023] 粗組成物中の一般式 (1-2) で示されるエーテルおよび一般式 (1-3) で示されるエステルの合計含有量は、粗組成物の質量に対して、好ましくは 20.0 質量%以下であり、より好ましくは 10.0 質量%以下であり、下限は特に限定されないが、1.0 質量%以上であってよい。粗組成物中のエーテルおよびエステルの合計含有量は、ガスクロマトグラフィー分析により測定することができる。

[0024] 粗組成物中の一般式 (1-1) で示されるジアイオダイドの含有量は、粗組成物の質量に対して、好ましくは 80.0 質量%以上であり、より好ましくは 90.0%以上であり、好ましくは 99.0 質量%以下である。粗組成物中のジアイオダイドの含有量は、ガスクロマトグラフィー分析により測定することができる。

[0025] 一般式 (1-2) において、 m は 1 以上の整数である。 m は、2 以上の整数であってよく、20 以下の整数であってよく、10 以下の整数であってよく、8 以下の整数であってよく、5 以下の整数であってよい。一実施形態において、粗組成物は、 m が 2~5 の整数である一般式 (1-2) で示されるエーテルを少なくとも含有する。一実施形態において、粗組成物は、 m が 2~5 の整数である一般式 (1-2) で示されるエーテルを含有し、なおかつ、 m が 6 以上の整数である一般式 (1-2) で示されるジアイオダイドを含有する。

[0026] 一般式 (1-2) において、 R^1 は有機基である。 R^1 は、好ましくは炭化水素基であり、より好ましくはアルキル基またはアリール基である。炭化水素基およびアルキル基の炭素数は、好ましくは 1~30 であり、より好ましくは 1~15 であり、さらに好ましくは 1~4 である。アリール基としては

、好ましくはフェニル基である。R¹としては、たとえば、メチル基、エチル基、n-プロピル基、i-プロピル基、n-ブチル基、イソブチル基、s-ブチル基、t-ブチル基、フェニル基などが挙げられる。有機過酸化物を用いたテロメリゼーション反応により粗組成物を調製した場合、R¹は有機過酸化物に由来する炭化水素基により形成される。

[0027] 一般式(1-3)において、R²は有機基である。R²は、好ましくは炭化水素基であり、より好ましくはアルキル基またはアリール基である。炭化水素基およびアルキル基の炭素数は、好ましくは1~30であり、より好ましくは1~15であり、さらに好ましくは1~4である。アリール基としては、好ましくはフェニル基である。R²としては、たとえば、メチル基、エチル基、n-プロピル基、i-プロピル基、n-ブチル基、イソブチル基、s-ブチル基、t-ブチル基、フェニル基などが挙げられる。有機過酸化物を用いたテロメリゼーション反応により粗組成物を調製した場合、R²は有機過酸化物に由来する炭化水素基により形成される。

[0028] 一般式(1-2)におけるR¹と、一般式(1-3)におけるR²とは、同一であってもよいし、異なってもよい。一実施形態において、一般式(1-2)におけるR¹と一般式(1-3)におけるR²とは同一である。

[0029] 上記した粗組成物と混合する水溶液は、一般式(2-1): M(OH)_p (式中、pは1または2、Mはアルカリ金属またはアルカリ土類金属)で示される水酸化物、および、水を含む。

[0030] 一般式(2-1)において、Mは、アルカリ金属またはアルカリ土類金属であり、Li、KおよびNaからなる群より選択される少なくとも1種が好ましく、Kがより好ましい。

[0031] 一般式(2-1)で示される水酸化物としては、LiOH、KOHおよびNaOHからなる群より選択される少なくとも1種が好ましく、KOHがさらに好ましい。

[0032] 水溶液中の水酸化物の含有量は、水溶液に対して、好ましくは1質量%~それぞれの水酸化物の20℃での飽和溶解濃度である。

[0033] 本開示の製造方法においては、粗組成物と水溶液とを混合して混合物を調製する。粗組成物と水溶液との混合割合は、粗組成物と水溶液との質量比（粗組成物：水溶液）で、好ましくは1：99～99：1であり、より好ましくは10：90～95：5であり、さらに好ましくは20：80～90：10である。

[0034] 混合物は、たとえば、粗組成物に対して、一括して、または、逐次的もしくは連続的に水溶液を添加することにより、調製することができる。混合は、攪拌しながら行うことができる。攪拌するために、攪拌子や攪拌翼を用いてもよい。また、粗組成物と水溶液とを連続的に流通させ、スタティックミキサー、充填塔などで混合してもよい。相関移動触媒や乳化剤を系内に添加し、粗組成物と水溶液との混合を促進させてもよい。粗組成物に対して水溶液を添加していくと混合物が発熱することがあるので、たとえば、混合物の温度を40～100℃の範囲内に維持するように、粗組成物に対して水溶液を逐次的または連続的に添加することができる。

