

P - 34.820



M & T Case 622

Memoria descriptiva

330559

para solicitar PATENTE DE INVENCION por 20 años

a nombre de M & T CHEMICALS INC.

entidad / de nacionalidad norteamericana

con domicilio en Rahway, Nueva Jersey, E.U.A.

por: "UN PROCEDIMIENTO PARA PREPARAR UN DIFENIL SILANO DIOL"
(Clase Internacional 40/3 C07f)



Esta invención se refiere a un nuevo procedimiento para preparar compuestos de organosilicio. Más particularmente, se refiere a un procedimiento caracterizado por su facilidad de trabajo y por un mayor rendimiento de los productos deseados.

Los intentos anteriores para producir compuestos tipificados por el difenil silano diol se han caracterizado por operaciones de tratamiento complejas y difíciles, con una producción resultante de bajo rendimiento del difenilsilano diol deseado. Normalmente, el rendimiento de este producto, obtenido por técnicas conocidas de elevado coste, no ha sido de más de 73-78%, a causa de las pérdidas que tienen lugar durante las varias operaciones de tratamiento, incluyendo la destilación y purificación del difenil diclorosilano intermedio, etc.

Es un objeto de esta invención proporcionar un procedimiento para la preparación de compuestos de organosilicio con elevado rendimiento. Más particularmente, es un objeto de esta invención proporcionar un procedimiento para preparar un difenil silano diol con elevado rendimiento. Otros objetos se harán evidentes para los expertos en la técnica al inspeccionar la siguiente Memoria descriptiva.

Según algunos de sus aspectos, el nuevo procedimiento de esta invención para preparar un difenil silano diol puede comprender:

(a) mantener una mezcla de reacción que contiene un hidrocarburo inerte y $\phi_a \text{SiX}_b$, donde ϕ es un radical fenilo, X es un halogenuro activo, $a+b=4$, y a es menor de 2;

(b) añadir a dicha mezcla de reacción ϕMgX en diso-



lución-complejo con un agente formador de complejos seleccionado del grupo que consta de tetrahidrofurano, tetrahidropirano, 2-metiltetrahidrofurano, 2-etoxitetrahidropirano, éter tetrahidrofurfuril etílico, dihidropirano y N-metilmorfolina;

5 (c) mantener una relación molar en dicha mezcla de reacción de aproximadamente (b-2) moles de ϕMgX por mol de $\phi_a SiX_b$;

10 (d) agitar dicha mezcla de reacción durante dicha adición con lo que dicha mezcla de reacción se mantiene sustancialmente uniforme, formando así $\phi_2 SiX_2$;

15 (e) separar por destilación una parte de dicho agente formador de complejos de dicha mezcla de reacción formando así una mezcla de reacción reducida que contiene menos de aproximadamente dos moles de agente formador de complejos por mol de magnesio presente;

(f) hidrolizar dicha mezcla de reacción reducida, haciendo precipitar así difenil silano diol; y

20 (g) recuperar dicho difenil silano diol precipitado.

El producto de difenil silano diol que puede ser formado con elevado rendimiento por medio de la práctica de esta invención, puede comprender productos en los que el grupo fenilo, denominado en la Memoria C_6H_5 ó ϕ , puede estar sustituido de modo inerte. Los productos típicos que pueden ser formados por el procedimiento de esta invención, además del propio difenil silano diol, pueden incluir, por ejemplo:

