

【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 3 区分

【発行日】平成 27 年 3 月 26 日 (2015.3.26)

【公表番号】特表 2014-509674 (P2014-509674A)

【公表日】平成 26 年 4 月 21 日 (2014.4.21)

【年通号数】公開・登録公報 2014-020

【出願番号】特願 2014-501661 (P2014-501661)

【国際特許分類】

C 0 8 G 73/10 (2006.01)

C 0 8 L 79/08 (2006.01)

【 F I 】

C 0 8 G 73/10

C 0 8 L 79/08 Z

【手続補正書】

【提出日】平成 27 年 2 月 4 日 (2015.2.4)

【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】

無水物ベースのアセチレンのエンドキャップ体の 1 つまたは 2 つの残基、
少なくとも 1 つの 5, 5' - (エチン - 1, 2 - ジイル) ビス (イソベンゾフラン - 1, 3 - ジオン) 残基または少なくとも 1 つの 4, 4' - (エチン - 1, 2 - ジイル) ビス (イソベンゾフラン - 1, 3 - ジオン) 残基、

芳香族ジアミンの少なくとも 1 つの残基、および

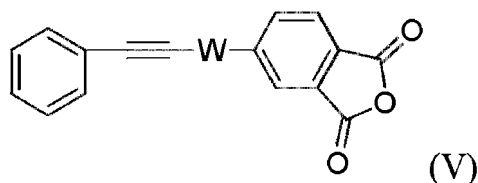
芳香族非アセチレン性二無水物の少なくとも 1 つの残基

を含むオリゴイミドまたはポリイミド。

【請求項 2】

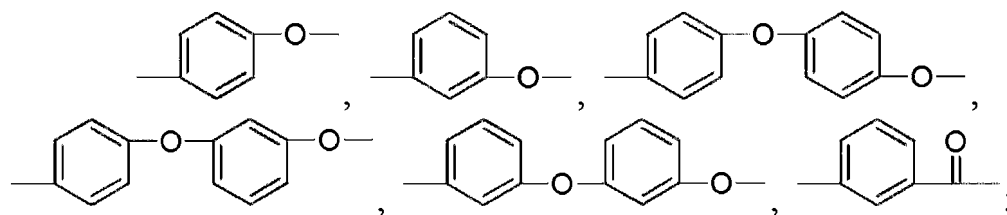
前記無水物ベースのアセチレンのエンドキャップ体が式 (V) に係る無水物

【化 1】



(式中 W は

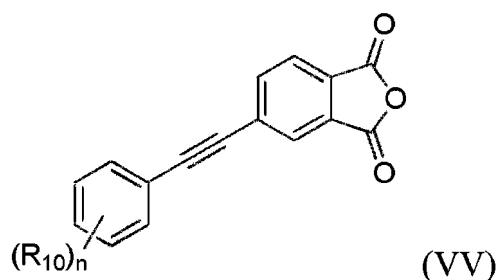
【化 2】



からなる群から選択されるラジカルである)、

式 (V V) に係る無水物

【化 3】



(式中「 n 」が 1 ~ 5 の整数であり、

「 n 」が 1 超の整数である場合、 R_{10} は互いに独立してハロゲン、ニトロ、アリール、ベンジル、フェノキシ、C 1 ~ 4 のアルキル、シアノ、トリフルオロメチル、およびベンゾイルからなる群から選択される)、または

5 - (フェニルエチニル) イソベンゾフラン - 1, 3 - ジオン (PEPA)、5 - エチニルイソベンゾフラン - 1, 3 - ジオン (EPA)、5 - (3 - フェニルプロピオロイル) イソベンゾフラン - 1, 3 - ジオン (PETA) および 5 - (プロブ - 1 - イン - 1 - イル) イソベンゾフラン - 1, 3 - ジオン (MEPA) からなる群から選択される無水物である、請求項 1 に記載のオリゴイミドまたはポリイミド。

【請求項 3】

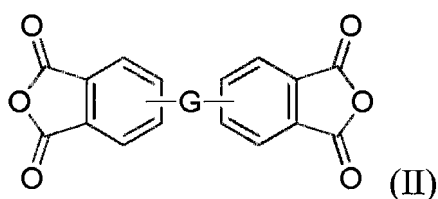
前記無水物ベースのアセチレンのエンドキャップ体が 5 - (フェニルエチニル) イソベンゾフラン - 1, 3 - ジオン (PEPA) であり、

