

【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17年8月18日(2005.8.18)

【公開番号】特開2003-238678(P2003-238678A)

【公開日】平成15年8月27日(2003.8.27)

【出願番号】特願2002-44344(P2002-44344)

【国際特許分類第7版】

C 0 8 G 65/48

C 0 8 J 5/22

// C 0 8 L 71:10

【F I】

C 0 8 G 65/48

C 0 8 J 5/22 C E Z

C 0 8 L 71:10

【手続補正書】

【提出日】平成17年1月31日(2005.1.31)

【手続補正1】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】特許請求の範囲

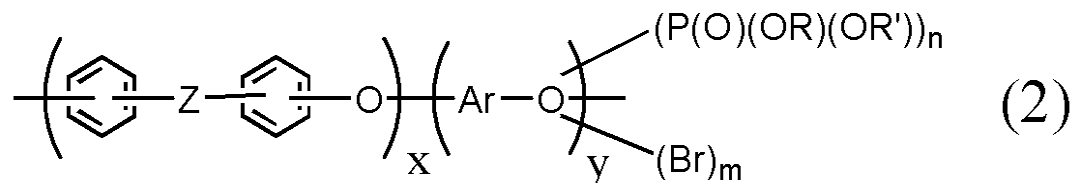
【補正方法】変更

【補正の内容】

【特許請求の範囲】

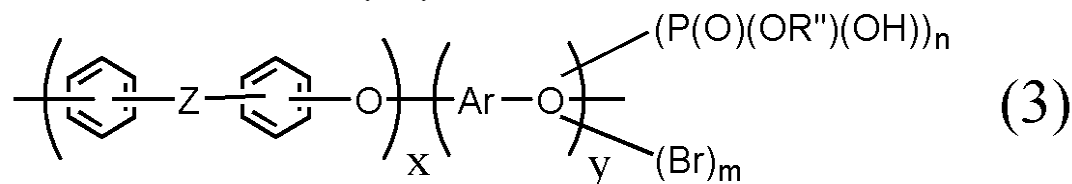
【請求項1】

一般式(2)



(式中、 $x$ 、 $y$ はそれぞれ繰り返し単位の数を表し、 $x$ と $y$ の和が10～100000の範囲、 $x$ に対する $y$ の比が0.01～100の範囲である。-Z-は-SO<sub>2</sub>-または-CO-を表し、 $x$ 個ある-Z-は互いに同一であっても異なっても良い。-Ar-はヘテロ元素を含んでいてもよい炭素数4～18の2価の芳香族系の基を表し、該-Ar-は置換基を有していてもよく、 $y$ 個ある-Ar-は互いに同一であっても異なっても良い。R、R'はそれぞれ独立にアルキル基を表す。 $m$ 、 $n$ はそれぞれ繰り返し単位当りの平均置換基数を表し、 $m$ は0～8、 $n$ は8以下の正の数を表し、 $m$ と $n$ の和は8以下である。)

又は遊離酸の形が一般式(3)



(式中、-Z-、 $x$ 、 $y$ 、-Ar-、 $m$ 、 $n$ は前記と同じ意味を表し、R''は水素又はアルキル基をあらわす。)

で示される芳香族系高分子ホスホン酸類を有効成分とする高分子電解質。

## 【請求項 2】

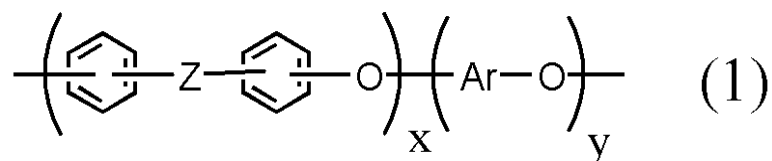
- Ar - が、置換されていても良いフェニレン基又は置換されていても良いビフェニルジイル基であることを特徴とする請求項 1 記載の高分子電解質。

## 【請求項 3】

請求項 1 又は 2 に記載の高分子電解質を用いてなることを特徴とする高分子電解質膜。

## 【請求項 4】

一般式 ( 1 )



( 式中、- Z -、x、y、- Ar - は前記と同じ意味を表す。 )

で示される芳香族系高分子化合物をプロモ化剤でプロモ化した後、有機溶媒中ハロゲン化ニッケル触媒存在下、これに一般式 ( 4 )



( R、R'、R'' はそれぞれ独立にアルキル基をあらわす。 )

で示される亜リン酸トリアルキルを作用させることを特徴とする前記一般式 ( 2 ) で示される芳香族系高分子ホスホン酸類の製造方法。

## 【請求項 5】

前記一般式 ( 1 ) で示される芳香族系高分子化合物をプロモ化剤でプロモ化した後、有機溶媒中ハロゲン化ニッケル触媒存在下、これに前記一般式 ( 4 ) で示される亜リン酸トリアルキルを作用させて前記一般式 ( 2 ) で示される芳香族系高分子ホスホン酸類を生成せしめ、次いでこれを加水分解することを特徴とする遊離酸の形が前記一般式 ( 3 ) で示される芳香族系高分子ホスホン酸類の製造方法。

