

(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12月5日(05.12.2024)



(10) 国際公開番号
WO 2024/247983 A1

(51) 国際特許分類:

C08G 73/10 (2006.01) C07C 53/122 (2006.01)
C07B 61/00 (2006.01) C07C 55/06 (2006.01)
C07C 53/02 (2006.01) C07C 237/40 (2006.01)
C07C 53/08 (2006.01)

(21) 国際出願番号: PCT/JP2024/019485

(22) 国際出願日: 2024年5月28日(28.05.2024)

(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 2023-091357 2023年6月2日(02.06.2023) JP

(71) 出願人: 東レ株式会社 (TORAY INDUSTRIES, INC.) [JP/JP]; 〒1038666 東京都中央区日本橋室町2丁目1番1号 Tokyo (JP).

(72) 発明者: 杉崎 祐真 (SUGISAKI Yuma); 〒5208558 滋賀県大津市園山1丁目1番1号 東レ株式会社 滋賀事業場内 Shiga (JP). 宮本 悠平 (MIYAMOTO Yuhei); 〒5208558 滋賀県大津市園山1丁目1番1号 東レ株式会社 滋賀事業場内 Shiga (JP). 三好 一登 (MIYOSHI Kazuto); 〒5208558 滋賀県大津市園山1丁目1番1号 東レ株式会社 滋賀事業場内 Shiga (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.

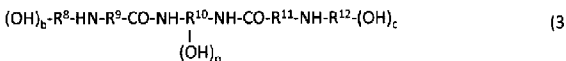
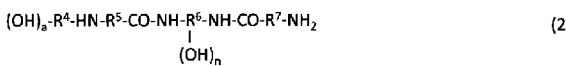
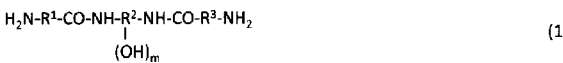
(84) 指定国(表示のない限り、全ての種類の広域保護が可能): ARIPO (BW, CV, GH, GM, KE, LR, LS, MW, MZ, NA, RW, SC, SD, SL, ST, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), ユーラシア (AM, AZ, BY, KG, KZ, RU, TJ, TM), ヨーロッパ (AL, AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HR, HU, IE, IS, IT, LT, LU, LV, MC, ME, MK, MT, NL, NO, PL, PT, RO, RS, SE, 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: COMPOSITION

(54) 発明の名称: 組成物



(57) Abstract: The present invention provides a composition having a controlled particle shape. The present invention is a composition containing at least a diamine compound (A) represented by formula (1) and a compound (B), wherein the compound (B) contains a compound represented by formula (2) and/or a compound represented by formula (3).

(57) 要約: 本発明は、粒形を制御した組成物を提供する。本発明は、少なくとも式(1)で表されるジアミン化合物(A)、および化合物(B)を含有する組成物であって、前記化合物(B)が、式(2)で表される化合物および/または式(3)で表される化合物を含む組成物である。



WO 2024/247983 A1

明 細 書

発明の名称：組成物

技術分野

[0001] 本発明は、組成物に関する。

背景技術

[0002] ジアミン化合物は、ポリイミドやポリアミドなどの耐熱性ポリマーの原料として重要である。従来このようなものとしては、ビス（アミノーヒドロキシフェニル）ヘキサフルオロプロパン）に由来する残基およびフェノール性水酸基を有するジアミン化合物が使用されている（特許文献1）。また、このジアミン化合物を簡便に製造するために、ニトロベンゾイルクロリドとジアミノフェノールを反応させて、還元する方法の検討がなされてきた（特許文献2、3）。

先行技術文献

特許文献

[0003] 特許文献1：特開平11-199577号公報

特許文献2：特開2014-43434号公報

特許文献3：特開2016-117688号公報

発明の概要

発明が解決しようとする課題

[0004] 特許文献1～3に記載されているジアミン化合物は、粒形を制御して得ることが困難であるという問題があった。ジアミン化合物の粒形を制御して得ることは、ポリマー製造時の反応を均一に進める上で重要であることが判明した。

[0005] そこで本発明は、粒形を制御した組成物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

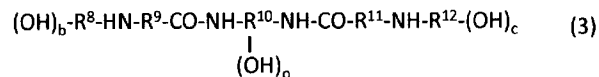
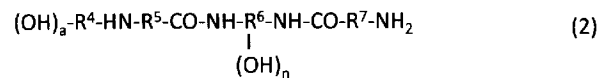
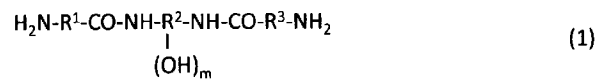
[0006] 本発明者は、鋭意検討の結果、ジアミン化合物および特定の化学構造を有する化合物を使用することにより、組成物の粒形を制御できることを見出し

、本発明を完成した。

[0007] すなわち、上記目的を達成するため、本発明は主として以下の構成を採用する。

[1] 少なくとも式(1)で表されるジアミン化合物(A)、および化合物(B)を含有する組成物であって、前記化合物(B)が、式(2)で表される化合物および／または式(3)で表される化合物を含む組成物。

[0008] [化1]



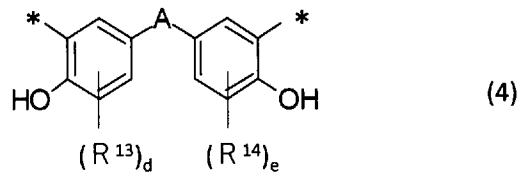
[0009] (式(1)中、 R^1 および R^3 は、それぞれ独立に、炭素数2～12個を有する2価の有機基を示し、 R^2 は、炭素数2～25個を有する3～6価の有機基を示し、 m は、1から4までの整数を示す。

式(2)中、 R^4 は、炭素数1～6個を有する2～4価の有機基を示し、 a は、1から3までの整数を示し、 R^5 および R^7 は、それぞれ独立に、炭素数2～12個を有する2価の有機基を示し、 R^6 は、炭素数2～25個を有する3～6価の有機基を示し、 n は、1から4までの整数を示す。

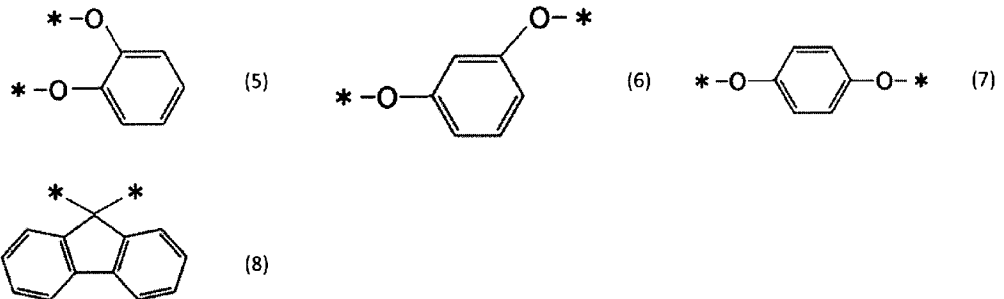
式(3)中、 R^8 および R^{12} は、それぞれ独立に、炭素数1～6個を有する2～4価の有機基を示し、 b および c は、それぞれ独立に、1から3までの整数を示し、 R^9 および R^{11} は、それぞれ独立に、炭素数2～12個を有する2価の有機基を示し、 R^{10} は、炭素数2～25個を有する3～6価の有機基、 o は1から4までの整数を示す。)

[2] 前記式(2)中の $\text{R}^6-(\text{OH})_n$ および前記式(3)中の $\text{R}^{10}-(\text{OH})_o$ が、式(4)に表される構造である[1]に記載の組成物

[0010] [化2]



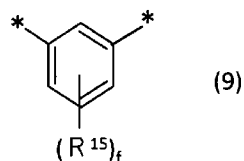
[0011] [化3]



[0012] (式(4)から式(8)中、*は結合部を示し、Aは、 $-\text{O}-$ 、 $-\text{S}-$ 、 $-\text{CO}-$ 、 $-\text{SO}_2-$ 、 $-\text{CH}_2-$ 、 $-\text{C}(\text{CH}_3)_2-$ 、 $-\text{C}(\text{CH}_3)(\text{CF}_3)-$ 、 $-\text{C}(\text{CF}_3)_2-$ 、 $-\text{C}(\text{CH}_3)[\text{CH}_2\text{CH}(\text{CH}_3)_2]-$ もしくは式(5)から式(8)のいずれかの2価の基を示し、 R^{13} および R^{14} は、それぞれ独立に、ハロゲン原子、水酸基、ニトロ基、シアノ基、アセチル基、カルボキシ基、エステル基、アミド基、イミド基およびウレア基のいずれかを有する炭素数が0～6個の1価の有機基を示し、dおよびeは、それぞれ独立に、0～3の範囲内の整数を示す。)

[3] 前記式(2)中の R^5 および R^7 、ならびに前記式(3)中の R^9 および R^{11} が、式(9)に表される構造である、[1]または[2]に記載の組成物。

[0013] [化4]

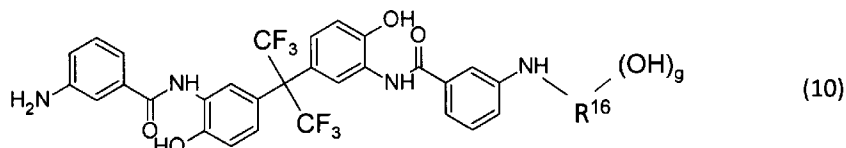


[0014] (式(9)中、*は結合部を示し、 R^{15} は、ハロゲン原子、水酸基、ニトロ基、シアノ基、アセチル基、カルボキシ基、エステル基、アミド基、イミ

ド基およびウレア基のいずれかを有する炭素数が0～6個の1価の有機基を示し、fは、0～3の範囲内の整数を示す。)

[4] 前記式(2)で表される化合物が、式(10)で表される化合物である、[1]～[3]のいずれかに記載の組成物。

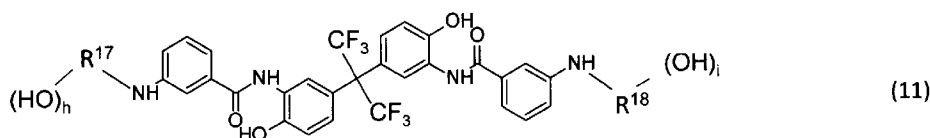
[0015] [化5]