30 di(p-toluil)silano diol

di(m-toluil)silano diol

338559



di(o-toluil)silano diol

di(2,4-dimetil fenil)silano diol

di(2,4-clorofenil)silano diol

El compuesto de silicio que puede ser utilizado en la práctica de esta invención puede incluir compuestos que tiene la fórmula $\phi_a \text{SiX}_b$. En esta fórmula, ϕ indica un radical fenilo (incluyendo los fenilos sustituidos como se explica en la Memoria). X puede ser un halogenuro activo seleccionado del grupo que consta de cloruro y bromuro. En este fórmula, $a+b=4$, y a es un número entero inferior a 2, es decir 0 ó 1. Cuando a es 0, el compuesto $\phi_a \text{SiX}_b$ puede ser X_4Si , típicamente tetrabromuro de silicio o tetracloruro de silicio. Cuando a es 1, el compuesto puede ser ϕSiX_3 , y típicamente feniltriclorosilano, fenil tribromosilano, etc. Estos compuestos pueden estar fácilmente disponibles, o pueden ser preparados, por ejemplo, por reacción de tetracloruro de silicio y reactivos de Grignard, o por síntesis directa utilizando silicio y compuestos halogenados, por ej. clorobencenos.

Preferiblemente, cuando a es 0, el compuesto puede ser tetracloruro de silicio, y cuando a es 1 el compuesto puede ser feniltriclorosilano.

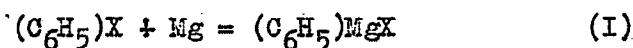
El compuesto de silicio puede ser añadido preferiblemente en una proporción de 1000-1100 partes, por ejemplo 1057, a la mezcla de reacción, juntamente con un hidrocarburo inerte. Los hidrocarburos inertes típicos pueden incluir hidrocarburos aromáticos, incluyendo el o-xileno, m-xileno, p-xileno, tolueno, mesitileno, etc. No obstante, y preferiblemente, el hidrocarburo inerte puede ser un hidrocarburo parafínico, por ejemplo heptano, octano,

338559



5 nonano, incluyendo los compuestos normales, así como otros isómeros, incluyendo los compuestos iso. Las mezclas de estos hidrocarburos inertes que pueden emplearse incluyen las mezclas comercialmente disponibles, tales como las gasolinas, u otras varias mezclas derivadas del petróleo. Una mezcla preferida pueden ser las mezclas alifáticas parafínicas de hidrocarburos que se venden con la marca de fábrica de ISOPAR E, una mezcla perteneciente a la Enjay Chemical Company, y vendida por ella. Preferiblemente, el hidrocarburo inerte puede estar presente en la mezcla de reacción en la proporción de 300-1000 partes, por ejemplo 600 partes.

10 El reactivo de Grignard que puede ser utilizado en la práctica de esta invención, preferiblemente cloruro de fenil magnesio (y que incluye los reactivos de Grignard que contienen un radical fenilo sustituido inertemente, como se ha indicado anteriormente), puede ser preparado por reacción de un halogenuro de fenilo (por ej. clorobenceno) con magnesio, según la reacción siguiente:



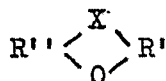
25 Esta reacción puede llevarse a cabo preferiblemente bajo una atmósfera inerte, por ej. nitrógeno gaseoso, en presencia de un éter alifático, tal como el éter dietílico, éter di-n-butílico, etc., o en presencia de un compuesto Q, tal como se explicará más adelante en la Memoria. Puede haber presentes varios iniciadores para facilitar la formación del reactivo de Grignard.

30 El compuesto Q, ya que esta expresión es utilizada en la presente Memoria por brevedad, puede incluir éteres

338559



cíclicos que contienen 5-6 miembros en el anillo, con al menos un átomo de hidrógeno unido a cada átomo de carbono del anillo, y con la fórmula:



5 en la que X es un grupo metileno o un grupo N-alcohilo; R'' es un radical de hidrocarburo alifático divalente saturado y no sustituido; R' es un radical de etileno, un radical hidrocarbonado divalente etilénicamente no saturado, un radical metileno, ó =CHR''' (siendo R''' hidrógeno o un radical alifático); y O es oxígeno. Cuando X es N-alcohilo, el anillo ha de contener 6 miembros, estando X y O en una posición 1:4 del uno con respecto al otro.