## 【請求項 6】

ハロゲン化ニッケルとして、塩化ニッケル(II)を使用することを特徴とする請求項 4 又は 5 に記載の製造方法。

## 【請求項 7】

有機溶媒として、アミド化合物を使用することを特徴とする請求項 4 ~ 6 いずれかに記載の製造方法。

## 【請求項 8】

亜リン酸トリアルキルとして、亜リン酸トリメチル、亜リン酸トリエチルから選ばれる少なくとも 1 種を使用することを特徴とする請求項 4 ~ 7 いずれかに記載の製造方法。

## 【請求項 9】

前記一般式 ( 2 ) で示される芳香族系高分子ホスホン酸類を加水分解することを特徴とする遊離酸の形が前記一般式 ( 3 ) で示される芳香族系高分子ホスホン酸類の製造方法。

## 【請求項 10】

加水分解を、アルカリの存在下を実施することを特徴とする請求項 5 又は 9 に記載の製造方法。

## 【請求項 11】

加水分解を、酸の存在下を実施することを特徴とする請求項 5 又は 9 に記載の製造方法。

## 【請求項 12】

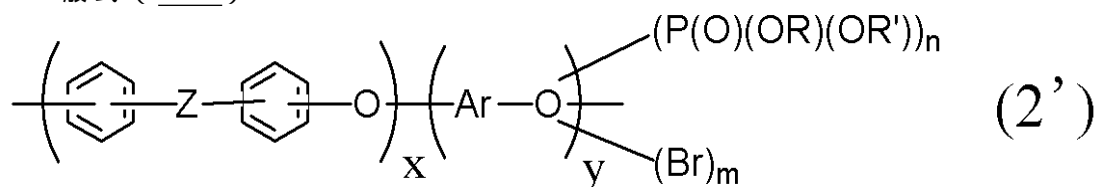
加水分解を、ホスホン酸ジエステルにトリアルキルシリルハライドを作用させた後に実施することを特徴とする請求項 5 又は 9 に記載の製造方法。

## 【請求項 13】

- Ar - が、置換されていても良いフェニレン基又は置換されていても良いビフェニルジイル基であることを特徴とする請求項 4 ~ 12 いずれかに記載の製造方法。

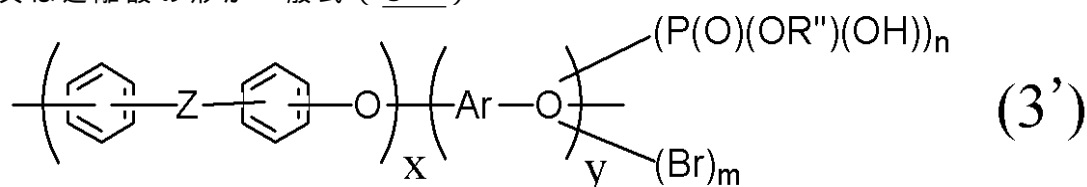
## 【請求項 14】

一般式 ( 2' )



(式中、 $x$ 、 $y$  はそれぞれ繰り返し単位の数を表し、 $x$  と  $y$  の和が  $10 \sim 100000$  の範囲、 $x$  に対する  $y$  の比が  $0.01 \sim 100$  の範囲である。- Z - は -  $\text{SO}_2$  - または -  $\text{CO}$  - を表し、 $x$  個ある - Z - は互いに同一であっても異なっても良い。- Ar - は、*o*-フェニレン基、*m*-フェニレン基、*p*-フェニレン基、ナフタレン-1,4-ジイル基、ナフタレン-1,5-ジイル基、ナフタレン-2,6-ジイル基、ナフタレン-2,3-ジイル基、ピフェニル-4,4'-ジイル基、ピフェニル-3,3'-ジイル基、*p*-テルフェニル-4,4''-ジイル基、フルオレン-2,7-ジイル基、フルオレン-3,6-ジイル基、カルバゾール-2,7-ジイル基、カルバゾール-3,6-ジイル基、チオフェン-2,5-ジイル基、ジベンゾチオフェン-2,7-ジイル基、フラン-2,5-ジイル基、ジベンゾフラン-2,7-ジイル基、ジベンゾフラン-3,6-ジイル基、ジフェニルアミン-4,4'-ジイル基、ジフェニルエーテル-4,4'-ジイル基から選ばれる炭素数  $4 \sim 18$  の 2 価の芳香族系の基を表し、該 - Ar - は置換基を有していてもよく、 $y$  個ある - Ar - は互いに同一であっても異なっても良い。R、R' はそれぞれ独立にアルキル基を表す。 $m$ 、 $n$  はそれぞれ繰り返し単位当りの平均置換基数を表し、 $m$  は  $0 \sim 8$ 、 $n$  は  $8$  以下の正の数を表し、 $m$  と  $n$  の和は  $8$  以下である。)

又は遊離酸の形が一般式 ( 3' )



(式中、- Z -、 $x$ 、 $y$ 、- Ar -、 $m$ 、 $n$  は前記と同じ意味を表し、R'' は水素又はアルキル基をあらわす。)

で示される芳香族系高分子ホスホン酸類。

【請求項 15】

- Ar - が、置換されていても良いフェニレン基又は置換されていても良いピフェニルジイル基であることを特徴とする請求項 14 記載の芳香族系高分子ホスホン酸類。