

【公報種別】特許法第17条の2の規定による補正の掲載

【部門区分】第3部門第2区分

【発行日】平成24年1月19日(2012.1.19)

【公表番号】特表2011-505360(P2011-505360A)

【公表日】平成23年2月24日(2011.2.24)

【年通号数】公開・登録公報2011-008

【出願番号】特願2010-536085(P2010-536085)

【国際特許分類】

C 0 7 D 213/73 (2006.01)

C 0 7 C 211/52 (2006.01)

C 0 7 C 209/76 (2006.01)

C 0 8 G 73/06 (2006.01)

【F I】

C 0 7 D 213/73

C 0 7 C 211/52

C 0 7 C 209/76

C 0 8 G 73/06

【手続補正書】

【提出日】平成23年11月24日(2011.11.24)

【手続補正1】

【補正対象書類名】特許請求の範囲

【補正対象項目名】全文

【補正方法】変更

【補正の内容】

【特許請求の範囲】

【請求項1】

ジアミノピリジンまたはジアミノピリジンヘミスルファートをオレウムおよび硝酸と接触させることによりジアミノジニトロピリジンを調製するための方法であって、前記ジアミノピリジンに基づき少なくとも1%モル過剰量の硝酸を攪拌しながら添加し、攪拌を少なくとも2時間～4時間にわたって継続し、最初に、1)ジアミノニトロピリジンスルホン酸、次いで、2)ジアミノジニトロピリジンを生成する工程を含む、方法。

【請求項2】

前記ジアミノピリジンまたはジアミノピリジンヘミスルファートを、硝酸と接触させる前にオレウムと接触させ、前記硝酸を2回の別個の増量分として添加する、請求項1に記載の方法。

【請求項3】

硝酸の前記モル過剰量が、1%～3%である、請求項1または請求項2に記載の方法。

【請求項4】

前記攪拌が、4時間にわたって続けられる、請求項1または請求項2に記載の方法。

【請求項5】

前記ジアミノジニトロピリジンが、0.1重量%未満の2,6-ジアミノ-3-ニトロピリジン-5-スルホン酸を含む、請求項1～4のいずれか一項に記載の方法。

【請求項6】

2,6-ジアミノ-3-ニトロピリジン-5-スルホン酸を含むジアミノジニトロピリジンを精製するための方法であって、2,6-ジアミノ-3-ニトロピリジン-5-スルホン酸を含む前記ジアミノジニトロピリジンを、オレウム、およびニトロ化に必要とされる化学量論量に基づく過剰の硝酸と攪拌しながら接触させ、攪拌が少なくとも2時間～4時間にわたって続けられて、0.1重量%未満の2,6-ジアミノ-3-ニトロピリジン

- 5 - スルホン酸を有するジアミノジニトロピリジンを生成する工程を含む、方法。

【請求項 7】

前記攪拌が 4 時間にわたって続けられる、請求項 6 に記載の方法。

【請求項 8】

少なくとも 25 dL/g の内部粘度を有するポリ(2, 3, 5, 6 - テトラアミノピリジン - コ - 2, 5 - ジヒドロキシテレフタレート)を調製するための方法であって、

A) ジアミノピリジンを、オレウム、および前記ジアミノピリジンに基づき少なくとも 1% モル過剰の硝酸と攪拌しながら接触させ、攪拌が少なくとも 2 時間 ~ 4 時間にわたって続けられて、0.1 重量%未満の 2, 6 - ジアミノ - 3 - ニトロピリジン - 5 - スルホン酸を含むジアミノジニトロピリジンを調製する工程と、

B) 0.1 重量%未満の 2, 6 - ジアミノ - 3 - ニトロピリジン - 5 - スルホン酸を含むジアミノジニトロピリジンを水素化して、テトラアミノピリジンを生成する工程と、

C) 前記テトラアミノピリジンをジヒドロキシテレフタル酸二カリウムとカップリングして、テトラアミノピリジニウムジヒドロキシテレフタル酸二カリウム複合体を生成する工程と、

D) 前記テトラアミノピリジニウムジヒドロキシテレフタル酸二カリウム複合体を重合させて、少なくとも 25 dL/g の内部粘度を有するポリ(2, 3, 5, 6 - テトラアミノピリジン - コ - 2, 5 - ジヒドロキシテレフタレート)を生成する工程と

を含む、方法。

【請求項 9】

前記ジアミノジニトロピリジンが、0.05 重量%未満の 2, 6 - ジアミノ - 3 - ニトロピリジン - 5 - スルホン酸を含み、前記ジアミノジニトロピリジンが、1 重量%未満の 2 - ヒドロキシ - 6 - アミノ - 3, 5 - ジニトロピリジンを含む、請求項 8 に記載の方法。

【手続補正 2】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0080

【補正方法】変更

【補正の内容】

【0080】

洗浄後、濾過器中の湿潤ケーキを、窒素吹き付けおよび真空吸引により部分的に乾燥させ、次いで、真空オープンで恒量まで乾燥させて、黄色固体の生成物を得た(91g、試料が DANPS であることに基づき、収率 86%、MW = 234)。HPLC 分析は、この試料が 3% の DADNP を含み、HADNP を含まず、97% の DANPS を含むことを示した。この試料を水素化または重合する試みはなされなかった。

