(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
2009 年7 月9 日 (09.07.2009)

PCT

(10) 国際公開番号
WO 2009/084229 A1

(51) 国際特許分類:
C08G 59/50 (2006.01) *H01L 51/50* (2006.01)
C07C 243/40 (2006.01) *H05B 33/04* (2006.01)
C07C 271/28 (2006.01)

(21) 国際出願番号: PCT/JP2008/004016

(22) 国際出願日: 2008 年12 月26 日 (26.12.2008)

(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 2007-340785
2007 年12 月28 日 (28.12.2007) JP

(71) 出願人 (米国を除く全ての指定国について): 三井化学株式会社 (MITSUI CHEMICALS, INC.) [JP/JP]; 〒1057117 東京都港区東新橋１丁目５番２号 Tokyo (JP).

(72) 発明者; および

(75) 発明者/出願人 (米国についてのみ): 玉谷 弘明 (TAMATANI, Hiroaki). 千田 光昭 (CHIDA, Mitsuaki). 山本 祐五 (YAMAMOTO, Yugo). 伊東 祐一 (ITO, Yuichi). 中野 隆志 (NAKANO, Takashi). 吉村 成利 (YOSHIMURA, Naritoshi).

(74) 代理人: 鷲田 公一 (WASHIDA, Kimihito); 〒2060034 東京都多摩市鶴牧１丁目２４－１新都市センタービル５階 Tokyo (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, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DK, DM, DO, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, GT, HN, HR, HU, ID, IL, IN, IS, JP, KE, KG, KM, KN, KP, KR, KZ, LA, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LY, MA, MD, ME, MG, MK, MN, MW, MX, MY, MZ, NA, NG, NI, NO, NZ, OM, PG, PH, PL, PT, RO, RS, RU, SC, SD, SE, SG, SK, SL, SM, ST, SV, SY, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, 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, GH, GM, KE, LS, MW, MZ, NA, SD,

[続葉有]

(54) Title: LATENT CURING AGENTS, EPOXY RESIN COMPOSITIONS CONATING THE SAME, SEALING MATERIALS, AND ORGANIC EL DISPLAYS

(54) 発明の名称: 潜在性硬化剤、それを含むエポキシ樹脂組成物、シール剤および有機ＥＬディスプレイ

[図1]

表1－1 AA

LL	単位	BB	CC 実施例1 MM	DD 実施例2 NN	EE 実施例3 OO	FF 実施例4 PP	GG 実施例5 QQ	HH 実施例6 RR	II 実施例7 SS	JJ 実施例8 TT	KK 実施例9 UU
アミンイミド化合物			化合物1	化合物2	化合物3	化合物4	化合物5	化合物6	化合物7	化合物8	化合物9
VV 低温硬化性 (90℃／2h)	%		82.3	92.3	76.8	92.1	90.8	94.2	94.2	94.4	89.0
			△	○	△	○	○	○	○	○	△
WW 室温での保存安定性	-		1.3	1.7	1.6	1.7	1.7	1.7	1.6	1.4	1.5
			○	△	△	△	△	△	△	○	△
XX 初期粘度	mPa・s		4360	5640	6000	5320	5770	4770	4350	4260	3953
YY N-N結合エネルギー	kJ/mol		205.6	145.5	179.3	139.2	140.2	127.8	111.4	147.9	174.1

表1－2 ZZ

LL	単位	BB	aa 比較例1 ii	bb 比較例2 jj	cc 比較例3 kk	dd 比較例4 ll	ee 比較例5 mm	ff 比較例6 nn	gg 比較例7 oo	hh 比較例8 pp
アミンイミド化合物			化合物A	化合物B	化合物F	化合物G	化合物H	化合物I	化合物C	化合物J
VV 低温硬化性 (90℃／2h)	%		64.2	86.2	rr 溶解せず (測定不可)		64.3	49.3	90.0	87.9
			△	△			△	×	○	△
WW 室温での保存安定性	-		1.6	測定不可	qq		2.0	1.5	3.5	2.8
			△	×			×	△	×	×
XX 初期粘度	mPa・s		7330	73000			5640	7250	100000	100000
YY N-N結合エネルギー	kJ/mol		216.1	174.8	-	242.6	219.6	227.0	187.5	192.7