[0035] 粗組成物と水溶液との混合は、たとえば、40～150℃の温度範囲で行うことができる。温度が低すぎる場合は、粗組成物、水溶液または混合物を加熱して、上記の温度範囲になるように調整してもよい。粗組成物と水溶液とを混合する際の温度が高すぎると、ジアイオダイドが揮発または分解して収量が低下することがあるので、ジアイオダイドの沸点を考慮して混合温度を決定することが好ましい。テロメリゼーション反応により調製した反応生成物を蒸留することにより得られる粗組成物を用いる場合、混合温度は50～90℃であることが好ましい。テロメリゼーション反応により調製した反応生成物を粗組成物としてそのまま用いる場合、混合温度は50～150℃であることが好ましい。

[0036] 粗組成物と水溶液とを混合した後、得られた混合物の温度を上記の温度範囲内に維持しながら、得られた混合物を10分間～24時間放置してもよい。

[0037] 次に、粗組成物と水溶液とを混合することにより得られた混合物を静置し

て、ジアイオダイドを主成分として含有する相と、水または水酸化物を主成分として含有する相との2相に分離させる。得られた混合物を静置すると、通常、ジアイオダイドを主成分として含有する下相と、水または水酸化物を主成分として含有する上相の2相に分離する。ジアイオダイドを主成分として含有する相を回収することにより、ジアイオダイドを高純度で含有する組成物を製造することができる。本開示において、主成分とは、相に占める質量の比率が50%を超える成分を意味する。

[0038] 本開示の製造方法により得られるジアイオダイドを含有する組成物中の一般式(1-2)で示されるエーテルおよび一般式(1-3)で示されるエステルの合計含有量は、組成物の質量に対して、好ましくは500質量ppm以下であり、より好ましくは100質量ppm以下であり、下限は特に限定されないが、0.1質量ppm以上であってよく、1.0質量ppm以上であってよい。組成物中のエーテルおよびエステルの合計含有量は、ガスクロマトグラフィー分析により測定することができる。

[0039] 組成物中の一般式(1-1)で示されるジアイオダイドの含有量は、組成物の質量に対して、好ましくは99.0質量%超であり、より好ましくは99.9質量%以上である。組成物中のジアイオダイドの含有量は、ガスクロマトグラフィー分析により測定することができる。

[0040] 本開示の製造方法においては、1,2-ジヨードテトラフルオロエチレンをテロゲンとし、テトラフルオロエチレンをタクソゲンとするテロメリゼーション反応により、粗組成物を調製してもよい。

[0041] また、本開示の製造方法においては、テロメリゼーション反応により生成した反応生成物を粗組成物として用いてもよいし、テロメリゼーション反応により生成した反応生成物を蒸留した後、得られた一部の留分または残渣を粗組成物として用いてもよい。テロメリゼーション反応により生成した反応生成物の蒸留は、分別蒸留、水蒸気蒸留などの公知の方法により行うことができる。

[0042] テロメリゼーション反応に用いる1,2-ジヨードテトラフルオロエチレ

ンは、特公昭43-11884号公報に記載の製造方法、米国特許第2424667号明細書に記載の製造方法などの公知の製造方法により製造することができる。

[0043] テロメリゼーション反応は、有機過酸化物を用いて行うことができる。有機過酸化物の存在下に行うテロメリゼーション反応においては、有機過酸化物が分解してラジカルが発生し、発生したラジカルが1, 2-ジヨードテトラフルオロエチレンのヨウ素原子を引き抜くことにより、新たにアルキルラジカルが発生し、アルキルラジカルにテトラフルオロエチレンが付加する反応が進行する。

[0044] 有機過酸化物としては、ジイソプロピルパーオキシジカーボネート、ジsec-ブチルパーオキシジカーボネートなどのジアルキルパーオキシカーボネート類、t-ブチルパーオキシイソブチレート、t-ブチルパーオキシピバレートなどのパーオキシエステル類、ジt-ブチルパーオキサイドなどのジアルキルパーオキサイド類、過酸化ベンゾイルなどのジアシルパーオキサイド類などが挙げられる。

[0045] テトラフルオロエチレンの使用量は、1モルの1, 2-ジヨードテトラフルオロエチレンに対して、好ましくは0.01~100モルである。

[0046] 有機過酸化物の使用量は、1モルの1, 2-ジヨードテトラフルオロエチレンに対して、好ましくは0.01~2モルである。

[0047] 1, 2-ジヨードテトラフルオロエチレンとテトラフルオロエチレンとの反応の温度は、適宜選択できるが、好ましくは-78~200℃である。また、1, 2-ジヨードテトラフルオロエチレンとテトラフルオロエチレンとの反応の温度は、好ましくは有機過酸化物の10時間半減期に相当する温度以上であり、好ましくは基質および生成物の分解温度未満である。

[0048] 1, 2-ジヨードテトラフルオロエチレンとテトラフルオロエチレンとの反応の圧力は、適宜選択できるが、好ましくは0~5.0MPaGである。反応の気相に特許第6545187号公報、特開昭53-144507号公報で実施されているように二酸化炭素や窒素のような希釈ガスをテトラフル

オロエチレンと共存させてもよい。1, 2-ジヨードテトラフルオロエチレンとテトラフルオロエチレンとの反応の時間は、適宜選択できるが、好ましくは0.1～96時間である。