10 Los compuestos que se encuentran dentro de esta definición incluyen el tetrahidrofurano, tetrahidropirano, 2-metil tetrahidrofurano, 2-etoxitetrahidropirano, éter tetrahidrofurfuril etílico, dihidropirano y N-metilmorfolina. El compuesto Q puede llevar grupos inertes, es decir, grupos que no son reactivos con los halogenuros de órgano magnesio, o con cualquiera de los componentes y productos de las mezclas de reacción del procedimiento de la presente invención. Los ejemplos de sustituyentes inertes pueden incluir grupos alcohilo, arilo, alcoxi y ariloxi sustituidos y no sustituidos (incluyendo los que llevan sobre sí sustituyentes que son no reactivos para otros componentes de la mezcla de reacción, como los que se especifican en la Memoria). Cuando el nitrógeno sustituye a un átomo de carbono del anillo en X, el átomo de nitrógeno ha de estar sustituido con un grupo, tal como un grupo

338559



alcoholo, que es no reactivo para los reaccionantes o productos de reacción.

Una característica del compuesto Q es que el oxígeno no tiene electrones disponibles para ser donados, es decir, los electrones libres presentes sobre el oxígeno están disponibles para su coordinación con el reactivo de Grignard. Cualquier grupo voluminoso bloqueante situado sobre los átomos de carbono adyacentes al oxígeno del anillo puede perjudicar la disponibilidad de estos electrones, y la reactividad del compuesto para formar un complejo y ayudar a la reacción. Además de los compuestos enumerados anteriormente como adecuados para compuesto Q, de la presente Memoria descriptiva se deducirán, para los expertos en la técnica, otros compuestos equivalentes que satisfacen los requerimientos para este agente y disolvente formador de complejos. Como el compuesto Q puede actuar también como disolvente, en la práctica de esta invención puede utilizarse un compuesto Q con un elevado punto de fusión, pero si se utiliza como disolvente, el elevado punto de fusión (superior a 90°C, por ejemplo), puede provocar dificultades en la realización de la reacción.

El reactivo de Grignar formado, por ejemplo, por el procedimiento de la reacción (I) anterior puede estar preferiblemente en forma de una disolución de su complejo con el éter o el compuesto Q, por ejemplo en forma de una disolución de $(C_6H_5)MgX.nQ$ en Q. Por conveniencia, las ecuaciones se escriben en la Memoria sin hacer referencia al éter o compuesto Q que puede estar presente.

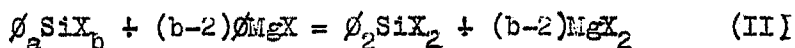
Preferiblemente, el compuesto Q añadido a la mezcla

338559

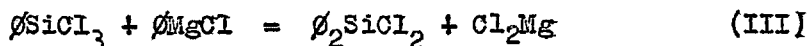


de reacción con el compuesto de Grignard en el que puede estar en disolución-complejo, puede estar presente en una cantidad de 3-5 moles, por ejemplo 4 moles, por mol $\text{C}_6\text{H}_5\text{MgCl}$ de reactivo de Grignard añadido. Preferiblemente pueden añadirse por ejemplo de 670 a 700, 685 partes por ejemplo de $\text{C}_6\text{H}_5\text{MgCl}$ en disolución-complejo, en 1080-1800, por ejemplo 1652 partes de compuesto Q cuando el compuesto de silicio, Si_aX_b es uno en el que $a = 1$. Cuando $a = 0$, puede doblarse la cantidad de reactivo de Grignard y de disolvente-complejo.

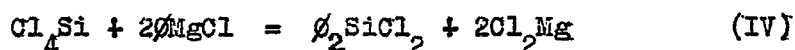
En la práctica del procedimiento de esta invención, la reacción entre el compuesto de silicio y el compuesto de Grignard puede ser como sigue:



Cuando el compuesto de silicio es, por ejemplo, feniltriclorosilano, la reacción puede ser como sigue:



Cuando el compuesto de silicio es tetracloruro de silicio, la reacción puede ser como sigue:



La reacción puede llevarse a cabo añadiendo al recipiente de reacción todo el compuesto de silicio, Si_aX_b , juntamente con un hidrocarburo inerte con el que pueda ser mezclado. Preferiblemente, el hidrocarburo inerte puede ser uno que tiene un punto de ebullición de 100°C - 150°C , y preferiblemente puede ser la mezcla disponible en el comercio de hidrocarburos alifáticos parafínicos, vendida con la marca de fábrica de ISOPAR E.