[0016] (式(10)中、R¹⁶は、炭素数1～6個を有する2～4価の有機基を示し、gは、1から3までの整数を示す。)

[5] 前記式(3)で表される化合物が、式(11)で表される化合物である、[1]～[4]のいずれかに記載の組成物。

[0017] [化6]



[0018] (式(11)中、R¹⁷およびR¹⁸は、それぞれ独立に、炭素数1～6個を有する2～4価の有機基を示し、hおよびiは、それぞれ独立に、1から3までの整数を示す。)

[6] 前記組成物100重量部に対して、前記化合物(B)の含有量が0.001重量部以上、1.000重量部以下である、[1]～[5]のいずれかに記載の組成物。

[7] さらに、有機酸を含む[1]～[6]のいずれかに記載の組成物。

[8] 前記有機酸が、ギ酸、酢酸、プロピオン酸、リンゴ酸、シュウ酸およびクエン酸からなる群より選択される少なくとも1種類を含む、[7]に記載の組成物。

[9] 前記組成物100重量部に対して、前記有機酸の含有量が0.2×10⁻⁴重量部以上、100.0×10⁻⁴重量部以下である、[7]または[8]

」のいずれかに記載の組成物。

発明の効果

[0019] 本発明により、粒形を制御した組成物を提供することができる。

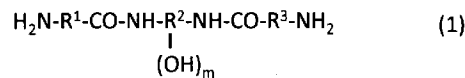
発明を実施するための形態

[0020] 本発明の実施の形態について詳細に説明する。

[0021] <式（１）で表されるジアミン化合物（Ａ）>

本発明の組成物は、式（１）で表されるジアミン化合物（Ａ）を含有する。

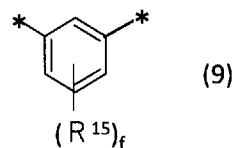
[0022] [化7]



[0023] （式（１）中、 R^1 および R^3 は、それぞれ独立に、炭素数２～１２個を有する２価の有機基を示し、 R^2 は、炭素数２～２５個を有する３～６価の有機基を示し、 m は、１から４までの整数を示す。）

前記 R^1 および R^3 は、より本発明の効果を奏するために、式（９）で表される構造が好ましい。

[0024] [化8]



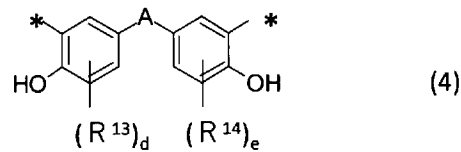
[0025] （式（９）中、*は結合部を示し、 R^{15} は、ハロゲン原子、水酸基、ニトロ基、シアノ基、アセチル基、カルボキシル基、エステル基、アミド基、イミド基およびウレア基のいずれかを有する炭素数が０～６個の１価の有機基を示し、 f は、０～３の範囲内の整数を示す。）

前記式（９）の f は０が好ましい。

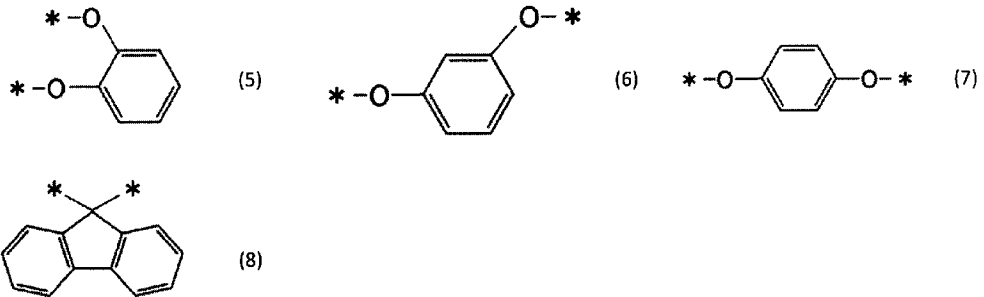
[0026] 前記式（１）の $\text{R}^2-(\text{OH})_m$ は、より本発明の効果を奏するために、式（４）で表される構造であることが好ましい。

[0027]

[化9]



[0028] [化10]



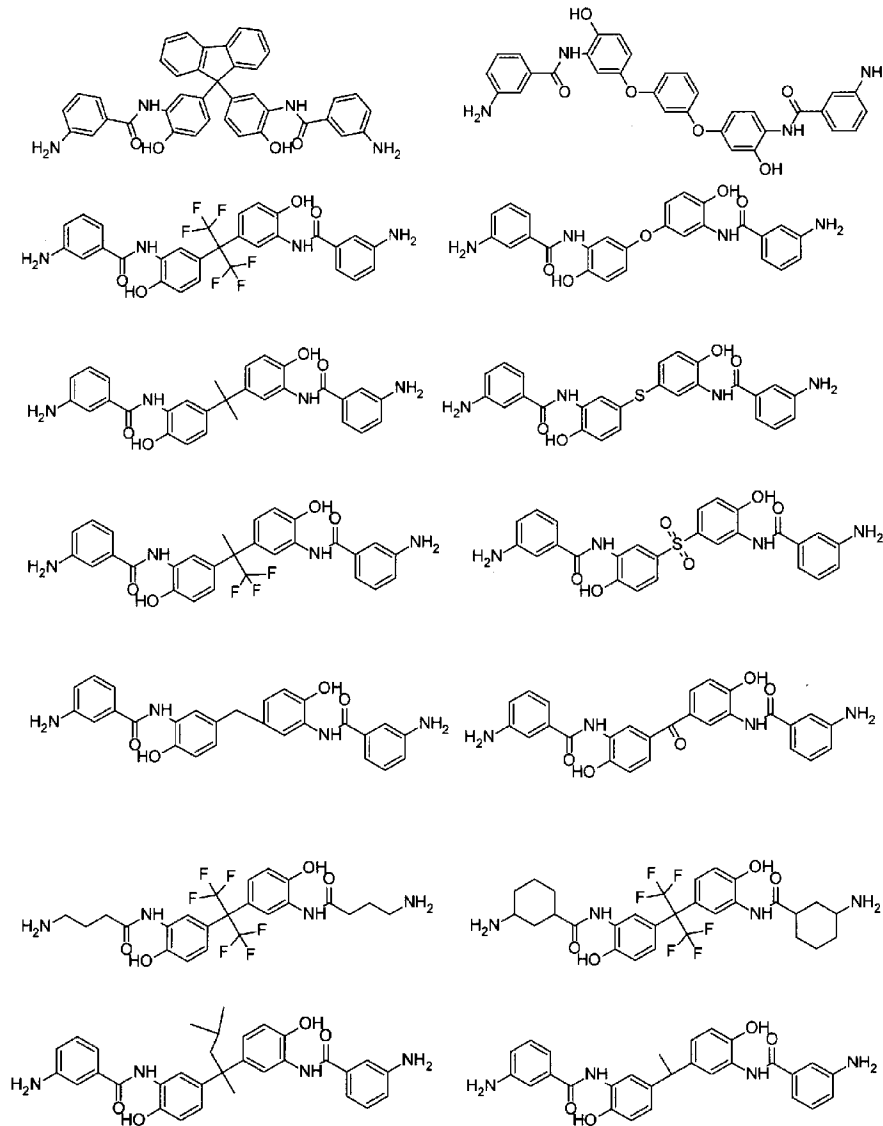
[0029] (式(4)から式(8)中、*は結合部を示し、Aは、 $-\text{O}-$ 、 $-\text{S}-$ 、 $-\text{CO}-$ 、 $-\text{SO}_2-$ 、 $-\text{CH}_2-$ 、 $-\text{C}(\text{CH}_3)_2-$ 、 $-\text{C}(\text{CH}_3)(\text{CF}_3)-$ 、 $-\text{C}(\text{CF}_3)_2-$ 、 $-\text{C}(\text{CH}_3)[\text{CH}_2\text{CH}(\text{CH}_3)_2]-$ もしくは式(5)から式(8)のいずれかの2個の基を示し、 R^{13} および R^{14} は、それぞれ独立に、ハロゲン原子、水酸基、ニトロ基、シアノ基、アセチル基、カルボキシル基、エステル基、アミド基、イミド基およびウレア基のいずれかを有する炭素数が0～6個の1個の有機基を示し、 d および e は、それぞれ独立に、0～3の範囲内の整数を示す。)

前記式(4)のAは、好ましくは $-\text{CH}_2-$ 、 $-\text{C}(\text{CH}_3)_2-$ 、 $-\text{C}(\text{CH}_3)(\text{CF}_3)-$ 、 $-\text{C}(\text{CF}_3)_2-$ 、 $-\text{C}(\text{CH}_3)[\text{CH}_2\text{CH}(\text{CH}_3)_2]-$ もしくは、式(8)が好ましい。また、 d および e は、0が好ましい。

[0030] 式(1)で表されるジアミン化合物(A)として、具体的には、例えば、以下に示すような化合物を用いることができる。

[0031]

[化11]



[0032] <式(1)で表されるジアミン化合物(A)の製造方法>

本発明における式(1)で表されるジアミン化合物(A)は、公知の方法により合成される。

例えば、ヒドロキシジアミノ化合物とニトロカルボン酸やニトロカルボン酸クロリドを反応させた後に、得られたジニトロ化合物を還元させる方法が挙げられる。

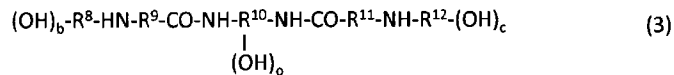
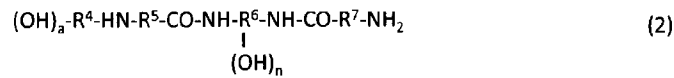
[0033] <化合物(B)>

本発明の組成物は、化合物(B)を含有する。

前記化合物(B)は、式(2)で表される化合物および／または下記式(3

)で表される化合物(B)を含有する。組成物が、化合物(B)を含有することにより、本発明の組成物の粒形を制御することができる。

[0034] [化12]