[0049] 本開示の製造方法においては、ジアイオダイドを含有する相を回収した後、該相を蒸留してもよい。回収されたジアイオダイドを含有する相は、ジアイオダイドを高純度で含有する組成物であって、一般式(1-2)で示されるエーテル、および、一般式(1-3)で示されるエステルが除去または低減されている。このような組成物を蒸留することによって、一般式(1-2)で示されるエーテルまたは一般式(1-3)で示されるエステルのいずれかを少なくとも含有する組成物を蒸留する場合よりも、目的とするn数を有するジアイオダイドを高収率で分離回収することができる。

[0050] 蒸留は、分別蒸留、水蒸気蒸留などの公知の方法により行うことができる。ジアイオダイドは、高い沸点を有しているとともに、容易に熱分解することから、ジアイオダイドを含有する相を減圧下で蒸留することが好ましい。蒸留の際の圧力は、好ましくは0 MPa G以下であり、より好ましくは-0.09 MPa G以下である。蒸留により、ジアイオダイドを含有する相から、 $\text{I}(\text{CF}_2\text{CF}_2)$ を主成分として含有する留分、 $\text{I}(\text{CF}_2\text{CF}_2)_2$ を主成分として含有する留分、 $\text{I}(\text{CF}_2\text{CF}_2)_3$ を主成分として含有する留分などを回収することができる。

[0051] 一実施形態においては、蒸留により、ジアイオダイドを含有する相から、 $\text{I}(\text{CF}_2\text{CF}_2)_3$ を主成分として含有する留分を回収する。一実施形態においては、蒸留により、ジアイオダイドを含有する相から、 $\text{I}(\text{CF}_2\text{CF}_2)$ を主成分として含有する留分、 $\text{I}(\text{CF}_2\text{CF}_2)_2$ を主成分として含有する留分、および、 $\text{I}(\text{CF}_2\text{CF}_2)_3$ を主成分として含有する留分を各々回収する。

[0052] 本開示の製造方法の一実施形態においては、

1, 2-ジヨードテトラフルオロエチレンをテロゲンとし、テトラフルオロエチレンをタクソゲンとするテロメリゼーション反応により、 $\text{I}(\text{C}$

F_2CF_2)₁、 $\text{I}(\text{CF}_2\text{CF}_2)_2\text{I}$ および $\text{I}(\text{CF}_2\text{CF}_2)_3\text{I}$ を少なくとも含有しており、なおかつ、一般式(1-2)で示されるエーテル、および、一般式(1-3)で示されるエステルからなる群より選択される少なくとも1種を含有する粗組成物を調製し、

該粗組成物を蒸留して、 $\text{I}(\text{CF}_2\text{CF}_2)_1\text{I}$ を主成分として含有する留分を回収し、

上記の蒸留により得られる残渣($\text{I}(\text{CF}_2\text{CF}_2)_1\text{I}$ を主成分として含有する留分を回収した後に残る残渣)を蒸留して、 $\text{I}(\text{CF}_2\text{CF}_2)_2\text{I}$ を主成分として含有する留分を回収し、

上記の蒸留により得られる残渣($\text{I}(\text{CF}_2\text{CF}_2)_2\text{I}$ を主成分として含有する留分を回収した後に残る残渣)を粗組成物として用いて、該残渣と一般式(2-1)で示される水酸化物、および、水を含有する水溶液と、を混合することにより混合物を調製し、

得られた混合物を、ジアイオダイドを含有する相と、水を含有する相とに分離させ、ジアイオダイドを含有する相を回収し、

ジアイオダイドを含有する相を蒸留して、 $\text{I}(\text{CF}_2\text{CF}_2)_3\text{I}$ を主成分として含有する留分を回収する。

[0053] この実施形態に係る製造方法によれば、高い純度で、なおかつ、高収率で、 $\text{I}(\text{CF}_2\text{CF}_2)_3\text{I}$ を回収することができる。

[0054] 本開示の製造方法の一実施形態においては、

1, 2-ジヨードテトラフルオロエチレンをテロゲンとし、テトラフルオロエチレンをタクソゲンとするテロメリゼーション反応により、 $\text{I}(\text{CF}_2\text{CF}_2)_1\text{I}$ 、 $\text{I}(\text{CF}_2\text{CF}_2)_2\text{I}$ および $\text{I}(\text{CF}_2\text{CF}_2)_3\text{I}$ を少なくとも含有しており、なおかつ、一般式(1-2)で示されるエーテル、および、一般式(1-3)で示されるエステルからなる群より選択される少なくとも1種を含有する粗組成物を調製し、

該粗組成物と、一般式(2-1)で示される水酸化物、および、水を含有する水溶液と、を混合することにより混合物を調製し、

得られた混合物を、ジアイオダイドを含有する相と、水を含有する相とに分離させ、ジアイオダイドを含有する相を回収し、

ジアイオダイドを含有する相を蒸留して、 $\text{I}(\text{CF}_2\text{CF}_2)\text{I}$ を主成分として含有する留分を回収し、