A la mezcla de reacción, preferiblemente bien agitada, que contiene el compuesto de silicio, puede añadirse

338559



se el compuesto de Grignard $\phi_2\text{SiX}$ en disolución-complejo con un agente formador de complejos. La adición, realizada por agitación, puede tener lugar preferiblemente a lo largo de 60-420 minutos, por ejemplo 300 minutos. Durante la adición, pueden añadirse (b-2) moles de Grignard por cada mol de compuesto de silicio en la mezcla de reacción. Cuando el compuesto de silicio es tetracloruro de silicio, pueden añadirse 2 moles de reactivo de Grignard por cada mol de tetracloruro de silicio en el recipiente de reacción. Cuando el compuesto de silicio es fenil triclorosilano, puede añadirse 1 mol de reactivo de Grignard por cada mol de fenil triclorosilano en la mezcla de reacción. Preferiblemente, la mezcla de reacción exotérmica puede ser mantenida a 25°C - 125°C , por ejemplo 85°C aproximadamente. En el curso de la reacción durante 60-420 minutos, por ejemplo 300 minutos, puede formarse el compuesto $\phi_2\text{SiX}_2$.

Es una característica particular del procedimiento de esta invención el que el rendimiento del producto puede ser aumentado en tanto como un 30%-50%, y típicamente al menos aproximadamente 40%, por tratamiento de la mezcla de reacción que contiene $\phi_2\text{SiX}_2$, antes de la hidrólisis subsiguiente y de la recuperación subsiguiente de difenil silano diol. Se ha comprobado que esta mezcla de reacción puede ser sometida a destilación para destilar de la misma al menos 25%, y preferiblemente de 25% -70%, de mejor 50%, del agente formador de complejos, tetrahydrofurano típicamente, formando así una mezcla de reacción reducida que contiene menos de aproximadamente 2 moles de agente formador de complejos por mol de magnesio añadido

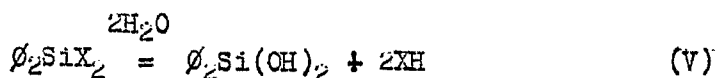
338559



en forma de compuesto de Grignard.. Esto puede llevarse a
 cabo típicamente, calentando dicha mezcla de reacción has-
 ta una temperatura de 85°C-125°C, por ejemplo 115°C, du-
 rante 30 -180 minutos, por ejemplo 120 minutos. Típica-
 5 mente, la destilación puede llevarse a cabo a presión at-
 mosférica.. Durante la destilación, y de cada 100 partes
 de mezcla de reacción, puede destilarse típicamente agen-
 te formador de complejos en una cantidad de 25-70 partes,
 por ejemplo 50 partes. La mezcla de reacción reducida pue-
 10 de contener generalmente menos de 3 moles de agente for-
 mador de complejos por mol de magnesio añadido en forma
 de reactivo de Grignard. La mezcla de reacción reducida
 puede contener, típicamente, de 1'5 a 3, por ejemplo 2,
 moles de agente formador de complejos, tetrahidrofurano
 15 típicamente, por mol de magnesio añadido en forma de reac-
 tivo de Grignard.

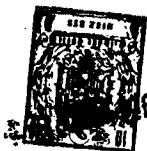
Cuando ha sido finalizada esta operación de desti-
 lación preferida, la mezcla de reacción reducida resul-
 tante puede ser hidrolizada, de una forma que se expone
 20 más adelante en la presente Memoria, para permitir la re-
 cuperación de difenil silano diol en una cantidad de 900-
 1100 partes, por ejemplo 970 partes, equivalentes a un
 rendimiento de 80% -95%, por ejemplo 86%.