前記オリゴイミドまたはポリイミドが、少なくとも 1 つの 5, 5' - (エチン - 1, 2 - ジイル) ビス (イソベンゾフラン - 1, 3 - ジオン) 残基を含む、請求項 2 に記載のオリゴイミドまたはポリイミド。

【請求項 4】

前記芳香族非アセチレン性二無水物がピロメリト酸二無水物または一般式 (II) に係る二無水物

【化 4】

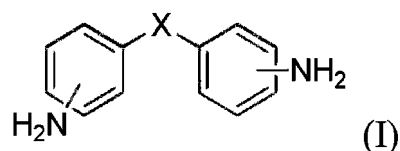


(式中、G は、直接の結合またはカルボニル基、メチレン基、スルホン基、スルフィド基、エーテル基、-C(O)-フェニレン-C(O)-基、イソプロピリデン基、ヘキサフルオロイソプロピリデン基、3 - オキシフェノキシ基、4 - オキシフェノキシ基、4' - オキシ - 4 - ビフェノキシ基、および 4 - [1 - (4 - オキシフェニル) - 1 - メチルエチル] フェノキシ基からなる群から選択される二価の基を表す)

であり、

前記芳香族ジアミンが、1, 4 - ジアミノベンゼン、1, 3 - ジアミノベンゼンおよび一般式 (I) に係るジアミン

【化 5】



(式中、

アミノ基が各ベンゼン残基の任意の炭素原子に結合し、
Xが直接の結合または - O - 、 - S - 、 - C (O) - 、 - C (C H ₃) ₂ - 、 - C (C
F ₃) ₂ - 、 - C H ₂ - 、 3 - オキシフェノキシ基、 4 - オキシフェノキシ基、 4 ' - オ
キシ - 4 - ビフェノキシ基、および 4 - [1 - (4 - オキシフェニル) - 1 - メチルエチ
ル] フェノキシ基からなる群から選択される部分である)
 から選択される、請求項 1 ~ 3 のいずれか一項に記載のオリゴイミドまたはポリイミド。

【請求項 5】

前記芳香族非アセチレン性二無水物が、ピロメリト酸二無水物、 4 , 4 ' - オキシジフ
 タル酸無水物、 2 , 2 - ビス - [4 - (3 , 4 - ジカルボキシフェノキシ) フェニル] -
 プロパン二無水物、 3 , 3 ' , 4 , 4 ' - ベンゾフェノンテトラカルボン酸二無水物、 3
 , 3 ' , 4 , 4 ' - テトラカルボキシビフェニル二無水物、 4 , 4 ' , 5 , 5 ' - スルホ
 ニルジフタル酸無水物、および 5 , 5 ' - (パーフルオロプロパン - 2 , 2 - ジイル) ビ
 ス (イソベンゾフラン - 1 , 3 - ジオン) からなる群から選択され、

前記芳香族ジアミンが、 4 , 4 ' - オキシジアニリン、 1 , 4 - ジアミノベンゼン、 1
, 3 - ジアミノベンゼン、 1 , 3 - ビス - (4 - アミノフェノキシ) ベンゼン、 1 , 3 -
ビス - (3 - アミノフェノキシ) ベンゼン、メチレンジアニリン、 4 , 4 ' - ジアミノジ
フェニルスルホンおよび 3 , 4 ' - オキシジアニリンからなる群から選択される、請求項
4 に記載のオリゴイミドまたはポリイミド。

【請求項 6】

前記オリゴイミドまたはポリイミドが、

前記無水物ベースのアセチレンのエンドキャップ体の 1 つまたは 2 つの残基、

少なくとも 1 つの 5 , 5 ' - (エチン - 1 , 2 - ジイル) ビス (イソベンゾフラン - 1
 , 3 - ジオン) 残基、

芳香族ジアミンの 1 以上 20 未満の残基、および

芳香族非アセチレン性二無水物の少なくとも 1 つの残基
 を含み、

5 , 5 ' - (エチン - 1 , 2 - ジイル) ビス (イソベンゾフラン - 1 , 3 - ジオン) 残
基と芳香族非アセチレン性二無水物の残基の合計数が 20 未満である、請求項 1 ~ 5 のい
ずれか一項に記載のオリゴイミドまたはポリイミド。