上記の蒸留により得られる残渣($\text{I}(\text{CF}_2\text{CF}_2)\text{I}$ を主成分として含有する留分を回収した後に残る残渣)を蒸留して、 $\text{I}(\text{CF}_2\text{CF}_2)_2\text{I}$ を主成分として含有する留分を回収し、

上記の蒸留により得られる残渣($\text{I}(\text{CF}_2\text{CF}_2)_2\text{I}$ を主成分として含有する留分を回収した後に残る残渣)を蒸留して、 $\text{I}(\text{CF}_2\text{CF}_2)_3\text{I}$ を主成分として含有する留分を回収する。

[0055] この実施形態に係る製造方法によれば、高い純度で、なおかつ、高収率で、 $\text{I}(\text{CF}_2\text{CF}_2)\text{I}$ 、 $\text{I}(\text{CF}_2\text{CF}_2)_2\text{I}$ および $\text{I}(\text{CF}_2\text{CF}_2)_3\text{I}$ を各々回収することができる。

[0056] 以上、実施形態を説明したが、特許請求の範囲の趣旨および範囲から逸脱することなく、形態や詳細の多様な変更が可能なが理解されるであろう。

[0057] <1> 本開示の第1の観点によれば、

ジアイオダイドの製造方法であって、

一般式(1-1): $\text{I}(\text{CF}_2\text{CF}_2)_n\text{I}$ (式中、 n は1以上の整数)で示されるジアイオダイド、ならびに、

一般式(1-2): $\text{I}(\text{CF}_2\text{CF}_2)_m\text{OR}^1$ (式中、 m は1以上の整数、 R^1 は有機基)で示されるエーテル、および、

一般式(1-3): $\text{ICF}_2\text{COOR}^2$ (式中、 R^2 は有機基)で示されるエステル

からなる群より選択される少なくとも1種を含有する粗組成物と、

一般式(2-1): $\text{M}(\text{OH})_p$ (式中、 p は1または2、 M はアルカリ金属またはアルカリ土類金属)で示される水酸化物、および、水を含有す

る水溶液と、

を混合することにより混合物を調製し、

前記混合物を、前記ジアイオダイドを含有する相と、水を含有する相とに分離させ、前記ジアイオダイドを含有する相を回収する製造方法が提供される。

<2> 本開示の第2の観点によれば、

ジアイオダイドを含有する相を回収した後、該相を蒸留する第1の観点による製造方法が提供される。

<3> 本開示の第3の観点によれば、

前記粗組成物が、 $\text{I}(\text{CF}_2\text{CF}_2)\text{I}$ 、 $\text{I}(\text{CF}_2\text{CF}_2)_2\text{I}$ および $\text{I}(\text{CF}_2\text{CF}_2)_3\text{I}$ を少なくとも含有する第1または第2の観点による製造方法が提供される。

<4> 本開示の第4の観点によれば、

ジアイオダイドを含有する相を回収した後、該相を蒸留することにより、 $\text{I}(\text{CF}_2\text{CF}_2)_3\text{I}$ を主成分として含有する留分を回収する第3の観点による製造方法が提供される。

<5> 本開示の第5の観点によれば、

1, 2-ジヨードテトラフルオロエチレンをテロゲンとし、テトラフルオロエチレンをタクソゲンとするテロメリゼーション反応により、前記粗組成物を調製する第1～第4のいずれかの観点による製造方法が提供される。

<6> 本開示の第6の観点によれば、

1, 2-ジヨードテトラフルオロエチレンをテロゲンとし、テトラフルオロエチレンをタクソゲンとするテロメリゼーション反応により、反応生成物を調製し、該反応生成物を蒸留することにより、前記粗組成物を調製する第1～第4のいずれかの観点による製造方法が提供される。