La mezcla de reacción así formada puede ser hidrolí-
 25 zada para formar el deseado difenil silano diol $\phi_2\text{Si}(\text{OH})_2$,
 a partir del $\phi_2\text{SiX}_2$:



Preferiblemente, esta hidrólisis puede ser llevada
 30 a cabo ajustando el pH de la mezcla de reacción a 6-7. Es

338559



to puede hacerse típicamente mezclando una disolución acuosa de agente tamponador caracterizado por un pH de 6-7. Los agentes tamponadores típicos que pueden actuar en disolución acuosa pueden incluir el bicarbonato de sodio; bicarbonato de potasio, etc. El tamponador preferido para llevar a cabo la hidrólisis puede ser el ión de bicarbonato, preferiblemente presente en forma de bicarbonato de sodio o bicarbonato de potasio. Generalmente, la hidrólisis puede llevarse a cabo añadiendo la mezcla de reacción a dos moles de bicarbonato (en disolución o suspensión acuosa) por mol de compuesto de silicio introducido originalmente. Esto puede realizarse típicamente utilizando de 160 a 180 partes, por ejemplo 168 partes, de bicarbonato de sodio en disolución o suspensión acuosa, por mol de compuesto de silicio presente. La hidrólisis puede efectuarse por medio de agitación moderada de esta mezcla de hidrólisis durante 30-120 minutos, por ejemplo 60 minutos, a 0°C a 45°C, por ejemplo la temperatura ambiente de 25°C.

Al finalizar la reacción de hidrólisis, el pH puede ser de 6 a 7, por ejemplo 6.5. El mantenimiento de pH en esta región preferida permite la consecución de un máximo rendimiento y pureza con una formación mínima de productos no deseables, incluyendo polímeros y/o hidróxido de magnesio.

Durante la hidrólisis, el difenil silano diol puede precipitar rápidamente y ser recuperado por filtración. La recuperación de este material puede ser con un rendimiento de 80-95%, y típicamente al menos 86%, de un producto que tiene (en el caso del propio fenil silano diol),



un punto de fusión de más de 148°C, y un análisis por Karl Fisher de 16'6. El diol así obtenido puede ser utilizado fácilmente para formar productos deseados, incluyendo polímeros cíclicos, etc.

5 La puesta en práctica de esta invención puede observarse con relación a los siguientes ejemplos ilustrativos.

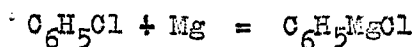
EJEMPLO I

10 En este ejemplo, que ilustra la práctica de la invención, puede prepararse reactivo de Grignard de cloruro de fenil magnesio introduciendo 535 partes de virutas de magnesio en un recipiente de reacción, que puede ser purgado con nitrógeno gaseoso. Pueden añadirse 440 partes de tetrahidrofurano, juntamente con una mezcla de iniciación que contiene 31'6 partes de bromobenceno y 44'8 partes de clorobenceno. A la mezcla de reacción puede añadirse lentamente una mezcla que contiene 2408 partes de clorobenceno y 5300 partes de tetrahidrofurano, con agitación.

15 Durante la adición, puede aplicarse y mantenerse calentamiento exterior hasta que la temperatura aumenta hasta aproximadamente 75°C. Después, la reacción puede transcurrir exotérmicamente, llegando la temperatura del recipiente incluso hasta 80°C en el curso de 180 minutos. Puede quitarse el calentamiento exterior, y la reacción puede continuar además durante aproximadamente 60 minutos. La mezcla de reacción de compuesto de Grignard puede ser enfriada hasta la temperatura ambiente.