【請求項 7】

前記オリゴイミドまたはポリイミドが、

前記無水物ベースのアセチレンのエンドキャップ体の 1 つまたは 2 つの残基、

少なくとも 1 つの 5 , 5 ' - (エチン - 1 , 2 - ジイル) ビス (イソベンゾフラン - 1
 , 3 - ジオン) 残基、

芳香族ジアミンの 20 以上 200 未満の残基、および

芳香族非アセチレン性二無水物の少なくとも 1 つの残基
 を含み、

5 , 5 ' - (エチン - 1 , 2 - ジイル) ビス (イソベンゾフラン - 1 , 3 - ジオン) 残
基と芳香族非アセチレン性二無水物の残基との合計数が 20 以上 200 未満である、請求
項 1 ~ 5 のいずれか一項に記載のオリゴイミドまたはポリイミド。

【請求項 8】

前記オリゴイミドまたはポリイミドが、

前記無水物ベースのアセチレンのエンドキャップ体の 1 つまたは 2 つの残基、

少なくとも 1 つの 5 , 5 ' - (エチン - 1 , 2 - ジイル) ビス (イソベンゾフラン - 1
 , 3 - ジオン) 残基、

芳香族ジアミンの少なくとも 200 の残基、および

芳香族非アセチレン性二無水物の少なくとも 1 つの残基
 を含み、

5 , 5 ' - (エチン - 1 , 2 - ジイル) ビス (イソベンゾフラン - 1 , 3 - ジオン) 残
基と芳香族非アセチレン性二無水物の残基との合計数が少なくとも 200 である、

請求項 1 ~ 5 のいずれか一項に記載のオリゴイミドまたはポリイミド。

【請求項 9】

前記オリゴイミドまたはポリイミドがオリゴイミドであるとき、前記オリゴイミドまたはポリイミドの重量平均分子量が 2,500 ~ 7,500 であり、前記オリゴイミドまたはポリイミドがポリイミドであるとき、前記オリゴイミドまたはポリイミドの重量平均分子量が 25,000 ~ 100,000 である、請求項 1 ~ 8 のいずれか一項に記載のオリゴイミドまたはポリイミド。

【請求項 10】

無水物ベースのアセチレンのエンドキャップ体、5,5'-(エチン-1,2-ジイル)ビス(イソベンゾフラン-1,3-ジオン)または4,4'-(エチン-1,2-ジイル)ビス(イソベンゾフラン-1,3-ジオン)、芳香族ジアミン、および芳香族非アセチレン性二無水物を溶媒中で混合する工程、

約 1 ~ 24 時間、約 20 ~ 120 の温度で混合したモノマーを反応させ、前記無水物ベースのアセチレンのエンドキャップ体の残基および 5,5'-(エチン-1,2-ジイル)ビス(イソベンゾフラン-1,3-ジオン)または 4,4'-(エチン-1,2-ジイル)ビス(イソベンゾフラン-1,3-ジオン)の残基を含むオリゴ(アミド酸)またはポリ(アミド酸)を得る工程、ならびに

前記無水物ベースのアセチレンのエンドキャップ体の残基および 5,5'-(エチン-1,2-ジイル)ビス(イソベンゾフラン-1,3-ジオン)または 4,4'-(エチン-1,2-ジイル)ビス(イソベンゾフラン-1,3-ジオン)の残基を含む得られたオリゴ(アミド酸)またはポリ(アミド酸)を脱水して、オリゴイミドまたはポリイミドを得る工程、