<7> 本開示の第7の観点によれば、

有機過酸化物の存在下に、テロメリゼーション反応を行う第5または第6の観点による製造方法が提供される。

< 8 > 本開示の第 8 の観点によれば、

前記ジアイオダイドが、

一般式： $I(CF_2CF_2)_nI$ （式中、 n は 1 ～ 8 の整数）

で示されるジアイオダイドであり、

前記エーテルが、

一般式： $I(CF_2CF_2)_mOR^1$ （式中、 R^1 は炭素数 1 ～ 4 のアルキル基、 m は 2 ～ 5 の整数）

で示されるエーテルであり、

前記エステルが、

一般式： ICF_2COOR^2 （式中、 R^2 は炭素数 1 ～ 4 のアルキル基）
で示されるエステルであり、

前記粗組成物中の前記ジアイオダイドの含有量が、前記粗組成物の質量に対して、好ましくは 80.0 ～ 99.0 質量%であり、

前記粗組成物中の前記エーテルおよび前記エステルの合計含有量が、前記粗組成物の質量に対して、1.0 ～ 20.0 質量%であり、

前記水酸化物が、 $LiOH$ 、 KOH および $NaOH$ からなる群より選択される少なくとも 1 種であり、

前記水溶液中の前記水酸化物の含有量が、前記水溶液に対して、1 質量%以上かつ前記水酸化物の 20℃での飽和溶解濃度以下であり、

前記粗組成物と前記水溶液との質量比（粗組成物：水溶液）が、20：80 ～ 90：10 であり、

前記粗組成物と前記水溶液とを混合する際の温度が、40 ～ 150℃である

第 1 ～ 第 7 のいずれかの観点による製造方法が提供される。

< 9 > 本開示の第 9 の観点によれば、

一般式（1-1）： $I(CF_2CF_2)_nI$ （式中、 n は 1 以上の整数）

で示されるジアイオダイド、ならびに、

一般式（1-2）： $I(CF_2CF_2)_mOR^1$ （式中、 m は 1 以上の整

数、 R^1 は有機基)で示されるエーテル、および、

一般式(1-3): ICF_2COOR^2 (式中、 R^2 は有機基)で示されるエステル

からなる群より選択される少なくとも1種を含有しており、

前記エーテルおよび前記エステルの合計含有量が、組成物の質量に対して、500質量ppm以下である組成物が提供される。

<10> 本開示の第10の観点によれば、

前記ジアイオダイドが、

一般式: $I(CF_2CF_2)_nI$ (式中、 n は1~8の整数)

で示されるジアイオダイドであり、

前記エーテルが、

一般式: $I(CF_2CF_2)_mOR^1$ (式中、 R^1 は炭素数1~4のアルキル基、 m は2~5の整数)

で示されるエーテルであり、

前記エステルが、

一般式: ICF_2COOR^2 (式中、 R^2 は炭素数1~4のアルキル基)で示されるエステルであり、

前記ジアイオダイドの含有量が、前記組成物の質量に対して、99.0質量%超である第9の観点による組成物が提供される。

実施例

[0058] つぎに本開示の実施形態について実施例をあげて説明するが、本開示はかかる実施例のみに限定されるものではない。

[0059] 合成例1

攪拌翼を有する200mlのSUS316製オートクレーブ中に ICF_2CF_2I (222g)とジイソプロピルパーオキシジカーボネート(IPP) (4.4g)を仕込んだ。槽内を-15℃に冷却し槽内を真空にした後にテトラフルオロエチレン(TFE) (54g)を気相より仕込んだ。TFEと ICF_2CF_2I を反応させるために55℃まで昇温した。反応圧力はTFEが

反応で消費されるに従い低下した（反応開始時、反応圧力 2.8 MPa G あったものが反応 14 時間経過後には 1.8 MPa G となった）。

[0060] 14 時間反応を行った後、放冷して槽温が室温になったのを確認した後、残圧を大気圧まで放出した。反応槽内に残った反応粗体を 249 g 回収し、得られたテロマー混合物（反応粗体）の組成をガスクロマトグラフィーで確認した。結果を表 1 に示す。

[0061] ガスクロマトグラフィーは、以下の条件により実施した。

測定装置：島津製作所 GC-2014

カラム：Silicone SE-30 (15%)

カラムの温度条件：50℃, 5 min、10℃/min、250℃, 5 min

気化室温度：250℃

検出器温度：250℃

検出器：TCD

キャリアガスの種類：ヘリウム

サンプル注入量：1 μl

[0062] 実施例 1

合成例 1 で得られたテロマー混合物に KOH 水溶液を加えてエーテルおよびエステルを分解除去する手順を以下に示す。

[0063] 100 ml の 3 口フラスコに攪拌子を有し、コンデンサを接続した反応器に合成例 1 で得られたテロマー混合物のうち 153 g を仕込んだ。その後加熱して 50℃ に達したら、槽内温度が 50～60℃ になるように 48 質量 % KOH 水溶液の仕込量を調整しながら 35 g 仕込んで反応させた。KOH 仕込み完了後もさらに 50～60℃ に維持して 2 時間反応させた。

[0064] 反応後の反応生成物は KOH 水溶液相とテロマー相の 2 相からなる混合物として得られた。ガスクロマトグラフィーを用いて下相（テロマー相）を分析した結果を表 1 に示す。エーテルおよびエステルが消滅していることが確認できた。反応混合物から液々分離するとテロマー相は 142 g 回収された。

。この量はエーテルおよびエステルが分解除去されたと考え、ほぼ定量的な回収量であった。

[0065] 表 1 および表 2 において、ジアイオダイド、エーテルおよびエステルは、それぞれ、以下の化学式で示される化合物である。

ジアイオダイド： $\text{I}(\text{CF}_2\text{CF}_2)_n\text{I}$ （式中、 n は表 1 に示す整数）

エーテル： $\text{I}(\text{CF}_2\text{CF}_2)_m\text{OCH}(\text{CH}_3)_2$ （式中、 m は表 1 に示す整数）

エステル： $\text{ICF}_2\text{COOCH}(\text{CH}_3)_2$

[0066]

[表1]