20

25



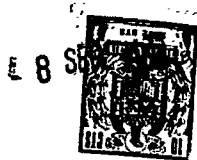
30 1057 partes de fenil triclorosilano y 600 partes de

338559



ISOPAR E pueden ser introducidas en un recipiente de reac-
ción, y calentadas a 112°C. Después, pueden añadirse a
la mezcla bien agitada 2337 partes de reactivo de Grig-
nard, a lo largo de aproximadamente 120 minutos, manteni-
do una velocidad uniforme de destilación. Al finalizar
la adición del reactivo de Grignard, la temperatura de la
mezcla de reacción puede ser de 120°C. La destilación del
disolvente puede ser continuada hasta que se hayan reco-
gido 1360 partes de destilado. El destilado puede conte-
ner el 50% del tetrahidrofurano añadido en el reactivo de
Grignard. La mezcla de reacción puede después ser enfria-
da a 30-50°C, y después mezclarse con 3750 partes de agua
y 806 partes de bicarbonato de sodio y 25 partes de San-
tomerse, haciendo precipitar con ello el difenil silano
diol. El pH de la mezcla puede ser entonces de 6'5. Des-
pués puede separarse una capa acuosa inferior. A la capa
orgánica pueden añadirse después 3500 partes de agua, que
disuelve 125 partes de tetrahidrofurano y hace precipitar
el difenil silano diol. Después puede ser filtrada la ma-
sa de reacción, y la torta del filtro resultante puede
ser lavada después con 1000 partes de agua. Pueden obte-
nerse 1330 partes de difenil silano diol crudo.

El difenil silano diol crudo puede ser disuelto des-
pués en 1800 partes de acetona, y puede tratarse después
con 20 partes de un agente decolorante y 20 partes de un
auxiliar de filtración. Después, la mezcla puede ser fil-
trada para separar las impurezas. El filtrado resultante
puede mezclarse después con 6000 partes de agua para pre-
cipitar difenil silano diol puro, que puede ser recupera-
do por filtración. El producto resultante puede ser seca



do después a temperatura ambiente hasta peso constante.

Pueden obtenerse 933 partes (un rendimiento de 86'3%) de difenil silano diol puro, con un punto de fusión de 150°C-152'5°C (en la literatura, 148-158°C), y un Karl Fischer de 16'6%.

EJEMPLO II

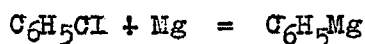
En este ejemplo, que sirve como control, 423 partes de fenil triclorosilano y 300 partes de xileno pueden ser introducidas en un recipiente de reacción. Pueden añadirse 840 partes de cloruro de fenil magnesio (en tetrahidrofurano) a la masa de reacción durante 90 minutos, y la temperatura puede aumentar exotérmicamente desde 30°C hasta 80°C. La masa de reacción puede mantenerse a 75°C -80°C durante 90 minutos más. La masa de reacción puede ser enfriada después a 35°C, y después puede ser hidrolizada por mezcla con 336 partes de bicarbonato de sodio y 1600 partes de agua, durante 30 minutos, hasta un pH final de 6'8. Después puede ser filtrada la masa de reacción, y la torta del filtro puede ser lavada con 1500 partes de agua. La torta del filtro puede ser secada después a 50°C hasta peso constante. Pueden obtenerse 210 partes de difenil silano diol, con un Karl Fischer de 16'4% y un p. de f. de 146-148°C. Esto representa un rendimiento del 48%.

De los Ejemplos I y II se deduce que la destilación del disolvente-complejo, por ej. el tetrahidrofurano, tal como se expone en la Memoria, permite un aumento en rendimiento del producto deseado desde 48% hasta 86%, o sea un aumento del 38% en rendimiento.