AA TABLE 1-1
BB UNIT
CC EXAMPLE 1
DD EXAMPLE 2
EE EXAMPLE 3
FF EXAMPLE 4
GG EXAMPLE 5
HH EXAMPLE 6
II EXAMPLE 7
JJ EXAMPLE 8
KK EXAMPLE 9
LL AMINE IMIDE COMPOUND
MM COMPOUND 1
NN COMPOUND 2
OO COMPOUND 3
PP COMPOUND 4
QQ COMPOUND 5
RR COMPOUND 6
SS COMPOUND 7
TT COMPOUND 8
UU COMPOUND 9
VV LOW-TEMPERATURE CURING PROPERTIES (90°C/2h)
WW STORAGE STABILITY AT ROOM TEMPERATURE
XX INITIAL VISCOSITY
YY N-N BOND ENERGY
ZZ TABLE 1-2
aa COMPARATIVE EXAMPLE 1
bb COMPARATIVE EXAMPLE 2
cc COMPARATIVE EXAMPLE 3
dd COMPARATIVE EXAMPLE 4
ee COMPARATIVE EXAMPLE 5
ff COMPARATIVE EXAMPLE 6
gg COMPARATIVE EXAMPLE 7
hh COMPARATIVE EXAMPLE 8
ii COMPOUND A
jj COMPOUND B
kk COMPOUND F
ll COMPOUND G
mm COMPOUND H
nn COMPOUND I
oo COMPOUND C
pp COMPOUND J
qq IMMEASURABLE
rr INSOLUBLE (IMMEASURABLE)

(57) Abstract: The invention aims to provide latent curing agents which exert high low-temperature curing properties when used together with ionically polymerizable compounds and which exhibit high storage stability at room temperature. Latent curing agents for ionically polymerizable compounds which agents each contain a hydroxyl-free amine imide compound having an N-N bond energy of 100 to 210kJ/mol as determined by B3LYP density functional theory method.

(57) 要約: 本発明の目的は、イオン重合性化合物と併用されたときに、高い低温硬化性と、室温での高い保存安定性とを有する潜在性硬化剤を提供することである。本発明の潜在性硬化剤は、イオン重合性化合物を硬化させる潜在性硬化剤であって、水酸基を有しないアミンイミド化合物を含み、前記アミンイミド化合物の、Ｂ３ＬＹＰ密度汎関数法により求められるＮ－Ｎ結合エネルギーが１００～２１０ｋＪ／ｍｏｌである。

WO 2009/084229 A1

SL, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), ユーラシア (AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, RU, TJ, TM), ヨーロッパ (AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HR, HU, IE, IS, IT, LT, LU, LV, MC, MT, NL, NO, PL, PT, RO, SE, SI, SK, TR), OAPI (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, ML, MR, NE, SN, TD, TG).

添付公開書類:
— 国際調査報告書

明　細　書

潜在性硬化剤、それを含むエポキシ樹脂組成物、シール剤および有機ＥＬディスプレイ

技術分野

[0001] 本発明は、潜在性硬化剤、それを含むエポキシ樹脂組成物、シール剤および有機ＥＬディスプレイに関する。

背景技術

[0002] アミンイミド化合物は、ポリウレタン樹脂やポリウレア樹脂のような重合性化合物の原料や、架橋剤、洗浄剤、界面活性剤、表面処理剤、医農薬中間体などとして有用な化合物として知られている。

[0003] また、アミンイミド化合物は、加熱により分子構造中の窒素－窒素（Ｎ－Ｎ）結合が切断されて分解し、イソシアネート化合物および３級アミンを発生するという特徴を有する。分解によって生成するイソシアネート化合物は、水酸基やアミノ基などを有する有機化合物と反応する。一方、分解によって生成する３級アミンは塩基性が高いため、エポキシ樹脂などの硬化剤として作用する。そのため、アミンイミド化合物は、例えば、エポキシ樹脂の潜在性硬化剤として利用されている。

[0004] しかしながら、アミンイミド化合物を分解させるには、通常、１３０℃以上の温度が必要となる。そのため、比較的低温で硬化させる必要がある接着剤や塗料あるいは電子・電気材料用途のエポキシ樹脂組成物の潜在性硬化剤に、アミンイミド化合物を適用することは難しい。そこで、エポキシ樹脂組成物をより低温で硬化させることができる（低温硬化性が高い）、アミンイミド化合物が望まれている。

[0005] 従来、より低温でエポキシ樹脂組成物を硬化させることができるアミンイミド化合物としては、分子構造中のカルボニル炭素に結合する炭素に水酸基が結合した有機基を有するアミンイミド化合物（例えば、特許文献１参照）や、分子構造中に１つまたは２つの水酸基を有するアミンイミド化合物（例