表1

	ジアイオダイド n=1	エステル	ジアイオダイド n=2	エーテル m=2	ジアイオダイド n=3	エーテル m=3	ジアイオダイド n=4	エーテル m=4	ジアイオダイド n=5	エーテル m=5	ジアイオダイド n=6	ジアイオダイド n=7	ジアイオダイド n=8
合成例1 テロマー混合物 (GC%)	61.9	0.5	17.9	4.5	7.8	0.7	3.6	0.3	1.6	0.0	0.7	0.3	0.1
実施例1 テロマー相 (GC%)	65.5	ND	19.3	ND	8.4	ND	4.0	ND	1.7	ND	0.7	0.3	0.1

ND: Not detected

[0067] 実施例 2

実施例 2 に、テロメリゼーション反応により得られた反応物を分別蒸留することにより生成する残渣中のエーテルを分解除去する例を示す。

[0068] 合成例 1 で得られたテロマー混合物を、分別蒸留することにより、ジアイオダイド ($n = 1$) およびジアイオダイド ($n = 2$) を各々分離して回収するとともに、残渣を回収した。ガスクロマトグラフィーを用いて残渣を分析した結果を表 2 に示す。

[0069] 100 ml の 3 つ口フラスコに攪拌子を有し、コンデンサを接続した反応器に残渣 125 g を仕込んだ。その後加熱して 50℃ に達したら、48 質量 % KOH 水溶液の仕込を開始した。KOH の添加によって反応し、発熱が認められるようになる。槽内温度は 90～100℃ を維持するように 48 質量 % KOH 水溶液の仕込量を調整しながら仕込んだ。KOH は 2 時間かけて 34 g を仕込んだ。KOH 仕込み完了後も 90～100℃ に維持してさらに 3 時間反応させた。

[0070] 反応後の反応生成物は KOH 水溶液相とテロマー相に液々分離していた。テロマー相をガスクロマトグラフィーを用いて分析した結果を表 2 に示す。

[0071]

[表2]

表2

	ジアイオダイド n=2	エーテル m=2	ジアイオダイド n=3	エーテル m=3	ジアイオダイド n=4	エーテル m=4	ジアイオダイド n=5	エーテル m=5	ジアイオダイド n=6	ジアイオダイド n=7	ジアイオダイド n=8
実施例2 残渣 (GC%)	3.8	30.1	34.8	5.1	14.1	2.5	5.9	0.5	2.2	0.8	0.3
実施例2 テロマー相 (GC%)	5.9	ND	57.1	ND	23.0	ND	9.6	ND	3.0	1.0	0.4

ND: Not detected

[0072] 比較例 1

ガラス製の 1 5 段オールダッシュウ蒸留装置にて、常法に従い、4. 5 k P

aにて、合成例1で得られたテロマー混合物を減圧蒸留させた。結果を以下に示す。

ジアイオダイド ($n=1$) (純度90%以上) の単離収率: 85%

ジアイオダイド ($n=2$) (純度90%以上) の単離収率: 52%

[0073] 実施例3

ガラス製の15段オールダッシュウ蒸留装置にて、常法に従い、4.5 kPaにて、実施例1で得られたテロマー相を減圧蒸留させた。結果を以下に示す。

ジアイオダイド ($n=1$) (純度90%以上) の単離収率: 89%

ジアイオダイド ($n=2$) (純度90%以上) の単離収率: 94%

[0074] 比較例1および実施例3の結果から、原料中の不純物を中和・除去することによって、テロマー（ジアイオダイド）の回収収率が向上することが確認された。

請求の範囲

- [請求項1] ジアイオダイドの製造方法であって、
一般式 (1-1) : $\text{I}(\text{CF}_2\text{CF}_2)_n\text{I}$ (式中、 n は 1 以上の整数) で示されるジアイオダイド、ならびに、
一般式 (1-2) : $\text{I}(\text{CF}_2\text{CF}_2)_m\text{OR}^1$ (式中、 m は 1 以上の整数、 R^1 は有機基) で示されるエーテル、および、
一般式 (1-3) : $\text{ICF}_2\text{COOR}^2$ (式中、 R^2 は有機基) で示されるエステル
からなる群より選択される少なくとも 1 種
を含有する粗組成物と、
一般式 (2-1) : $\text{M}(\text{OH})_p$ (式中、 p は 1 または 2、 M はアルカリ金属またはアルカリ土類金属) で示される水酸化物、および、水を含む水溶液と、
を混合することにより混合物を調製し、
前記混合物を、前記ジアイオダイドを含有する相と、水を含む相とに分離させ、前記ジアイオダイドを含有する相を回収する製造方法。
- [請求項2] ジアイオダイドを含有する相を回収した後、該相を蒸留する請求項 1 に記載の製造方法。
- [請求項3] 前記粗組成物が、 $\text{I}(\text{CF}_2\text{CF}_2)\text{I}$ 、 $\text{I}(\text{CF}_2\text{CF}_2)_2\text{I}$ および $\text{I}(\text{CF}_2\text{CF}_2)_3\text{I}$ を少なくとも含有する請求項 1 または 2 に記載の製造方法。
- [請求項4] ジアイオダイドを含有する相を回収した後、該相を蒸留することにより、 $\text{I}(\text{CF}_2\text{CF}_2)_3\text{I}$ を主成分として含有する留分を回収する請求項 3 に記載の製造方法。
- [請求項5] 1, 2-ジヨードテトラフルオロエチレンをテロゲンとし、テトラフルオロエチレンをタクソゲンとするテロメリゼーション反応により、前記粗組成物を調製する請求項 1 ~ 4 のいずれかに記載の製造方法