EJEMPLO III

5 En este Ejemplo, que representa la práctica de la
invención, puede ser preparado reactivo de Grignard de
cloruro de fenil magnesio introduciendo 230 partes de vi-
rutas de magnesio en un recipiente de reacción, que puede
ser purgado con nitrógeno gaseoso. 125 partes de tetrahi-
drofurano pueden ser añadidas lentamente a la mezcla de
reacción, juntamente con una mezcla de iniciación que con-
10 tiene 65 partes de clorobenceno y 10 partes de bromoben-
ceno. La mezcla, que contiene 2640 partes de tetrahidro-
furano y 980 partes de clorobenceno, puede ser agitada.
Durante la adición, puede aplicarse y mantenerse calenta-
miento exterior hasta que la temperatura aumenta hasta
aproximadamente 75°C, y después la reacción puede trans-
15 currir exotérmicamente, llegando la temperatura del reci-
piente incluso hasta 80°C, a lo largo de un periodo de 90
minutos. Puede quitarse el calentamiento exterior, y la
reacción puede continuar además durante aproximadamente
60 minutos. La mezcla de reacción del compuesto de Grig-
20 nard puede ser enfriada hasta la temperatura ambiente.



708 partes de tetracloruro de silicio y 765 partes de
ISOPAR E, disolvente hidrocarbonado parafínico, pueden
25 ser introducidas en un recipiente de reacción. El reacti-
vo de Grignard preparado anteriormente puede ser añadido
después a la mezcla bien agitada durante aproximadamente
5 horas, dejando que la temperatura ascienda hasta aproxi-
madamente 85°C. Después pueden añadirse a la masa de reac-
30 ción conjunta 390 partes de disolvente hidrocarbonado



ISOPAR E. La masa de reacción puede ser calentada después para separar por destilación 2125 partes de destilado, que puede contener 38% del tetrahidrofurano añadido al reactivo de Grignard. Después, la masa de reacción
5 puede ser enfriada a 25°C, y mezclada con aproximadamente 6500 partes de agua y 700 partes de bicarbonato de sodio, manteniendo mientras tanto la temperatura por debajo de 35°C. El pH de la mezcla puede ser entonces de 6.5. Después puede ser separada una capa acuosa inferior. Pueden
10 añadirse después a la capa orgánica 6.000 partes de agua. La masa de reacción puede ser filtrada después, y la torta del filtro resultante puede después ser lavada con 1000 partes de agua. Pueden obtenerse 1178 partes de difenil silano diol crudo.

15 El difenil silano diol crudo puede ser disuelto después en 2200 partes de acetona a la que se han añadido 9 partes de agente decolorante y 9 partes de un material auxiliar de filtración. Después, puede ser filtrada la mezcla para separar las impurezas. El filtrado resultante
20 puede ser mezclado después con 6983 partes de agua, y ser agitado. El difenil silano diol precipitado puede ser después filtrado y lavado con 1000 partes de agua. Después, el producto puede ser secado hasta peso constante. Pueden obtenerse así 852 partes de difenil silano diol que tiene
25 un punto de fusión de 146°C -149°C (en la literatura, 148-158°C), y un Karl Fischer de 16.6%. Esto representa un rendimiento del 95%.

30 Aunque esta invención ha sido explicada haciendo referencia a ejemplos ilustrativos preferidos, para los expertos en la técnica será evidente que pueden hacerse a



la misma varias modificaciones y cambios que están comprendidos en el alcance de esta invención.

La presente solicitud que corresponde a la formulada en Estados Unidos de América, con fecha 29 de marzo de 1966, bajo el número 538.208, se acoge a los beneficios del artículo 51 del vigente Estatuto sobre Propiedad Industrial.