えば、特許文献２参照）が知られている。

[0006] 一方で、特許文献３には、分子構造中のアミンイミド基のカルボニル炭素にオレフィン性二重結合基を導入したアミンイミド化合物が開示されている。また特許文献３には、オレフィン性二重結合基だけでなく、さらに水酸基を有するアミンイミド化合物も開示されており、その水酸基はイソシアネートと反応しうることが記載されている。しかしながら、特許文献３記載のアミンイミド化合物は、嫌気反応によって重合する重合性化合物（モノマー）であって、他の重合性化合物を重合または硬化させる硬化剤として用いられてはいない。

特許文献1：特開２０００－２２９９２７号公報

特許文献2：特開２００３－０９６０６１号公報

特許文献3：米国特許第４，００５，０５５号明細書

発明の開示

発明が解決しようとする課題

[0007] 最近、前述したアミンイミド化合物の特徴を活かし、アミンイミド化合物を潜在性硬化剤として含むエポキシ樹脂組成物を、液晶ディスプレイや有機ＥＬディスプレイなどの表示素子のシール剤に応用することが検討されている。液晶や有機ＥＬ素子は熱により劣化しやすいので、例えば８０℃程度の低温で硬化するシール剤が求められる。

[0008] しかしながら、特許文献１および２記載のアミンイミド化合物は、分解のために１００～１２０℃程度の加熱を必要とするため、８０℃程度の加熱では分解せず、エポキシ樹脂を硬化させることができない。

[0009] さらに、表示素子のシール剤には、低い加熱温度でも硬化する特性（低温硬化性）とともに、室温での高い保存安定性が求められる。保存安定性とは、室温下では反応性が低く、安定した状態で保持されるシール剤の特性をいう。室温安定性が高いほど、基板上にシール剤を塗布する際の作業効率も向上する。しかしながら、特許文献１および２記載のアミンイミド化合物は、分子構造中に反応性が高い水酸基を有しているので、当該アミンイミド化合

物を含むエポキシ樹脂組成物は保存安定性が低い。

[0010] したがって、低温硬化性と室温での保存安定性がともに高いエポキシ樹脂組成物を提供しうる、潜在性硬化剤が望まれている。

[0011] そこで、本発明は、上記課題に鑑みて、室温での保存安定性および低温硬化性がいずれも高いエポキシ樹脂組成物を与え得る、潜在性硬化剤を提供することを目的とする。

また、当該潜在性硬化剤を含むことにより、室温での保存安定性および低温硬化性に優れるエポキシ樹脂組成物およびシール剤、該シール剤を利用した有機ＥＬディスプレイ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

[0012] まず本発明者らは、アミンイミド化合物の分子構造内に、Ｎ－Ｎ結合に電子を供与しうる置換基を導入したり、Ｎ－Ｎ結合の付近に嵩高な置換基を導入したりすることで、アミンイミド化合物のＮ－Ｎ結合エネルギーを比較的低くすることができることを見出した。そして、そのようなアミンイミド化合物を潜在性硬化剤とすれば、低温加熱によってもエポキシ樹脂などを硬化することができることを見出した。

[0013] また、水酸基を含まない分子構造を有するアミンイミド化合物を、潜在性硬化剤として含むエポキシ樹脂組成物は、室温での保存安定性が高いことを見出した。

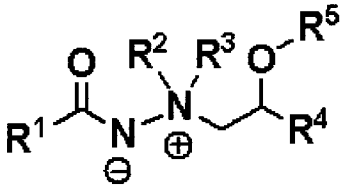
[0014] すなわち、本発明の第１は、以下に示される潜在性硬化剤に関する。

［１］ イオン重合性化合物を硬化させる潜在性硬化剤であって、水酸基を有しないアミンイミド化合物を含み、前記アミンイミド化合物の、Ｂ３ＬＹＰ密度汎関数法により求められるＮ－Ｎ結合エネルギーが１００～２１０ｋＪ／ｍｏｌである、潜在性硬化剤。

［２］ 前記アミンイミド化合物のＮ－Ｎ結合エネルギーが、１００～１９５ｋＪ／ｍｏｌである、［１］記載の潜在性硬化剤。

［３］ 前記アミンイミド化合物は、下記一般式（１）で表される、［１］または［２］記載の潜在性硬化剤。

[0015] [化1]



····(1)

[一般式（１）中の、Ｒ[1]およびＲ[4]は、互いに同一もしくは異なってもよい有機基を表し；Ｒ[2]およびＲ[3]は、それぞれ独立して、未置換または置換基を有するアルキル基またはアリール基を表すか、あるいは相互に連結して環を形成し；Ｒ[5]は、有機基を表す。ただし、Ｒ[1]～Ｒ[5]は、いずれもイオン重合性化合物に対して活性な基を有しないものとする。]