。

[請求項6] 1, 2-ジヨードテトラフルオロエチレンをテロゲンとし、テトラフルオロエチレンをタクソゲンとするテロメリゼーション反応により、反応生成物を調製し、該反応生成物を蒸留することにより、前記粗組成物を調製する請求項1～4のいずれかに記載の製造方法。

[請求項7] 有機過酸化物の存在下に、テロメリゼーション反応を行う請求項5または6に記載の製造方法。

[請求項8] 前記ジアイオダイドが、
一般式： $\text{I}(\text{CF}_2\text{CF}_2)_n\text{I}$ （式中、 n は1～8の整数）
で示されるジアイオダイドであり、
前記エーテルが、
一般式： $\text{I}(\text{CF}_2\text{CF}_2)_m\text{OR}^1$ （式中、 R^1 は炭素数1～4のアルキル基、 m は2～5の整数）
で示されるエーテルであり、
前記エステルが、
一般式： $\text{ICF}_2\text{COOR}^2$ （式中、 R^2 は炭素数1～4のアルキル基）
で示されるエステルであり、
前記粗組成物中の前記ジアイオダイドの含有量が、前記粗組成物の質量に対して、好ましくは80.0～99.0質量%であり、
前記粗組成物中の前記エーテルおよび前記エステルの合計含有量が、前記粗組成物の質量に対して、1.0～20.0質量%であり、
前記水酸化物が、 LiOH 、 KOH および NaOH からなる群より選択される少なくとも1種であり、
前記水溶液中の前記水酸化物の含有量が、前記水溶液に対して、1質量%以上かつ前記水酸化物の20℃での飽和溶解濃度以下であり、
前記粗組成物と前記水溶液との質量比（粗組成物：水溶液）が、20：80～90：10であり、

前記粗組成物と前記水溶液とを混合する際の温度が、40～150℃である

請求項1～7のいずれかに記載の製造方法。

[請求項9] 一般式(1-1)： $\text{I}(\text{CF}_2\text{CF}_2)_n\text{I}$ （式中、 n は1以上の整数）で示されるジアイオダイド、ならびに、

一般式(1-2)： $\text{I}(\text{CF}_2\text{CF}_2)_m\text{OR}^1$ （式中、 m は1以上の整数、 R^1 は有機基）で示されるエーテル、および、

一般式(1-3)： $\text{ICF}_2\text{COOR}^2$ （式中、 R^2 は有機基）で示されるエステル

からなる群より選択される少なくとも1種を含有しており、

前記エーテルおよび前記エステルの合計含有量が、組成物の質量に対して、500質量ppm以下である組成物。

[請求項10] 前記ジアイオダイドが、

一般式： $\text{I}(\text{CF}_2\text{CF}_2)_n\text{I}$ （式中、 n は1～8の整数）で示されるジアイオダイドであり、

前記エーテルが、

一般式： $\text{I}(\text{CF}_2\text{CF}_2)_m\text{OR}^1$ （式中、 R^1 は炭素数1～4のアルキル基、 m は2～5の整数）で示されるエーテルであり、

前記エステルが、

一般式： $\text{ICF}_2\text{COOR}^2$ （式中、 R^2 は炭素数1～4のアルキル基）

で示されるエステルであり、

前記ジアイオダイドの含有量が、前記組成物の質量に対して、99.0質量%超である請求項9に記載の組成物。

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2024/010010

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER**C07C 17/395**(2006.01)i; **C07C 19/16**(2006.01)i

FI: C07C17/395; C07C19/16

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)

C07C17/395; C07C19/16

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

Published examined utility model applications of Japan 1922-1996
Published unexamined utility model applications of Japan 1971-2024
Registered utility model specifications of Japan 1996-2024
Published registered utility model applications of Japan 1994-2024

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)

CAPLUS/REGISTRY (STN)

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	JP 61-31084 B2 (ASAHI GLASS CO., LTD.) 17 July 1986 (1986-07-17) claims, examples 1-4	9-10
X	JP 51-133206 A (ASAHI GLASS CO., LTD.) 18 November 1976 (1976-11-18) claims, examples 1-4	9-10
X	WO 2014/062450 A2 (3M INNOVATIVE PROPERTIES COMPANY) 24 April 2014 (2014-04-24) claims, examples 1-10	9-10
X	BEDFORD, Clifford D. et al., Preparation of α,ω -Diiodoperfluoroalkanes, Journal of Organic Chemistry, 1980, vol. 45, pages 347-348 page 348	9-10
Y	JP 47-2573 A (THIOKOL CHEMICAL CORPORATION) 08 February 1972 (1972-02-08) claims, examples 1-12	1-10



Further documents are listed in the continuation of Box C.