N O T A

Los puntos de invención propia y nueva que se presentan para que sean objeto de esta solicitud de Patente de Invención en España, por VEINTE años, son los siguientes:

1.- Un procedimiento para preparar un difenil silano diol, que comprende (a) mantener una mezcla de reacción que contiene un hidrocarburo inerte y $\phi_a SiX_b$, donde ϕ es un radical fenilo, X es un halogenuro activo, $a + b = 4$, y a es menos de 2; (b) añadir a dicha mezcla de reacción ϕMgX en disolución-complejo con un agente formador de complejos seleccionado del grupo que consta de tetrahidrofurano, tetrahiropirano, 2-metiltetrahidrofurano, 2-etoxitetrahiropirano, éter tetrahidrofurfuril etílico, dihiropirano, y N-metilmorfolina; (c) mantener una relación molar, en dicha mezcla de reacción, de (b-2) moles de ϕMgX por mol de $\phi_a SiX_b$; (d) agitar dicha mezcla de reacción durante dicha adición, con lo que dicha mezcla de reacción es mantenida sustancialmente uniforme, formando



así $\phi_2\text{SiX}_2$; (e) destilar una parte de dicho agente formador de complejos a partir de dicha mezcla de reacción, formando así una mezcla de reacción reducida que contiene menos de aproximadamente dos moles de agente formador de complejo por mol de magnesio presente; (f) hidrolizar dicha mezcla de reacción, haciendo precipitar así difenil silano diol; (g) recuperar dicho difenil silano diol precipitado.

2.- Un procedimiento para preparar un difenil silano diol según se reivindica en la reivindicación 1, en el que $\phi_2\text{SiX}_b$ es tetracloruro de silicio.

3.- Un procedimiento para preparar un difenil silano diol según se reivindica en la reivindicación 1, en el que $\phi_2\text{SiX}_b$ es fenil triclorosilano.

4.- Un procedimiento para preparar un difenil silano diol según se reivindica en la reivindicación 1, en el que dicho hidrocarburo inerte tiene un punto de ebullición de $100^\circ\text{C} - 150^\circ\text{C}$.

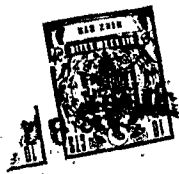
5.- Un procedimiento para preparar un difenil silano diol según se reivindica en la reivindicación 1, en el que dicho hidrocarburo inerte es un hidrocarburo alifático parafínico.

6.- Un procedimiento para preparar un difenil silano diol según se reivindica en la reivindicación 1, en el que dicho agente formador de complejo es tetrahidrofuran.

7.- Un procedimiento para preparar un difenil silano diol según se reivindica en la reivindicación 1, en el que dicho ϕMgX es cloruro de fenil magnesio.

8.- Un procedimiento para preparar un difenil silano diol según se reivindica en la reivindicación 1, en el que dicho $\phi_2\text{SiX}_b$ es difenil diclorosilano.

338559



no diol según se reivindica en la reivindicación 1, en el que la parte destilada de dicho agente formador de complejo es el 25% - 70% del agente formador de complejo presente.

5 9.- Un procedimiento para preparar un difenil silano diol según se reivindica en la reivindicación 1, en el que dicha hidrólisis se lleva a cabo en presencia del ión de bicarbonato.

10 10.- Un procedimiento para preparar un difenil silano diol que comprende (a) mantener una mezcla de reacción que contiene un hidrocarburo inerte y tetracloruro de silicio; (b) añadir a dicha mezcla de reacción cloruro de fenil magnesio en disolución-complejo con un agente de tetrahidrofurano formador de complejo; (c) mantener una
15 relación molar en dicha mezcla de reacción de 1 mol de cloruro de fenil magnesio por mol de tetracloruro de silicio; (d) agitar dicha mezcla de reacción durante dicha agitación, con lo que dicha mezcla es mantenida sustancialmente uniforme, formando así difenil dicloro silano;
20 (e) hidrolizar dicha mezcla de reacción a un pH de 6 - 7, haciendo precipitar así difenil silano diol; (f) recuperar dicho difenil silano diol precipitado.

25 11.- Un procedimiento para preparar un difenil silano diol.

Tal y como se ha descrito en la Memoria que antecede, y para los fines que se han especificado.

338559



La presente Memoria consta de veinte hojas, escritas a máquina por una sola de sus caras.

Madrid,

8 SEP 1967

P. A.

Aiberia de Elizaburu
Per Pocos

338559