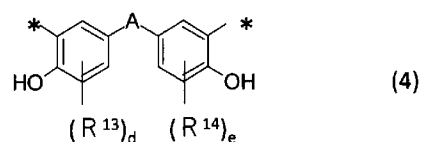


[0035] (式(2)中、 R^4 は、炭素数1～6個を有する2～4価の有機基を示し、 a は、1から3までの整数を示し、 R^5 および R^7 は、それぞれ独立に、炭素数2～12個を有する2価の有機基を示し、 R^6 は、炭素数2～25個を有する3～6価の有機基を示し、 n は、1から4までの整数を示す。

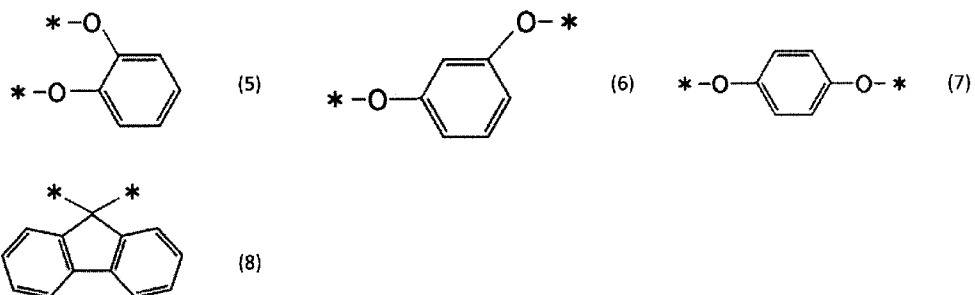
[0036] 式(3)中、 R^8 および R^{12} は、それぞれ独立に、炭素数1～6個を有する2～4価の有機基を示し、 b および c は、それぞれ独立に、1から3までの整数を示し、 R^9 および R^{11} は、それぞれ独立に、炭素数2～12個を有する2価の有機基を示し、 R^{10} は、炭素数2～25個を有する3～6価の有機基、 o は1から4までの整数を示す。)

前記式(2)中の $\text{R}^6\text{-(OH)}_n$ および前記式(3)中の $\text{R}^{10}\text{-(OH)}_o$ は、粒形をより制御する観点から、式(4)で表される構造が好ましい。

[0037] [化13]



[0038] [化14]

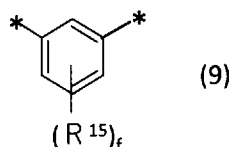


[0039] (式(4)から式(8)中、*は結合部を示し、Aは、 $-\text{O}-$ 、 $-\text{S}-$ 、 $-\text{CO}-$ 、 $-\text{SO}_2-$ 、 $-\text{CH}_2-$ 、 $-\text{C}(\text{CH}_3)_2-$ 、 $-\text{C}(\text{CH}_3)(\text{CF}_3)-$ 、 $-\text{C}(\text{CF}_3)_2-$ 、 $-\text{C}(\text{CH}_3)[\text{CH}_2\text{CH}(\text{CH}_3)_2]-$ もしくは式(5)から式(8)のいずれかの2価の基を示し、 R^{13} および R^{14} は、それぞれ独立に、ハロゲン原子、水酸基、ニトロ基、シアノ基、アセチル基、カルボキシ基、エステル基、アミド基、イミド基およびウレア基のいずれかを有する炭素数が0～6個の1価の有機基を示し、dおよびeは、それぞれ独立に、0～3の範囲内の整数を示す。)

前記式(4)のAは、好ましくは $-\text{CH}_2-$ 、 $-\text{C}(\text{CH}_3)_2-$ 、 $-\text{C}(\text{CH}_3)(\text{CF}_3)-$ 、 $-\text{C}(\text{CF}_3)_2-$ 、 $-\text{C}(\text{CH}_3)[\text{CH}_2\text{CH}(\text{CH}_3)_2]-$ もしくは式(8)であり、 $-\text{C}(\text{CF}_3)_2-$ がより好ましい。dおよびeは、0が好ましい。

[0040] 前記式(2)中 R^5 および R^7 、ならびに前記式(3)中の R^9 および R^{11} は、式(9)で表される構造が好ましい。

[0041] [化15]



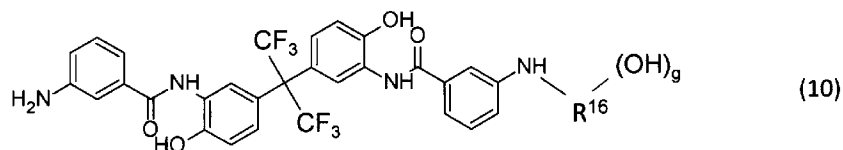
[0042] (式(9)中、*は結合部を示し、 R^{15} は、ハロゲン原子、水酸基、ニトロ基、シアノ基、アセチル基、カルボキシ基、エステル基、アミド基、イミド基およびウレア基のいずれかを有する炭素数が0～6個の1価の有機基を示し、fは、0～3の範囲内の整数を示す。)

前記式(9)のfは0が好ましい。

[0043] 前記式(2)で表される化合物は、式(10)で表される化合物であることが好ましい。組成物は、式(10)で表される化合物において、異なる構造である化合物を2種以上含有してもよい。

[0044]

[化16]

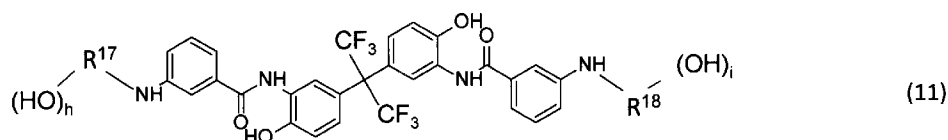


[0045] (式(10)中、 R^{16} は、炭素数1～6個を有する2～4価の有機基を示し、 g は、1から3までの整数を示す。)

前記 R^{16} としてはメチレン基、エチレン基、プロピレン基、ブチレン基、ブテニレン基であることが好ましく、ブチレン基またはブテニレン基であることがより好ましい。 g は1であることが好ましい。

[0046] 前記式(3)で表される化合物は、式(11)で表される化合物であることが好ましい。組成物は、式(11)で表される化合物において、異なる構造である化合物を2種以上含有してもよい。

[0047] [化17]



[0048] (式(11)中、 R^{17} および R^{18} は、それぞれ独立に、炭素数1～6個を有する2～4価の有機基を示し、 h および i は、それぞれ独立に、1から3までの整数を示す。)

前記 R^{17} および R^{18} としてはメチレン基、エチレン基、プロピレン基、ブチレン基、ブテニレン基であることが好ましく、ブチレン基またはブテニレン基であることがより好ましい。 h および i は1であることが好ましい。

[0049] 本発明において、化合物(B)の含有量は、粒形を制御する観点から、組成物100重量部に対して、0.001重量部以上が好ましく、0.010重量部以上がより好ましい。また、同観点から、組成物100重量部に対して、1.000重量部以下が好ましく、0.500重量部以下がより好ましい。

[0050] <化合物(B)の製造方法>

本発明の化合物（B）の合成方法について説明する。

[0051] 上記式（2）で表される化合物を合成する場合、例えば、まず式（1）で表されるジアミン化合物を溶媒に溶解させ、 R^4 に相当するエポキシ化合物もしくはエーテル化合物を滴下する。その後 $20^{\circ}\text{C}\sim 80^{\circ}\text{C}$ で加熱攪拌を行い、4時間～12時間反応させて、濃縮および精製することで得ることができる。

[0052] 上記式（3）で表される化合物も、式（2）で表される化合物を合成する場合と同様に合成することができる。すなわち、式（1）で表されるジアミン化合物を溶媒に溶解させ、 R^8 および R^{12} に相当するエポキシ化合物もしくはエーテル化合物を滴下する。その後加熱攪拌を行い反応させて、濃縮精製することで得ることができる。

[0053] <有機酸>

本発明の組成物は、粒形を制御する観点から、有機酸が含まれていることが好ましい。ここで有機酸とは、ギ酸、酢酸、プロピオン酸、リンゴ酸、シュウ酸、クエン酸などのカルボキシ基を含有する分子量300以下の化合物を指す。有機酸としては、ギ酸、酢酸、プロピオン酸、リンゴ酸、シュウ酸およびクエン酸からなる群より選択される少なくとも1種類を含むことが好ましく、酢酸、ギ酸およびシュウ酸からなる群より選択される少なくとも1種が含まれていることがより好ましい。

[0054] 本発明において、有機酸の含有量は、粒形を制御する観点から、組成物100重量部に対して、 0.2×10^{-4} 重量部以上が好ましく、 1.0×10^{-4} 重量部以上がより好ましい。また、同観点から、組成物100重量部に対して、 100.0×10^{-4} 重量部以下が好ましく、 10.0×10^{-4} 重量部以下がより好ましい。

[0055] <ポリマーの製造方法>

本発明の組成物はポリマーを重合する際のモノマーとして使用できる。ポリマーとしては、ジアミン化合物をモノマーとして使用するものであれば、特に制限はなく、ポリイミド、ポリベンゾオキサゾール、これらの前駆体

や、それらの共重合体のモノマーとして使用することができる。

例えば、ポリイミドを製造する場合には、前記組成物と所定の酸無水物と反応させることで得ることができる。反応させる条件は、公知の方法を使用でき、例えば適当な温度と時間で加熱処理して付加反応を進行させればよい。この加熱処理時間は1時間～12時間実施することが好ましい。一例としては、60℃で4時間加熱処理する例が挙げられる。加熱処理温度としては、40℃以上100℃以下が好ましい。

実施例

[0056] 以下、実施例等をあげて本発明を説明するが、本発明はこれらの例によって限定されるものではない。

[0057] 各実施例および比較例における評価方法を以下に示す。

[0058] (1) 組成物中の化合物(B)の含有量評価

各合成例にて得られた組成物10mgを、10mLメスフラスコに秤量後、テトラヒドロフラン2mLを添加して溶解させたのちに、アセトニトリルで定容したものを試料溶液とした。

[0059] 続いて、HPLC装置LC-30A(島津製作所(株)製)を用いて、質量分析計をQ Exactive(Thermo Fisher Scientific社製)、カラムをODS(オクタデシルシリル)系カラム、カラム温度を45℃、移動相を10mM酢酸アンモニウム水溶液とアセトニトリルのグラジエント条件として、流速0.3mL/min、注入量を3μL、イオン化をESI(エレクトロスプレーイオン化)、MS検出は負イオン検出、測定モードをm/z100~1200、検出波長を254nmとして、LC/UV-MS分析を実施した。分離した各ピーク面積%から、含有量を算出した。ここで、ピーク面積%とは、分離した各ピーク面積値を合計した値を100とした際の割合を示す。