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
“D” document cited by the applicant in the international application
“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

22 May 2024

Date of mailing of the international search report

04 June 2024

Name and mailing address of the ISA/JP

Japan Patent Office (ISA/JP)
3-4-3 Kasumigaseki, Chiyoda-ku, Tokyo 100-8915
Japan

Authorized officer

Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2024/010010

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
Y	JP 49-20107 A (DAIKIN INDUSTRIES, LTD.) 22 February 1974 (1974-02-22) claims, page 3, upper left column, line 16 to upper right column, line 1, examples 1-2	1-10
A	JP 2002-69018 A (DAIKIN INDUSTRIES, LTD.) 08 March 2002 (2002-03-08) entire text	1-10

INTERNATIONAL SEARCH REPORT
Information on patent family members

International application No.
PCT/JP2024/010010

Patent document cited in search report			Publication date (day/month/year)	Patent family member(s)	Publication date (day/month/year)
JP	61-31084	B2	17 July 1986	(Family: none)	
JP	51-133206	A	18 November 1976	(Family: none)	
WO	2014/062450	A2	24 April 2014	US 2015/0259270	A1
				EP 2909162	A2
				CN 105073692	A
JP	47-2573	A	08 February 1972	(Family: none)	
JP	49-20107	A	22 February 1974	(Family: none)	
JP	2002-69018	A	08 March 2002	CN 1441761	A

A. 発明の属する分野の分類（国際特許分類（IPC））

C07C 17/395(2006.01)i; C07C 19/16(2006.01)i

FI: C07C17/395; C07C19/16

B. 調査を行った分野

調査を行った最小限資料（国際特許分類（IPC））

C07C17/395; C07C19/16

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

日本国実用新案公報

1922 - 1996年

日本国公開実用新案公報

1971 - 2024年

日本国実用新案登録公報

1996 - 2024年

日本国登録実用新案公報

1994 - 2024年

国際調査で使用した電子データベース（データベースの名称、調査に使用した用語）

CAplus/REGISTRY (STN)

C. 関連すると認められる文献

引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求項の番号
X	JP 61-31084 B2 (旭硝子株式会社) 17.07.1986 (1986 - 07 - 17) 特許請求の範囲、実施例 1 - 4	9-10
X	JP 51-133206 A (旭硝子株式会社) 18.11.1976 (1976 - 11 - 18) 特許請求の範囲、実施例 1 - 4	9-10
X	WO 2014/062450 A2 (3M INNOVATIVE PROPERTIES COMPANY) 24.04.2014 (2014 - 04 - 24) Claims, Examples 1-10	9-10
X	D.BEDFORD, Clifford et al., Preparation of α,ω -Diiodoperfluoroalkanes, Journal of Organic Chemistry, 1980, vol.45, pp.347-348 第 3 4 8 頁	9-10
Y	JP 47-2573 A (チオコール ケミカル コーポレーション) 08.02.1972 (1972 - 02 - 08) 特許請求の範囲、実施例 1 - 1 2	1-10

☒ C欄の続きにも文献が列挙されている。

☒ パテントファミリーに関する別紙を参照。

* 引用文献のカテゴリー

“A” 特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの

“D” 国際出願で出願人が先行技術文献として記載した文献

“E” 国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの

“I” 優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献（理由を付す）

“O” 口頭による開示、使用、展示等に言及する文献

“P” 国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願の日の後に公表された文献

“T” 国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と抵触するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの

“X” 特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの

“Y” 特に関連のある文献であって、当該文献と他の 1 以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの

“&” 同一パテントファミリー文献

国際調査を完了した日

22.05.2024

国際調査報告の発送日

04.06.2024

名称及びあて先

日本国特許庁(ISA/JP)

〒100-8915

日本国

東京都千代田区霞が関三丁目 4 番 3 号

権限のある職員（特許庁審査官）

増永 淳司 4H 4511

電話番号 03-3581-1101 内線 3492

様式 PCT/ISA/210（第 2 ページ）（2022 年 7 月）

C. 関連すると認められる文献		
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求項の番号
Y	JP 49-20107 A (ダイキン工業株式会社) 22.02.1974 (1974 - 02 - 22) 特許請求の範囲、第 3 頁左上欄第 1 6 行目から右上欄 1 行目、実施例 1 - 2	1-10
A	JP 2002-69018 A (ダイキン工業株式会社) 08.03.2002 (2002 - 03 - 08) 全文	1-10

国際調査報告
パテントファミリーに関する情報

国際出願番号
PCT/JP2024/010010

引用文献			公表日	パテントファミリー文献			公表日
JP	61-31084	B2	17.07.1986	(ファミリーなし)			
JP	51-133206	A	18.11.1976	(ファミリーなし)			
WO	2014/062450	A2	24.04.2014	US	2015/0259270	A1	
				EP	2909162	A2	
				CN	105073692	A	
JP	47-2573	A	08.02.1972	(ファミリーなし)			
JP	49-20107	A	22.02.1974	(ファミリーなし)			
JP	2002-69018	A	08.03.2002	CN	1441761	A	