を含む、オリゴイミドまたはポリイミドを得る方法。

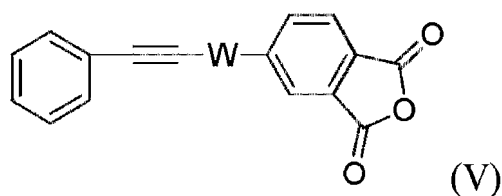
【請求項 11】

前記脱水が、前記無水物ベースのアセチレンのエンドキャップ体の残基および 5,5'-(エチン-1,2-ジイル)ビス(イソベンゾフラン-1,3-ジオン)または 4,4'-(エチン-1,2-ジイル)ビス(イソベンゾフラン-1,3-ジオン)の残基を含む得られたオリゴ(アミド酸)またはポリ(アミド酸)を加熱することによって行われる、請求項 10 に記載の方法。

【請求項 12】

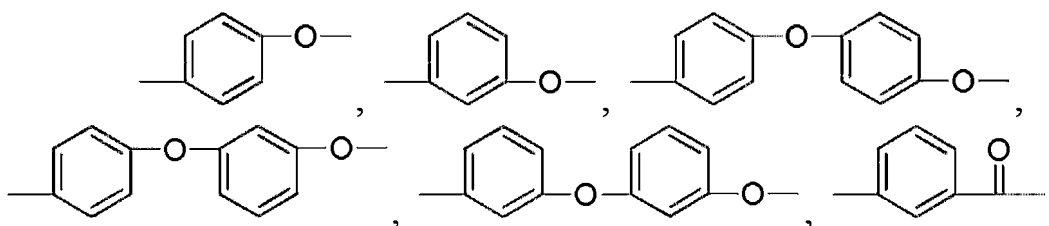
前記無水物ベースのアセチレンのエンドキャップ体が式(V)に係る無水物

【化 6】



(式中 W が

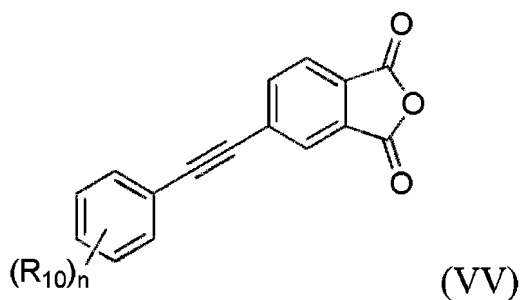
【化 7】



からなる群から選択されるラジカルである)、

式(VV)に係る無水物

【化 8】



(式中「 n 」が 1 ~ 5 の整数であり、

「 n 」が 1 超の整数である場合、 R_{10} は互いに独立してハロゲン、ニトロ、アリール、ベンジル、フェノキシ、C 1 ~ 4 のアルキル、シアノ、トリフルオロメチル、およびベンゾイルからなる群から選択される)、または

5 - (フェニルエチニル) イソベンゾフラン - 1, 3 - ジオン (PEPA)、5 - エチニルイソベンゾフラン - 1, 3 - ジオン (EPA)、5 - (3 - フェニルプロピオロイル) イソベンゾフラン - 1, 3 - ジオン (PETA) および 5 - (プロブ - 1 - イン - 1 - イル) イソベンゾフラン - 1, 3 - ジオン (MEPA) からなる群から選択される、無水物

である、請求項 10 または 11 に記載の方法。

【請求項 13】

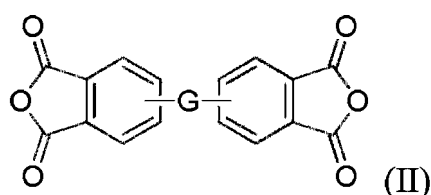
前記無水物ベースのアセチレンのエンドキャップ体が 5 - (フェニルエチニル) イソベンゾフラン - 1, 3 - ジオン (PEPA) であり、

前記芳香族非アセチレン性二無水物が 5, 5' - (エチン - 1, 2 - ジイル) ビス (イソベンゾフラン - 1, 3 - ジオン) (EBPA) である、請求項 12 に記載の方法。

【請求項 14】

前記芳香族非アセチレン性二無水物がピロメリト酸二無水物または一般式 (II) に係る二無水物

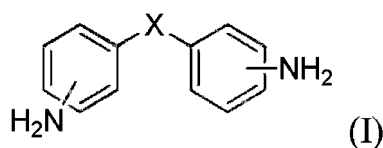
【化 9】



(式中、G は、直接の結合またはカルボニル基、メチレン基、スルホン基、スルフィド基、エーテル基、-C(O)-フェニレン-C(O)-基、イソプロピリデン基、ヘキサフルオロイソプロピリデン基、3 - オキシフェノキシ基、4 - オキシフェノキシ基、4' - オキシ - 4 - ビフェノキシ基、および 4 - [1 - (4 - オキシフェニル) - 1 - メチルエチル] フェノキシ基からなる群から選択される二価の基を示す) であり、