以下に、本発明の好ましい態様を示す。

[1] 1) アミノピリジンまたは 2) アミノベンゼンを、オレウムおよび硝酸と接触させることにより、それぞれ、1) ジアミノジニトロピリジンまたは 2) ジアミノジニトロベンゼンを調製するための方法であって、それぞれ、前記アミノピリジンまたはアミノベンゼンに基づき少なくとも約 1% モル過剰の硝酸を少なくとも 2 時間にわたって攪拌しながら添加して、最初に、それぞれ、1) アミノニトロピリジンスルホン酸または 2) アミノニトロベンゼンスルホン酸、続いて、それぞれ、1) ジアミノジニトロピリジンまたは 2) ジアミノジニトロベンゼンを生成する工程を含む、方法。

[2] 前記アミノピリジンまたはアミノベンゼンを、硝酸と接触させる前にオレウムと接触させ、前記硝酸の増量分を 2 回に分けて添加する、[1] に記載の方法。

[3] 硝酸の前記モル過剰が、約 1% ~ 約 3% である、[1] または [2] に記載の方法。

[4] 前記攪拌が、約 2 時間 ~ 約 4 時間にわたって続けられる、[1] または [2] に記載の方法。

[5] 前記ジアミノジニトロピリジンが、0.1 重量%未満の 2, 6 - ジアミノ - 3 -

ニトロピリジン - 5 - スルホン酸を含み、前記ジアミノジニトロベンゼンが、0.1重量%未満の2,6-ジアミノ-3-ニトロベンゼン-5-スルホン酸を含む、[1]~[4]のいずれか一項に記載の方法。

[6] 2,6-ジアミノ-3-ニトロピリジン-5-スルホン酸を含む組成物。

[7] ジアミノピリジンまたはジアミノピリジンヘミスルファートをオレウムと接触させてジアミノピリジンスルホン酸を生成する工程、および前記ジアミノピリジンに基づいて少なくとも1%モル過剰の硝酸を添加してジアミノニトロピリジンスルホン酸を生成する工程により調製される、[6]に記載の組成物。

[8] 1) 2,6-ジアミノ-3-ニトロピリジン-5-スルホン酸を含むジアミノジニトロピリジン、または2) 2,6-ジアミノ-3-ニトロベンゼン-5-スルホン酸を含むジアミノジニトロベンゼンを精製するための方法であって、それぞれ、1) 前記ジアミノジニトロピリジンまたは2) 前記ジアミノジニトロベンゼンを、オレウム、および前記ジアミノジニトロピリジンまたはジアミノジニトロベンゼンに基づき少なくとも約1%モル過剰の硝酸と、少なくとも2時間にわたって攪拌しながら接触させて、それぞれ、約0.1重量%未満の2,6-ジアミノ-3-ニトロピリジン-5-スルホン酸を有するジアミノジニトロピリジン、または2) 約0.1重量%未満の2,6-ジアミノ-3-ニトロベンゼン-5-スルホン酸を有するジアミノジニトロベンゼンを生成する工程を含む、方法。

[9] 硝酸の前記モル過剰が、約1%~約3%であり、前記攪拌が、約2時間~約4時間にわたって続けられる、[8]に記載の方法。

[10] 各々少なくとも25dL/gの内部粘度を有する、ポリ(2,3,5,6-テトラアミノピリジン-コ-2,5-ジヒドロキシテレフタレート)またはポリ(2,3,5,6-テトラアミノベンゼン-コ-2,5-ジヒドロキシテレフタレート)を調製するための方法であって、

A) 約0.1重量%未満の2,6-ジアミノ-3-ニトロピリジン-5-スルホン酸を含むジアミノジニトロピリジンを水素化してテトラアミノピリジンを生成する工程、または約0.1重量%未満の2,6-ジアミノ-3-ニトロベンゼン-5-スルホン酸を含むジアミノジニトロベンゼンを水素化してテトラアミノベンゼンを生成する工程と、

B) 前記テトラアミノピリジンまたはテトラアミノベンゼンをジヒドロキシテレフタル酸二カリウムとカップリングして、それぞれ、テトラアミノピリジニウムジヒドロキシテレフタル酸二カリウム複合体、またはテトラアミノベンゼンジヒドロキシテレフタル酸二カリウム複合体を生成する工程と、

C) 前記テトラアミノピリジニウムジヒドロキシテレフタル酸二カリウム複合体を重合させて、少なくとも25dL/gの内部粘度を有するポリ(2,3,5,6-テトラアミノピリジン-コ-2,5-ジヒドロキシテレフタレート)を生成する工程、または前記テトラアミノベンゼンジヒドロキシテレフタル酸二カリウム複合体を重合させて、少なくとも25dL/gの内部粘度を有するポリ(2,3,5,6-テトラアミノベンゼン-コ-2,5-ジヒドロキシテレフタレート)を生成する工程とを含む、方法。

[11] 前記ジアミノジニトロピリジンが、約0.05重量%未満の2,6-ジアミノ-3-ニトロピリジン-5-スルホン酸を含み、前記ジアミノジニトロピリジンが、約1重量%未満の2-ヒドロキシ-6-アミノ-3,5-ジニトロピリジンを含む、[10]に記載の方法。