[0060] (2) 組成物中の有機酸の含有量評価

各合成例にて得られた組成物1gに超純水30mLを加えて1時間振とうした。その後、メンブレンフィルター(孔径:0.22μm)および固相抽

出カートリッジで処理した液について、イオンクロマトグラフィー装置ICS-6000 (Thermo Fisher Scientific製) を用いて、分離カラムはIonPac AS11-HC-4 μm 、カラムサイズは2 mm ϕ $\times$ 250 mm、溶離液を水酸化カリウムのグラジエント条件、試料注入量を100 μL 、検出器を電気伝導度計として、イオンの分析を実施した。有機酸を同一条件でイオン分析し検量線を作成することで、各含有量を算出した。

[0061] (3) 組成物の粒度測定

各合成例で得られた試料をビーカーにとり、分散媒として0.5重量%ヘキサメタリン酸ナトリウム水溶液を加え、超音波を印加させて攪拌した。その後レーザー回折式粒度分布測定装置SALD-3100 (島津製作所(株)製)を用いて、屈折率を1.70-0.2i、測定吸光度範囲を0.010以上0.200以下、測定範囲を0.05 μm 以上3000.00 μm 以下として、粒度分布測定を実施した。

[0062] 粒形を制御できているかどうかの指標として、D0 (積算粒形が0%となるところの最大粒子径)、D10 (積算粒形が10%となるところの粒子径)、D90 (積算粒形が90%となるところの粒子径)、D100 (積算粒形が100%となるところの粒子径)を記録して、

D100-D0の数値および、D90-D10の数値を算出した。これらの値が小さいほど、粒形バラつきが制御できていることを示しており、以下判断基準で評価した。

[0063] 粒度測定の判断基準 (D100-D0) A, B, C, D, Eの順で良好である。

[0064] A : 225.0 μm 以下
 B : 225.0 μm より大きく295.0 μm 以下
 C : 295.0 μm より大きく340.0 μm 以下
 D : 340.0 μm より大きく400.0 μm 以下
 E : 400.0 μm より大きい

粒度測定の見断基準（D90-D10） A, B, C, Dの順で良好である。

- [0065] A : 38.0 μm 以下
 B : 38.0 μm より大きく50.0 μm 以下
 C : 50.0 μm より大きく70.0 μm 以下
 D : 70.0 μm より大きい。

[0066] （4）溶剤への溶解性評価

100 mL丸底フラスコにNMP（N-メチル-2-ピロリドン）を45 g投入し、40℃で攪拌しながら、各合成例で得られた試料5.0 gを添加した。添加後に、固形物が完全に溶解するまで目視で確認し、添加後から完全溶解したまでの時間を記録した。完全溶解までの時間が短いほど良好である。

[0067] ＜合成例1 ジアミン化合物A-1の合成＞

ビス（3-アミノ-4-ヒドロキシフェニル）ヘキサフルオロプロパン18.3 g（0.05モル）をアセトン100 mL、プロピレンオキシド17.4 g（0.30モル）に溶解させ、-15℃に冷却した。ここに3-ニトロベンゾイルクロリド20.4 g（0.11モル）をアセトン100 mLに溶解させた溶液を滴下した。滴下終了後、-15℃で4時間反応させ、その後室温に戻した。溶液をロータリーエバポレーターで濃縮し、得られた固体をテトラヒドロフランとエタノールの溶液で再結晶した。再結晶して集めた固体をエタノール100 mLとテトラヒドロフラン300 mLに溶解させて、5%パラジウム-炭素を2 g加えて、激しく攪拌させた。ここに水素を風船で導入して、還元反応を室温で行った。約2時間後、風船がこれ以上しぼまないことを確認して反応を終了させた。反応終了後、ろ過して触媒であるパラジウム化合物を除き、ロータリーエバポレーターで濃縮し、ジアミン化合物A-1を得た。

[0068] ＜合成例2 ジアミン化合物A-2の合成＞

合成例1のビス（3-アミノ-4-ヒドロキシフェニル）ヘキサフルオロ

プロパン 18.3 g (0.05 モル) を、ビス (3-アミノ-4-ヒドロキシフェニル) プロパン 12.9 g (0.05 モル) に変更する以外は合成例 1 同様の作業を行い、ジアミン化合物 A-2 を得た。

[0069] <合成例 3 ジアミン化合物 A-3 の合成>

合成例 1 の 3-ニトロベンゾイルクロリド 20.4 g (0.11 モル) を 4-ニトロベンゾイルクロリド 20.4 g (0.11 モル) に変更する以外は合成例 1 同様の作業を行い、ジアミン化合物 A-3 を得た。

[0070] <合成例 4 ジアミン化合物 A-4 の合成>

合成例 3 のビス (3-アミノ-4-ヒドロキシフェニル) ヘキサフルオロプロパン 18.3 g (0.05 モル) を 2,4-ジアミノフェノール 6.2 g (0.05 モル) に変更する以外は合成例 3 同様の作業を行い、ジアミン化合物 A-4 を得た。

[0071] <合成例 5 ジアミン化合物 A-5 の合成>

合成例 1 の 3-ニトロベンゾイルクロリド 20.4 g (0.11 モル) を 3-ニトロ-4-メチルベンゾイルクロリド 22.0 g (0.11 モル) に変更する以外は合成例 1 同様の作業を行い、ジアミン化合物 A-3 を得た。

[0072] <合成例 6 ジアミン化合物 A-6 の合成>

合成例 1 のビス (3-アミノ-4-ヒドロキシフェニル) ヘキサフルオロプロパン 18.3 g (0.05 モル) を、2,4-ジアミノフェノール 6.2 g (0.05 モル) に変更する以外は合成例 1 同様の作業を行い、ジアミン化合物 A-6 を得た。

[0073] <合成例 7 ジアミン化合物 A-7 の合成>

合成例 1 のビス (3-アミノ-4-ヒドロキシフェニル) ヘキサフルオロプロパン 18.3 g (0.05 モル) を、9,9'-ビス (3-アミノ-4-ヒドロキシフェニル) フルオレン 19.0 g (0.05 モル) に変更する以外は合成例 1 同様の作業を行い、ジアミン化合物 A-7 を得た。

[0074] <合成例 8 ジアミン化合物 A-8 の合成>

合成例 1 のビス (3-アミノ-4-ヒドロキシフェニル) ヘキサフルオロ

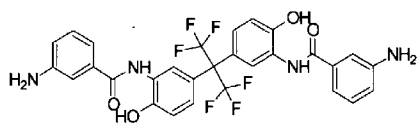
プロパン 18.3 g (0.05 モル) を、2, 2-ビス (3-アミノ-4-ヒドロキシフェニル) -4-メチルペンタン 15.0 g (0.05 モル) に変更する以外は合成例 1 同様の作業を行い、ジアミン化合物 A-8 を得た。

[0075] <合成例 9 ジアミン化合物 A-9 の合成>

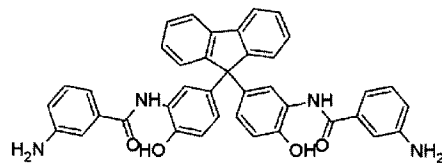
合成例 1 のビス (3-アミノ-4-ヒドロキシフェニル) ヘキサフルオロプロパン 18.3 g (0.05 モル) を、ビス (3-アミノ-4-ヒドロキシフェニル) スルホン 14.0 g (0.05 モル) に変更する以外は合成例 1 同様の作業を行い、ジアミン化合物 A-9 を得た。

[0076]

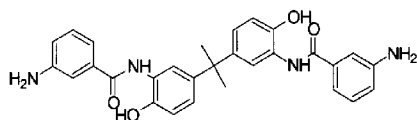
[化18]



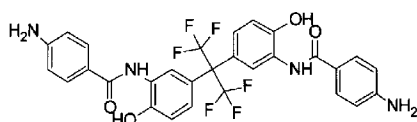
A - 1



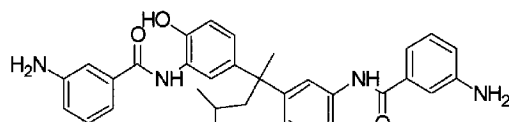
A - 7



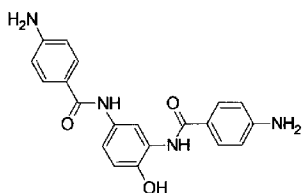
A - 2



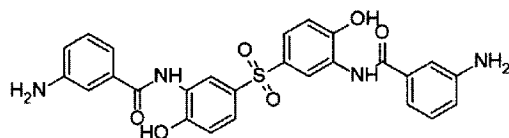
A - 3



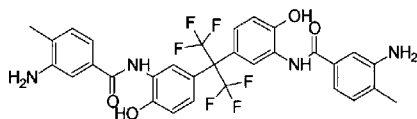
A - 8



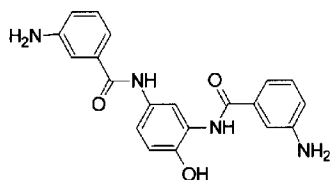
A - 4



A - 9



A - 5



A - 6

[0077] <合成例10 化合物B-1の合成>

合成例1で得たジアミン化合物A-1を12.1g(0.02モル)をトルエン80mL、テトラヒドロフラン1.4g(0.02モル)に溶解させ、酢酸0.1mgを加えた後で、60℃8時間窒素雰囲気下で攪拌した。その後純水を100mL加えた後、分液ロートで水相と油相を分離した。得ら

れた油層をロータリーエバポレーターで濃縮し、得られた固体をメタノール溶液で再結晶して、ろ過することで固体の化合物B-1を得た。

[0078] <合成例11 化合物B-2の合成>

合成例10のテトラヒドロフランの量を、2.8g(0.04mol)に変更する以外は、合成例10同様の作業を行い、化合物B-2を得た。

[0079] <合成例12 化合物B-3の合成>

合成例10のテトラヒドロフラン1.4g(0.02mol)を、プロピレンオキシド1.2g(0.02mol)に変更し、攪拌時の温度を30℃に変更する以外は、合成例10同様の作業を行い、化合物B-3を得た。