［４］　前記一般式（１）中のＲ[1]が、未置換または置換基を有する、アリール基またはアリーロキシ基である、［３］記載の潜在性硬化剤。

［５］　前記一般式（１）中のＲ[2]とＲ[3]が相互に連結して、炭素数が４～８の２価の飽和炭化水素基、－（ＣＨ$_2$）$_n$Ｏ（ＣＨ$_2$）$_n$－または－（ＣＨ$_2$）$_n$ＮＲ[11]（ＣＨ$_2$）$_n$－（いずれも、ｎは２～４の自然数を表わし；Ｒ[11]は任意の有機基を表す）を表す、［３］または［４］記載の潜在性硬化剤。

［６］　前記一般式（１）中のＲ[5]がカルボニル基を有する有機基であって、

前記カルボニル基の炭素原子が、前記一般式（１）の酸素原子と結合している、［３］～［５］のいずれかに記載の潜在性硬化剤。

［７］　前記一般式（１）中のＲ[5]がアシル基である、［３］～［６］のいずれかに記載の潜在性硬化剤。

[0016] 本発明の第２は、以下に示されるエポキシ樹脂組成物およびシール剤などに関する。

［８］　（ａ）［１］～［７］のいずれかに記載の潜在性硬化剤と、（ｂ）エポキシ樹脂と、を含む、エポキシ樹脂組成物。

［９］　（ｃ）酸無水物をさらに含む、［８］記載のエポキシ樹脂組成物。

［１０］　前記エポキシ樹脂組成物において、酸無水基／エポキシ基で表される当量比が０．８～１．２であり、かつ、アミンイミド基／エポキシ基のモル比が０．００８～０．１５２である、［９］記載のエポキシ樹脂組成物。

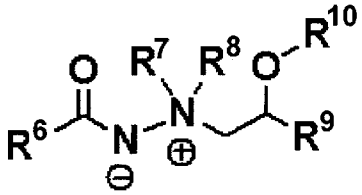
［１１］　［８］～［１０］のいずれかに記載のエポキシ樹脂組成物を含む、シール剤。

［１２］　有機ＥＬ素子が配置された表示基板と、前記表示基板と対になる対向基板と、前記表示基板と対向基板との間に介在し、前記有機ＥＬ素子を封止する［１１］記載のシール剤の硬化物と、を含む有機ＥＬディスプレイ。

[0017]　本発明の第３は、以下に示されるアミンイミド化合物に関する。

［１３］　下記一般式（２）で表される、アミンイミド化合物。

[0018] [化2]



……(2)

［一般式（２）中の、R^6は、未置換または水酸基以外の置換基を有する、アリール基またはアリーロキシ基を表し；R^7およびR^8は、それぞれ独立して、未置換または水酸基以外の置換基を有するアルキル基またはアリール基を表すか、あるいは相互に連結して水酸基を含まない環を形成し；R^9は、水酸基以外の有機基を表し；R^{10}は、未置換または水酸基以外の置換基を有する、アルキル基、アリール基、アミノカルボニル基、アシル基またはオキシカルボニル基を表わす。ただし、R^6～R^{10}は、エポキシ基に対して活性な基を有しないものとする。］

［１４］　前記一般式（２）中のR^6は、未置換のアリール基、アルキル基を有するアリール基、またはアルコキシ基を有するアリール基である、［１３］記載のアミンイミド化合物。

［１５］　前記一般式（２）中のＲ^{7}とＲ^{8}が相互に連結して、炭素数が４～８の２価の飽和炭化水素基、－（ＣＨ$_{2}$）$_{n}$Ｏ（ＣＨ$_{2}$）$_{n}$－または－（ＣＨ$_{2}$）$_{n}$ＮＲ^{12}（ＣＨ$_{2}$）$_{n}$－（いずれも、ｎは２～４の自然数を表わし；Ｒ^{12}は任意の有機基を表す）を表す、［１３］または［１４］記載のアミンイミド化合物。