前記芳香族ジアミンが、1, 4 - ジアミノベンゼン、1, 3 - ジアミノベンゼンおよび一般式 (I) に係るジアミン

【化 10】



(式中、アミノ基が各ベンゼン残基の任意の炭素原子に結合し、

X が直接の結合または -O-、-S-、-C(O)-、-C(CH₃)₂-、-C(C

F_3)₂ -、-CH₂-、3 - オキシフェノキシ基、4 - オキシフェノキシ基、4' - オキシ - 4 - ビフェノキシ基、および 4 - [1 - (4 - オキシフェニル) - 1 - メチルエチル] フェノキシ基からなる群から選択される部分である)

から選択される、請求項 10 ~ 13 のいずれか一項に記載の方法。

【請求項 15】

前記芳香族非アセチレン性二無水物が、ピロメリト酸二無水物、4, 4' - オキシジフタル酸無水物、2, 2 - ビス - [4 - (3, 4 - ジカルボキシフェノキシ) フェニル] - プロパン二無水物、3, 3', 4, 4' - ベンゾフェノンテトラカルボン酸二無水物、3, 3', 4, 4' - テトラカルボキシビフェニル二無水物、4, 4', 5, 5' - スルホニルジフタル酸無水物、および 5, 5' - (パーフルオロプロパン - 2, 2 - ジイル) ビス (イソベンゾフラン - 1, 3 - ジオン) からなる群から選択され、

前記芳香族ジアミンが、4, 4' - オキシジアニリン、1, 4 - ジアミノベンゼン、1, 3 - ジアミノベンゼン、1, 3 - ビス - (4 - アミノフェノキシ) ベンゼン、1, 3 - ビス - (3 - アミノフェノキシ) ベンゼン、メチレンジアニリン、4, 4' - ジアミノジフェニルスルホンおよび 3, 4' - オキシジアニリンからなる群から選択される、請求項 14 に記載の方法。

【請求項 16】

前記オリゴイミドまたはポリイミドを得るために用いられる前記無水物ベースのアセチレンのエンドキャップ体、5, 5' - (エチン - 1, 2 - ジイル) ビス (イソベンゾフラン - 1, 3 - ジオン) (EBP A) または 4, 4' - (エチン - 1, 2 - ジイル) ビス (イソベンゾフラン - 1, 3 - ジオン)、前記芳香族ジアミン、および前記芳香族非アセチレン性二無水物の相対モル量が、それぞれ、

ジアミン：1.01 ~ 1.2、

二無水物：0.1 ~ 0.9、

5, 5' - (エチン - 1, 2 - ジイル) ビス (イソベンゾフラン - 1, 3 - ジオン) または 4, 4' - (エチン - 1, 2 - ジイル) ビス (イソベンゾフラン - 1, 3 - ジオン)：0.1 ~ 0.9、および

無水物ベースのアセチレンのエンドキャップ体：0.01 ~ 0.3、であり、

ただし、二無水物および 5, 5' - (エチン - 1, 2 - ジイル) ビス (イソベンゾフラン - 1, 3 - ジオン) または 4, 4' - (エチン - 1, 2 - ジイル) ビス (イソベンゾフラン - 1, 3 - ジオン) の相対モル量の合計が 1 に等しい、

請求項 10 ~ 15 のいずれか一項に記載の方法。

【請求項 17】

請求項 10 ~ 16 のいずれか一項に記載の方法によって得られる、オリゴイミドまたはポリイミド。

【請求項 18】

請求項 1 ~ 9 のいずれか一項に記載のオリゴイミドもしくはポリイミド、または請求項 17 に記載のオリゴイミドもしくはポリイミドを含む物品であって、

前記物品が、エレクトロニクス用のフレキシブルフィルム、ワイヤー隔離、ワイヤーコーティング、ワイヤーエナメル、インク、または耐荷重性構成成分である、物品。