[0080] <合成例13 化合物B-4の合成>

合成例10のテトラヒドロフラン1.4g(0.02mol)を、シクロヘキセンオキシド2.0g(0.02mol)に変更する以外は、合成例10同様の作業を行い、化合物B-4を得た。

[0081] <合成例14 化合物B-5の合成>

合成例10のテトラヒドロフラン1.4g(0.02mol)を、3-ヒドロキシテトラヒドロフラン1.8g(0.02mol)に変更する以外は、合成例10同様の作業を行い、化合物B-5を得た。

[0082] <合成例15 化合物B-6の合成>

合成例10のジアミン化合物A-1 12.1g(0.02mol)を、ジアミン化合物A-3 12.3g(0.02mol)に変更する以外は、合成例10同様の作業を行い、化合物B-6を得た。

[0083] <合成例16 化合物B-7の合成>

合成例10のジアミン化合物A-1 12.1g(0.02mol)を、ジアミン化合物A-5 12.7g(0.02mol)に変更する以外は、合成例10同様の作業を行い、化合物B-7を得た。

[0084] <合成例17 化合物B-8の合成>

合成例10のジアミン化合物A-1 12.1g(0.02mol)を、ジアミン化合物A-2 9.9g(0.02mol)に変更する以外は、合成例

10同様の作業を行い、化合物B-8を得た。

[0085] <合成例18 化合物B-9の合成>

合成例10のジアミン化合物A-1 12.1g (0.02mol)を、ジアミン化合物A-6 7.2g (0.02mol)に変更する以外は、合成例10同様の作業を行い、化合物B-9を得た。

[0086] <合成例19 化合物B-10の合成>

合成例10のジアミン化合物A-1 12.1g (0.02mol)を、ジアミン化合物A-4 7.2g (0.02mol)に変更する以外は、合成例10同様の作業を行い、化合物B-10を得た。

[0087] <合成例20 化合物B-11の合成>

合成例10のジアミン化合物A-1 12.1g (0.02mol)を、ジアミン化合物A-7 12.4g (0.02mol)に変更する以外は、合成例10同様の作業を行い、化合物B-11を得た。

[0088] <合成例21 化合物B-12の合成>

合成例10のジアミン化合物A-1 12.1g (0.02mol)を、ジアミン化合物A-8 11.0g (0.02mol)に変更する以外は、合成例10同様の作業を行い、化合物B-12を得た。

[0089] <合成例22 化合物B-13の合成>

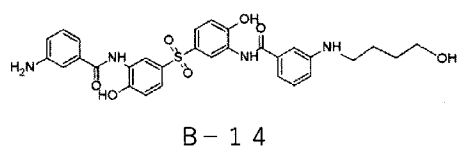
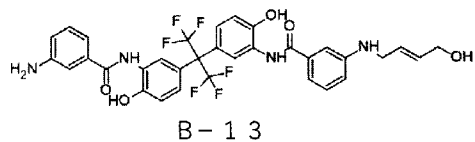
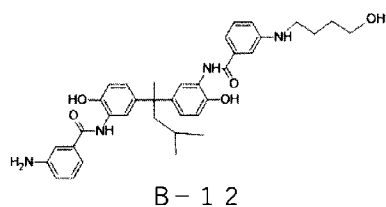
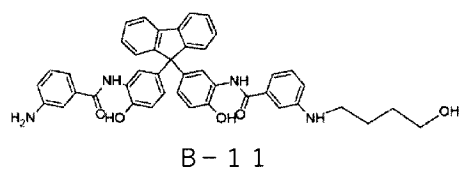
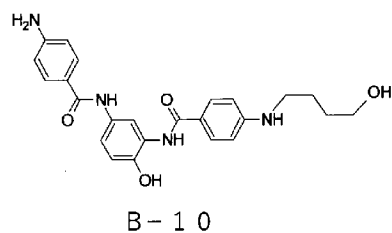
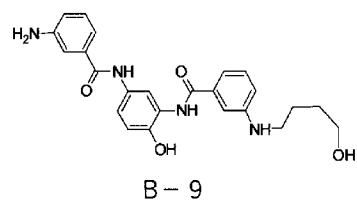
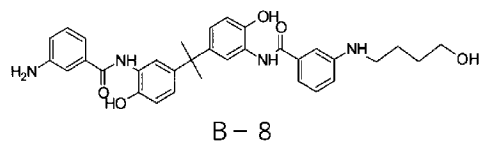
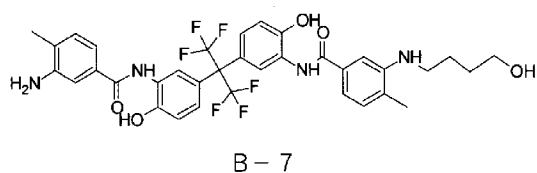
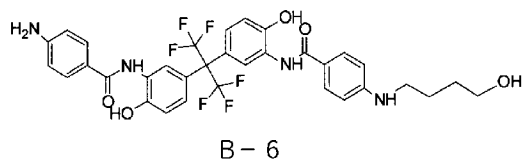
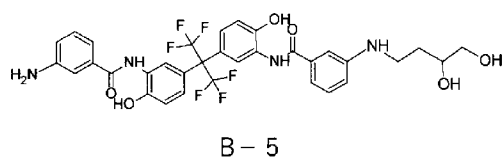
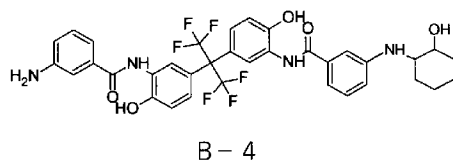
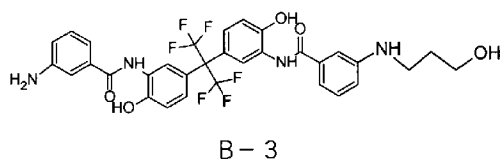
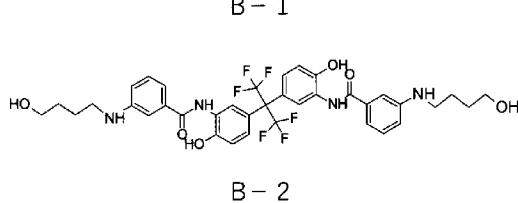
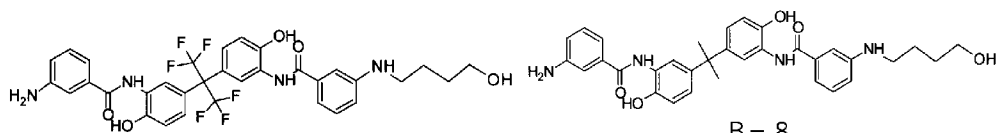
合成例10のテトラヒドロフラン1.4g (0.02mol)を、2,5-ジヒドロフラン1.4g (0.02mol)に変更する以外は、合成例10同様の作業を行い、化合物B-13を得た。

[0090] <合成例23 化合物B-14の合成>

合成例10のジアミン化合物A-1 12.1g (0.02mol)を、ジアミン化合物A-9 10.4g (0.02mol)に変更する以外は、合成例10同様の作業を行い、化合物B-14を得た。

[0091]

[化19]



[0092] <製造例1>

ジアミン化合物A-1を100.0g、化合物B-1を20.0mg、酢酸を0.50mg、メタノールに添加して、再結晶させた。ろ過して得た組成物J-1について、LC/UV-MS分析を行ったところ、分子量604のジアミン化合物A-1と、分子量676である化合物B-1を検出し、B

ー 1 は組成物全体 100 重量部に対して 0.02 重量部検出した。また、イオンクロマトグラフィーの結果、酢酸イオンを組成物全体 100 重量部に対して、 5.0×10^{-4} 重量部検出した。

[0093] <製造例 2～50>

ジアミン化合物 (A-1)～(A-4)、(A-7)～(A-9) と、化合物 (B-1)～化合物 (B-14)、有機酸を表 1～表 4 のように添加して、再結晶およびろ過することで組成物 (J-2)～(J-50) を作成した。前述の通り LC/UV-MS 分析評価を行い、検出した化合物の分子量と、算出した含有量を表 1～表 4 に示す。

[0094] <実施例 1>

組成物 J-1 について粒度分析および溶解性評価を実施した。粒度分析の結果、D100-D0 は A 評価 ($213.8 \mu\text{m}$)、D90-D10 は A 評価 ($34.2 \mu\text{m}$)、であった。また、溶解性評価の結果は 5 分で溶解した。

[0095] <実施例 2～37、実施例 38～49>

組成物 (J-2)～(J-37)、(J-39)～(J-50) についても、J-1 同様に粒度分析および溶解性評価を前述の通り実施した。評価結果を表 5～表 11 に示す。

[0096] <比較例 1>

組成物 (J-38) について、J-1 同様に粒度分析及び溶解性評価を前述の通り実施した。粒度分析の結果、D100-D0 は E 評価 ($799.8 \mu\text{m}$)、D90-D10 は D 評価 ($97.0 \mu\text{m}$) であった。また、溶解性評価の結果は 16 分で溶解した。

[0097]

[表1]

[表 1]

	製造例 1	製造例 2	製造例 3	製造例 4	製造例 5	製造例 6	製造例 7	製造例 8	製造例 9	製造例 1 0	製造例 1 1	製造例 1 2	製造例 1 3
組成物	J-1	J-2	J-3	J-4	J-5	J-6	J-7	J-8	J-9	J-10	J-11	J-12	J-13
ジアミン化合物 A	A-1	A-1	A-1	A-1	A-1	A-1	A-1	A-1	A-1	A-1	A-1	A-4	A-3
化合物B	B-1	B-2	B-3	B-4	B-5	B-6	B-7	B-8	B-9	B-10	B-11	B-1	B-1
有機酸	酢酸	酢酸	酢酸	酢酸	酢酸	酢酸	酢酸	酢酸	酢酸	酢酸	酢酸	酢酸	酢酸
添加量	ジアミン化合物A (g)	100.0	100.0	100.0	100.0	100.0	100.0	100.0	100.0	100.0	100.0	100.0	100.0
	化合物B(mg)	20.0	20.0	20.0	20.0	20.0	20.0	20.0	20.0	20.0	20.0	20.0	20.0
	有機酸 (mg)	0.50	0.50	0.50	0.50	0.50	0.50	0.50	0.50	0.50	0.50	0.50	0.50
分子量	ジアミン化合物A	604	604	604	604	604	604	604	604	604	604	362	604
	化合物B	676	748	662	702	692	704	568	434	434	690	676	676
組成比(重量部)	ジアミン化合物 A	99.980	99.980	99.980	99.980	99.980	99.980	99.980	99.980	99.980	99.980	99.980	99.980
	化合物 B	0.020	0.020	0.020	0.020	0.020	0.020	0.020	0.020	0.020	0.020	0.020	0.020
組成比 (×10 ⁻⁴ 重量部)	有機酸	5.0	5.0	5.0	5.0	5.0	5.0	5.0	5.0	5.0	5.0	5.0	5.0

[表2]

[表2]		製造例 1 4	製造例 1 5	製造例 1 6	製造例 1 7	製造例 1 8	製造例 1 9	製造例 2 0	製造例 2 1	製造例 2 2	製造例 2 3	製造例 2 4	製造例 2 5
組成物	組成物	J-14	J-15	J-16	J-17	J-18	J-19	J-20	J-21	J-22	J-23	J-24	J-25
	ジアミン化合物 A	A-2	A-2	A-7	A-7	A-1	A-1	A-1	A-1	A-1	A-1	A-1	A-1
化合物 B	化合物 B	B-1	B-8	B-1	B-11	B-1	B-1	B-1	B-1	B-1	B-1	B-1	B-1
	有機酸	酢酸	酢酸	酢酸	酢酸	酢酸	酢酸	酢酸	酢酸	酢酸	酢酸	酢酸	シユウ酸
添加量	ジアミン化合物 A (g)	100.0	100.0	100.0	100.0	100.0	100.0	100.0	100.0	100.0	100.0	100.0	100.0
	化合物 B (mg)	20.0	20.0	20.0	20.0	1.0	10.0	100.0	500.0	1000.0	1500.0	20.0	20.0
	有機酸 (mg)	0.50	0.50	0.50	0.50	0.50	0.50	0.50	0.50	0.50	0.50	0.50	0.50
分子量	ジアミン化合物 A	496	496	618	618	604	604	604	604	604	604	604	604
	化合物 B	676	568	676	690	676	676	676	676	676	676	676	676
組成比 (重量部)	ジアミン化合物 A	99.980	99.980	99.980	99.980	99.999	99.990	99.900	99.500	99.000	98.500	99.980	99.980
	化合物 B	0.020	0.020	0.020	0.020	0.001	0.010	0.100	0.500	1.000	1.500	0.020	0.020
組成比 ($\times 10^{-4}$ 重量部)	有機酸	5.0	5.0	5.0	5.0	5.0	5.0	5.0	5.0	5.0	5.0	5.0	5.0

[表3]

[表 3]		製造例 2 6	製造例 2 7	製造例 2 8	製造例 2 9	製造例 3 0	製造例 3 1	製造例 3 2	製造例 3 3	製造例 3 4	製造例 3 5	製造例 3 6	製造例 3 7	製造例 3 8
組成物		J-26	J-27	J-28	J-29	J-30	J-31	J-32	J-33	J-34	J-35	J-36	J-37	J-38
	ジアミン化合物 A	A-1	A-1	A-1	A-1	A-1	A-1	A-1	A-1	A-1	A-1	A-1	A-1	A-1
	化合物B	B-1	B-1	B-1	B-1	B-1	B-1	B-1	B-1	B-1	B-1	B-10	B-9	-
	有機酸 1	辛酸	プロピオン酸	酢酸	酢酸	酢酸	酢酸	酢酸	酢酸	酢酸	-	-	-	-
添加量	有機酸 2	酢酸	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
	ジアミン化合物 A (g)	100.0	100.0	100.0	100.0	100.0	100.0	100.0	100.0	100.0	100.0	100.0	100.0	100.0
	化合物B(mg)	20.0	20.0	20.0	20.0	20.0	20.0	20.0	20.0	20.0	20.0	20.0	20.0	-
	有機酸1 (mg)	0.50	0.50	0.01	0.02	0.10	1.00	5.00	10.00	15.00	-	-	-	-
分子量	有機酸2 (mg)	0.50	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
	ジアミン化合物A	604	604	604	604	604	604	604	604	604	604	604	604	604
	化合物B	676	676	676	676	676	676	676	676	676	676	434	434	-
	ジアミン化合物 A	99.979	99.980	99.980	99.980	99.980	99.979	99.975	99.970	99.965	99.980	99.980	99.980	100.000
組成比(重量部)	化合物 B	0.020	0.020	0.020	0.020	0.020	0.020	0.020	0.020	0.020	0.020	0.020	0.020	-
	有機酸 1	5.0	5.0	0.1	0.2	1.0	10.0	50.0	100.0	150.0	-	-	-	-
	有機酸 2	5.0	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-

[表4]

		製造例 3 9	製造例 4 0	製造例 4 1	製造例 4 2	製造例 4 3	製造例 4 4	製造例 4 5	製造例 4 6	製造例 4 7	製造例 4 8	製造例 4 9	製造例 5 0
組成物		J-39	J-40	J-41	J-42	J-43	J-44	J-45	J-46	J-47	J-48	J-49	J-50
	ジアミン化合物 A	A-1	A-1	A-1	A-8	A-8	A-9	A-9	A-1	A-8	A-2	A-7	A-9
化合物 B		B-12	B-13	B-14	B-1	B-12	B-1	B-14	B-13	B-12	B-8	B-11	B-14
	有機酸	酢酸	酢酸	酢酸	酢酸	酢酸	酢酸	酢酸	-	-	-	-	-
添加量	ジアミン化合物 A (g)	100.0	100.0	100.0	100.0	100.0	100.0	100.0	100.0	100.0	100.0	100.0	100.0
	化合物 B (mg)	20.0	20.0	20.0	20.0	20.0	20.0	20.0	20.0	20.0	20.0	20.0	20.0
	有機酸 (mg)	0.50	0.50	0.50	0.50	0.50	0.50	0.50	-	-	-	-	-
分子量	ジアミン化合物 A	604	604	604	538	538	518	518	604	538	496	618	518
	化合物 B	610	674	590	676	610	676	590	674	610	568	690	590
組成比 (重量部)	ジアミン化合物 A	99.980	99.980	99.980	99.980	99.980	99.980	99.980	99.980	99.980	99.980	99.980	99.980
	化合物 B	0.020	0.020	0.020	0.020	0.020	0.020	0.020	0.020	0.020	0.020	0.020	0.020
組成比 ($\times 10^{-4}$ 重量部)	有機酸	5.0	5.0	5.0	5.0	5.0	5.0	5.0	-	-	-	-	-

[0101]

[表5]

【表5】		実施例1	実施例2	実施例3 9	実施例3	実施例4	実施例5	実施例8	実施例11
化合物B の構造	組成物	J-1	J-2	J-40	J-3	J-4	J-5	J-8	J-11
	ジアミン化合物A	A-1	A-1	A-1	A-1	A-1	A-1	A-1	A-1
	化合物B	B-1	B-2	B-13	B-3	B-4	B-5	B-8	B-11
	式(10)、式(11)の有無	式(10) 有	式(11) 有	式(10) 有	式(10) 有	式(10) 有	式(10) 有	非含有	非含有
有機酸	R ¹⁶ , R ¹⁷ , R ¹⁸ の残基	ブチレン基	ブチレン基	ブテニレン基	プロピレン基	シクロヘキシル基	ブチレン基	ブチレン基	ブチレン基
	g, h, iの数字	1	1	1	1	1	2	1	1
	D100-D0	酢酸 213.8 A	酢酸 219.8 A	酢酸 216.8 A	酢酸 216.8 A	酢酸 251.8 B	酢酸 215.8 A	酢酸 218.8 A	酢酸 218.0 A
	D90-D10	34.2 A	36.5 A	31.7 A	44.0 B	44.0 B	43.5 B	43.9 B	39.7 B
溶解性評価		5分	5分	5分	5分	7分	5分	5分	5分

[表6]

[表6]		実施例 1	実施例 6	実施例 3 8	実施例 4 0	実施例 7	実施例 8	実施例 9	実施例 1 0	実施例 1 1
組成物		J-1	J-6	J-39	J-41	J-7	J-8	J-9	J-10	J-11
シアミン化合物 A		A-1	A-1	A-1	A-1	A-1	A-1	A-1	A-1	A-1
化合物B		B-1	B-6	B-12	B-14	B-7	B-8	B-9	B-10	B-11
化合物B の構造	$R^6-(OH)_m, R^{10}-(OH)_o$ が式(4)を 含有するか	含有	含有	含有	含有	含有	含有	非含有	非含有	含有
	Aの構造	$-C(CF_3)_2-$	$-C(CF_3)_2-$	$C(CH_3)[CH_2CH(CH_3)_2]-$	$-SO_2-$	$-C(CF_3)_2-$	$-C(CH_3)_2-$	-	-	式 (8)
	R^5, R^7, R^9, R^{11} が式(9)を含有す るか	含有	非含有	含有	含有	含有	含有	含有	非含有	含有
	f の数字	0	-	0	0	1	0	0	-	0
有機酸		酢酸	酢酸	酢酸	酢酸	酢酸	酢酸	酢酸	酢酸	酢酸
D100-D0		213.8 A	266.8 B	208.8 A	194.8 A	220.8 A	218.8 A	269.8 B	298.8 C	218.0 A
D90-D10		34.2 A	41.5 B	44.3 B	43.2 B	40.2 B	43.9 B	53.8 C	52.0 C	39.7 B
溶解性評価		5分	7分	5分	5分	5分	5分	7分	9分	5分

[表7]

[表7]		実施例 1	実施例 1 2	実施例 1 3	実施例 1 4	実施例 1 5	実施例 1 6	実施例 1 7	実施例 4 1	実施例 4 2	実施例 4 3	実施例 4 4
組成物		J-1	J-12	J-13	J-14	J-15	J-16	J-17	J-42	J-43	J-44	J-45
ジアミン化合物 A		A-1	A-4	A-3	A-2	A-2	A-7	A-7	A-8	A-8	A-9	A-9
ジアミン化合物 A の構造	R ¹ ,R ³ が式 (9) を含有するか	含有	非含有	非含有	含有	含有	含有	含有	含有	含有	含有	含有
	R ² -(OH) _m が式 (4) を含有するか	含有	非含有	含有	含有	含有	含有	含有	含有	含有	含有	含有
化合物B		B-1	B-1	B-1	B-1	B-8	B-1	B-11	B-1	B-12	B-1	B-14
化合物B の構造	R ⁶ -(OH) _n ,R ¹⁰ -(OH) _o が式(4)を含有するか	含有	含有	含有	含有	含有	含有	含有	含有	含有	含有	含有
	A の構造	-C(CF ₃) ₂ -	-C(CF ₃) ₂ -	-C(CF ₃) ₂ -	-C(CF ₃) ₂ -	-C(CH ₃) ₂ -	-C(CF ₃) ₂ -	式 (8)	-C(CF ₃) ₂ -	C(CH ₃)(CH ₂ CH(CH ₃) ₂)-	-C(CF ₃) ₂ -	-SO ₂ -
	R ⁵ ,R ⁷ ,R ⁹ ,R ¹¹ が式(9)を含有するか	含有	含有	含有	含有	含有	含有	含有	含有	含有	含有	含有
	有機酸	酢酸	酢酸	酢酸	酢酸	酢酸	酢酸	酢酸	酢酸	酢酸	酢酸	酢酸
D100-D0		213.8	257.8	215.8	207.8	213.8	210.0	198.8	204.8	210.3	204.8	210.3
		A	B	A	A	A	A	A	A	A	A	A
D90-D10		34.2	40.3	39.0	32.8	38.7	34.8	40.0	33.2	42.7	33.2	42.7
		A	B	B	A	B	A	B	A	B	A	B
溶解性評価		5分	7分	5分	5分	5分	5分	5分	5分	5分	5分	5分

[表8]

【表8】		実施例 1 8	実施例 1 9	実施例 2 0	実施例 2 1	実施例 2 2	実施例 2 3
組成物	組成物	J-18	J-19	J-20	J-21	J-22	J-23
	ジアミン化合物 A	A-1	A-1	A-1	A-1	A-1	A-1
	化合物 B	B-1	B-1	B-1	B-1	B-1	B-1
	有機酸	酢酸	酢酸	酢酸	酢酸	酢酸	酢酸
組成物 1 0 0 重量部に対するの 化合物 B の重量部		0.001	0.010	0.100	0.500	1.000	1.500
D100-D0		199.8	189.8	198.8	205.8	219.8	250.8
		A	A	A	A	A	B
D90-D10		44.7	27.5	28.8	29.1	43.7	44.3
		B	A	A	A	B	B
溶解性評価		5分	5分	5分	5分	5分	7分

[表9]

[表9]

	実施例 1	実施例 2 4	実施例 2 5	実施例 2 6	実施例 2 7
組成物	J-1	J-24	J-25	J-26	J-27
ジアミン化合物 A	A-1	A-1	A-1	A-1	A-1
化合物B	B-1	B-1	B-1	B-1	B-1
有機酸 1	酢酸	ギ酸	シュウ酸	ギ酸	プロピオン酸
有機酸 2	-	-	-	酢酸	-
組成物 1 0 0 重量部に対しての 有機酸 1 の重量部 (× 1 0 ⁻⁴)	5.0	5.0	5.0	5.0	5.0
組成物 1 0 0 重量部に対しての 有機酸 2 の重量部 (× 1 0 ⁻⁴)	-	-	-	5.0	-
D100-D0	213.8	45.7	46.8	45.8	198.8
	A	A	A	A	A
D90-D10	34.2	9.5	10.3	9.2	39.8
	A	A	A	A	B
溶解性評価	5分	5分	5分	5分	5分

[0106]

[表10]

[表 1 0]

	実施例 2 8	実施例 2 9	実施例 3 0	実施例 3 1	実施例 3 2	実施例 3 3	実施例 3 4
組成物	J-28	J-29	J-30	J-31	J-32	J-33	J-34
ジアミン化合物 A	A-1	A-1	A-1	A-1	A-1	A-1	A-1
化合物 B	B-1	B-1	B-1	B-1	B-1	B-1	B-1
有機酸	酢酸	酢酸	酢酸	酢酸	酢酸	酢酸	酢酸
組成物 1 0 0 重量部に対しての 有機酸の重量部 (× 1 0 ⁻⁴)	0.1	0.2	1.0	10.0	50.0	100.0	150.0
D100-D0	257.8	197.8	197.8	221.8	201.8	205.8	249.8
	B	A	A	A	A	A	B
D90-D10	41.0	45.8	22.0	29.8	44.0	43.0	46.5
	B	B	A	A	B	B	B
溶解性評価	7分	5分	5分	5分	5分	5分	7分

[表11]

[表11]		実施例 1	実施例 3 5	実施例 4 5	実施例 4 6	実施例 4 7	実施例 4 8	実施例 4 9	実施例 3 7	実施例 3 6	比較例 1
組成物		J-1	J-35	J-46	J-47	J-48	J-49	J-50	J-37	J-36	J-38
ジアミン化合物 A		A-1	A-1	A-1	A-8	A-2	A-7	A-9	A-1	A-1	A-1
ジアミン化合物 A の構造	R ¹ , R ³ が式 (9) を含むか	含有	含有	含有	含有	含有	含有	含有	含有	含有	含有
	R ² -(OH) _m が式 (4) を含むか	含有	含有	含有	含有	含有	含有	含有	含有	含有	含有
化合物 B		B-1	B-1	B-13	B-12	B-8	B-11	B-14	B-9	B-10	-
化合物 B の構造について	R ⁶ -(OH) _n , R ¹⁰ -(OH) _o が式 (4) を含むか	含有	含有	含有	含有	含有	含有	含有	非含有	非含有	-
	A の構造	-C(CF ₃) ₂ -	-C(CF ₃) ₂ -	-C(CF ₃) ₂ -	C(CH ₃)(CH ₂ CH(CH ₃) ₂)-	-C(CH ₃) ₂ -	式 (8)	-SO ₂ -	-	-	-
	R ⁵ , R ⁷ , R ⁹ , R ¹¹ が式 (9) を含むか	含有	含有	含有	含有	含有	含有	含有	含有	非含有	-
有機酸		酢酸	-	-	-	-	-	-	-	-	-
D100-D0		213.8	319.8	307.8	323.8	311.8	317.8	330.8	332.8	359.8	799.8
		A	C	C	C	C	C	C	C	D	E
D90-D10		34.2	48.0	46.6	64.0	58.2	61.5	63.9	62.4	63.0	97.0
		A	B	B	C	C	C	C	C	C	D
溶解性評価		5分	9分	9分	9分	9分	9分	9分	9分	11分	16分

[0108] 表 5 では化合物 B の構造による効果を説明している。R¹⁶、R¹⁷、R¹⁸ の残基がシクロヘキシル基である実施例 4 よりも、残基がプロピレン基である実施例 3 でより効果を奏しており、残基がブチレン基、ブテニレン基である実施例 1、実施例 3 9 がより良く効果を奏している。g、h、i の数字が 2

である実施例5よりも、数字が1である実施例1がより効果を奏している。
式(10)、式(11)の構造を含まない実施例8、実施例9よりも構造を含む実施例1、実施例2がより効果を奏している。

[0109] 表6では化合物Bの構造による効果を説明している。 $R^6-(OH)_n$ 、 $R^{10}-(OH)_o$ が式(4)の構造を含有しない実施例9よりも、式(4)を含有する実施例8でより効果を奏している。 R^5 、 R^7 、 R^9 、 R^{11} が式(9)を含有しない実施例6よりも、式(9)を含有する実施例1がより効果を奏している。Aの構造が $-C(CH_3)[CH_2CH(CH_3)_2]-$ 、 $-SO_2-$ 、 $-C(CH_3)_2-$ 、式(8)である実施例38、実施例40、実施例8、実施例11よりも、 $-C(CF_3)_2-$ である実施例1がより効果を奏している。
fの数字が1である実施例7よりも、数字が0である実施例1がより効果を奏している。

[0110] 表7ではジアミン化合物Aおよび化合物Bの構造による効果を説明している。ジアミン化合物Aにおいて $R^2-(OH)_m$ が式(4)を含有しない実施例12よりも、式(4)を含有する実施例13がより効果を奏している。ジアミン化合物Aにおいて R^1 、 R^3 が式(9)を含有していない実施例13よりも、式(9)を含有する実施例1、実施例14、実施例16、実施例41、実施例44がより効果を奏している。化合物BにおいてAの構造が $-C(CH_3)[CH_2CH(CH_3)_2]-$ 、 $-SO_2-$ 、 $-C(CH_3)_2-$ 、式(8)である実施例42、実施例44、実施例15、実施例17よりも、Aの構造が $-C(CF_3)_2-$ である実施例41、実施例43、実施例14、実施例16がより効果を奏している。

[0111] 表8では組成物中の化合物Bの含有量による効果を説明している。組成物100重量部に対しての化合物Bの重量部が1.500の実施例23よりも、0.001、1.000である実施例18、実施例22がより効果を奏しており、0.010、0.100、0.500である実施例19～実施例21がより良く効果を奏している。

[0112] 表9では組成物中の有機酸の種類による効果を説明している。有機酸がブ

ロピオン酸である実施例 27 よりも、酢酸、ギ酸、シュウ酸である実施例 1、実施例 24、実施例 25、実施例 26 がより効果を奏している。

[0113] 表 10 では組成物中の有機酸の含有量による効果を説明している。組成物 100 重量部に対しての有機酸の重量部が 0.1×10^{-4} 、 150.0×10^{-4} である実施例 28、実施例 34 よりも、 0.2×10^{-4} 、 100.0×10^{-4} である実施例 29、実施例 33 がより効果を奏しており、 1.0×10^{-4} 、 10.0×10^{-4} である実施例 30、実施例 31 がより良く効果を奏している。

[0114] 表 11 では有機酸の有無および化合物 B の構造による効果を説明している。有機酸非含有の実施例 35 よりも、有機酸を含有している実施例 1 がより効果を奏している。化合物 B において R^5 、 R^7 、 R^9 、 R^{11} が式 (9) を含有しない実施例 36 よりも、式 (9) を含有する実施例 37 がより効果を奏している。化合物 B において A の構造が $-C(CH_3)[CH_2CH(CH_3)_2]-$ 、 $-SO_2-$ 、 $-C(CH_3)_2-$ 、式 (8) である実施例 46、実施例 49、実施例 47、実施例 48 よりも、A の構造が $-C(CF_3)_2-$ である実施例 35、実施例 45 がより効果を奏している。

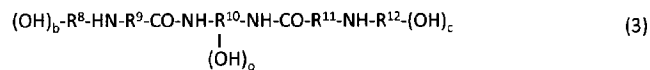
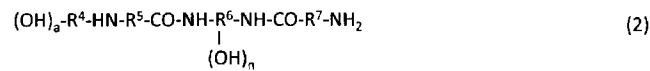
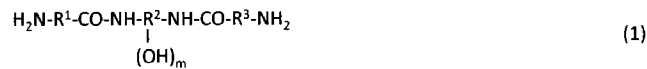
産業上の利用可能性

[0115] 本発明の組成物は、ポリマーを重合する際のモノマーとして好適に用いることができる。

請求の範囲

[請求項1] 少なくとも式（１）で表されるジアミン化合物（Ａ）、および化合物（Ｂ）を含有する組成物であって、
前記化合物（Ｂ）が、式（２）で表される化合物および／または式（３）で表される化合物を含む組成物。

[化1]



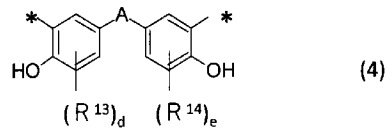
（式（１）中、 R^1 および R^3 は、それぞれ独立に、炭素数２～１２個を有する２価の有機基を示し、 R^2 は、炭素数２～２５個を有する３～６価の有機基を示し、 m は、１から４までの整数を示す。

式（２）中、 R^4 は、炭素数１～６個を有する２～４価の有機基を示し、 a は、１から３までの整数を示し、 R^5 および R^7 は、それぞれ独立に、炭素数２～１２個を有する２価の有機基を示し、 R^6 は、炭素数２～２５個を有する３～６価の有機基を示し、 n は、１から４までの整数を示す。

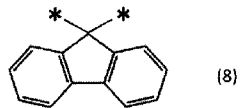
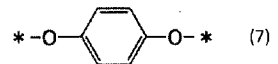
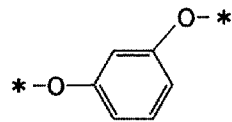
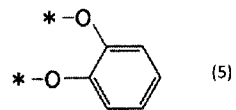
式（３）中、 R^8 および R^{12} は、それぞれ独立に、炭素数１～６個を有する２～４価の有機基を示し、 b および c は、それぞれ独立に、１から３までの整数を示し、 R^9 および R^{11} は、それぞれ独立に、炭素数２～１２個を有する２価の有機基を示し、 R^{10} は、炭素数２～２５個を有する３～６価の有機基、 o は１から４までの整数を示す。）

[請求項2] 前記式（２）中の $\text{R}^6-(\text{OH})_n$ および前記式（３）中の $\text{R}^{10}-(\text{OH})_o$ が、式（４）で表される構造である、請求項１に記載の組成物。

[化2]



[化3]

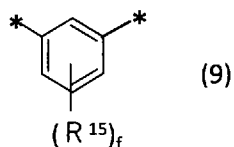


(式(4)から式(8)中、*は結合部を示し、Aは、 $-O-$ 、 $-S-$ 、 $-CO-$ 、 $-SO_2-$ 、 $-CH_2-$ 、 $-C(CH_3)_2-$ 、 $-C(CH_3)(CF_3)-$ 、 $-C(CF_3)_2-$ 、 $-C(CH_3)[CH_2CH(CH_3)_2]-$ もしくは式(5)から式(8)のいずれかの2価の基を示し、 R^{13} および R^{14} は、それぞれ独立に、ハロゲン原子、水酸基、ニトロ基、シアノ基、アセチル基、カルボキシ基、エステル基、アミド基、イミド基およびウレア基のいずれかを有する炭素数が0～6個の1価の有機基を示し、dおよびeは、それぞれ独立に、0～3の範囲内の整数を示す。)

[請求項3]

前記式(2)中の R^5 および R^7 、ならびに前記式(3)中の R^9 および R^{11} が、式(9)で表される構造である、請求項1または2に記載の組成物。

[化4]

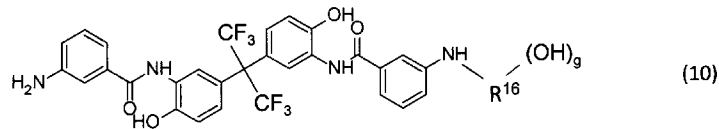


(式(9)中、*は結合部を示し、 R^{15} は、ハロゲン原子、水酸基、ニトロ基、シアノ基、アセチル基、カルボキシ基、エステル基、アミド基、イミド基およびウレア基のいずれかを有する炭素数が0

～6個の1価の有機基を示し、fは、0～3の範囲内の整数を示す。
)

[請求項4] 前記式(2)で表される化合物が、式(10)で表される化合物である、請求項1または2に記載の組成物。

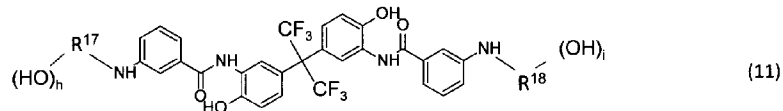
[化5]



(式(10)中、R¹⁶は、炭素数1～6個を有する2～4価の有機基を示し、gは、1から3までの整数を示す。)

[請求項5] 前記式(3)で表される化合物が、式(11)で表される化合物である、請求項1または2に記載の組成物。

[化6]



(式(11)中、R¹⁷およびR¹⁸は、それぞれ独立に、炭素数1～6個を有する2～4価の有機基を示し、hおよびiは、それぞれ独立に、1から3までの整数を示す。)

[請求項6] 前記組成物100重量部に対して、前記化合物(B)の含有量が0.001重量部以上、1.000重量部以下である、請求項1または2に記載の組成物。

[請求項7] さらに有機酸を含む、請求項1または2に記載の組成物。

[請求項8] 前記有機酸が、ギ酸、酢酸、プロピオン酸、リンゴ酸、シュウ酸およびクエン酸からなる群より選択される少なくとも1種類を含む、請求項7に記載の組成物。

[請求項9] 前記組成物100重量部に対して、前記有機酸の含有量が0.2×10⁻⁴重量部以上、100.0×10⁻⁴重量部以下である、請求項7に記載の組成物。

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2024/019485

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER <i>C08G 73/10</i> (2006.01)i; <i>C07B 61/00</i> (2006.01)i; <i>C07C 53/02</i> (2006.01)i; <i>C07C 53/08</i> (2006.01)i; <i>C07C 53/122</i> (2006.01)i; <i>C07C 55/06</i> (2006.01)i; <i>C07C 237/40</i> (2006.01)i FI: C08G73/10; C07C53/02; C07C53/08; C07C53/122; C07C55/06; C07B61/00 300; C07C237/40 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) C08G73/10; C07B61/00; C07C53/02; C07C53/08; C07C53/122; C07C55/06; C07C237/40 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.
A	WO 2017/057281 A1 (TORAY INDUSTRIES, INC.) 06 April 2017 (2017-04-06) claims, paragraphs [0010], [0071]-[0083], examples	1-9
A	WO 2017/018290 A1 (SUMITOMO BAKELITE CO., LTD.) 02 February 2017 (2017-02-02) claims, paragraphs [0005], [0027]-[0032], examples	1-9
A	JP 2014-224855 A (HITACHI CHEMICAL COMPANY, LTD.) 04 December 2014 (2014-12-04) claims, paragraphs [0006], [0024]-[0028], [0043], examples	1-9
☐ 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 28 June 2024		Date of mailing of the international search report 09 July 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
Information on patent family members

International application No.
PCT/JP2024/019485

Patent document cited in search report			Publication date (day/month/year)	Patent family member(s)	Publication date (day/month/year)
WO	2017/057281	A1	06 April 2017	US 2018/0259852 A1	
				claims, paragraphs [0014],	
				[0090]-[0104], examples	
				CN 108027561 A	
				KR 10-2018-0063060 A	
WO	2017/018290	A1	02 February 2017	JP 2019-23728 A	

				CN 107924122 A	
				claims, examples	
				KR 10-2018-0030693 A	
JP	2014-224855	A	04 December 2014	JP 2019-144581 A	

				(Family: none)	

A. 発明の属する分野の分類（国際特許分類（IPC））

C08G 73/10(2006.01)i; C07B 61/00(2006.01)i; C07C 53/02(2006.01)i; C07C 53/08(2006.01)i; C07C 53/122(2006.01)i; C07C 55/06(2006.01)i; C07C 237/40(2006.01)i
FI: C08G73/10; C07C53/02; C07C53/08; C07C53/122; C07C55/06; C07B61/00 300; C07C237/40

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））

C08G73/10; C07B61/00; C07C53/02; C07C53/08; C07C53/122; C07C55/06; C07C237/40

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

国際調査で利用した電子データベース（データベースの名称、調査に利用した用語）

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
A	WO 2017/057281 A1（東レ株式会社） 06.04.2017（2017-04-06） 請求の範囲，段落[0010]，[0071]-[0083]，実施例	1-9
A	WO 2017/018290 A1（住友ベークライト株式会社） 02.02.2017（2017-02-02） 請求の範囲，段落[0005]，[0027]-[0032]，実施例	1-9
A	JP 2014-224855 A（日立化成株式会社） 04.12.2014（2014-12-04） 特許請求の範囲，段落[0006]，[0024]-[0028]，[0043]，実施例	1-9

☐ 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、一般的技术水準を示すもの
“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
“L” 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 28.06.2024

国際調査報告の発送日 09.07.2024

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）

仁科 努 4J 4079

電話番号 03-3581-1101 内線 3457

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/JP2024/019485

引用文献			公表日	パテントファミリー文献			公表日
WO	2017/057281	A1	06.04.2017	US	2018/0259852	A1	
				特許請求の範囲，段落			
				[0014]，[0090]-[0104]，実			
				施例			
				CN	108027561	A	
				KR	10-2018-0063060	A	
				JP	2019-23728	A	

WO	2017/018290	A1	02.02.2017	CN	107924122	A	
				請求の範囲，実施例			
				KR	10-2018-0030693	A	
				JP	2019-144581	A	

JP	2014-224855	A	04.12.2014	(ファミリーなし)			