発明の効果

[0019]　本発明の潜在性硬化剤に含まれるアミンイミド化合物は、低温加熱によりＮ－Ｎ結合が容易に切断し、エポキシ樹脂などの硬化を促進する３級アミンを発生する。このため、当該潜在性硬化剤を含むエポキシ樹脂組成物は、低温硬化性が高い。また、当該アミンイミド化合物は、分子構造内に水酸基を含まないので、当該潜在性硬化剤を含むエポキシ樹脂組成物は、室温での保存安定性も高い。このように、本発明の潜在性硬化剤を含むエポキシ樹脂組成物は、高い低温硬化性と室温での高い保存安定性とを有するので、有機ＥＬディスプレイに使用されるシール剤などに好適である。

図面の簡単な説明

[0020] [図1]本発明の実施例および比較例の結果を示す表である。

発明を実施するための最良の形態

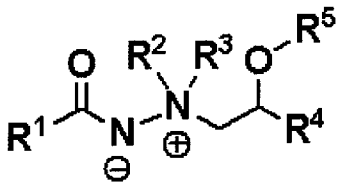
[0021]　次に、本発明を詳細に説明する。また、以下の説明では、「～」を使用して数値範囲を規定するが、本発明の「～」は、境界値を含む。例えば、「１０～１００」とは、１０以上１００以下である。

[0022] １．潜在性硬化剤

本発明の潜在性硬化剤は、イオン重合性化合物を硬化させる潜在性硬化剤であって、水酸基を有しないアミンイミド化合物（第１のアミンイミド化合物）を含む。また、水酸基を有しないアミンイミド化合物の、Ｂ３ＬＹＰ密度汎関数法により求められるＮ－Ｎ結合エネルギーは、１００～２１０ｋＪ／ｍｏｌである。

[0023]　本発明の潜在性硬化剤に含まれるアミンイミド化合物は、下記一般式（１）で表されることが好ましい。

[0024] [化3]



····(1)

[0025] 一般式（１）において、Ｒ[1]およびＲ[4]は、互いに同一もしくは異なってもよい有機基を表し；Ｒ[2]およびＲ[3]は、それぞれ独立して、未置換または置換基を有するアルキル基またはアリール基、あるいは相互に連結して環を形成し；Ｒ[5]は、有機基を表す。ただし、Ｒ[1]～Ｒ[6]はいずれも水酸基を含まない。

[0026] アミンイミド化合物のＮ－Ｎ結合エネルギーは、アミンイミド化合物のＮ－Ｎ結合の切断のしやすさを表す。つまり、Ｎ－Ｎ結合エネルギーが小さいほどＮ－Ｎ結合が容易に切断するので、アミンイミド化合物の分解性は高くなる。分解性の高いアミンイミド化合物は、イオン重合性化合物の硬化促進性が高いといえる。

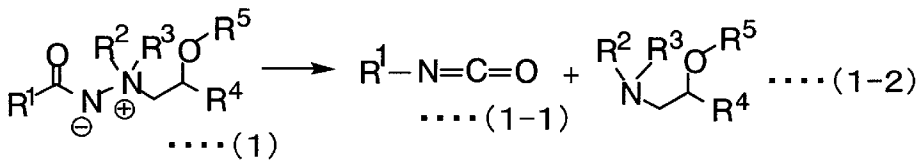
[0027] アミンイミド化合物のＮ－Ｎ結合エネルギーは、一般的に、非経験的分子軌道法や密度汎関数法などの計算方法により求めることができる。計算が比較的容易であり、かつ高精度の計算結果が得られるという点で、密度汎関数法により求めることが好ましい。本発明のアミンイミド化合物のＮ－Ｎ結合エネルギーは、密度汎関数法の一つとして知られる「Ｂ３ＬＹＰ法」で計算して求められる。計算プログラムとして、Ｇａｕｓｓｉａｎ ０３ Ｒｅｖ．Ｃ．０２を使用することができる。基底関数は、全ての元素に対してｃｃ－ｐＶＤＺとすればよい。

[0028] 具体的には、以下のスキームＡで表されるアミンイミド化合物の解離反応を想定する。以下のスキームＡで表される解離反応は、一般式（１）で表されるアミンイミド化合物が、その分子構造中のＮ－Ｎ結合の切断により、一般式（１－１）で表されるイソシアネート化合物と、一般式（１－２）で表されるアミン化合物とに解離する反応である。

[0029]

[化4]

スキームA



[前記スキームＡ中のＲ[1]～Ｒ[5]は、前記一般式（１）と同義である。]

[0030] 上記スキームＡで表される解離反応における、解離前の反応物および解離後の生成物の化学構造を最適化し、それぞれの全エネルギーを算出する。そして、解離後の生成物の全エネルギーの和から、解離前のアミンイミド化合物の全エネルギーを引いた値を、Ｎ－Ｎ結合エネルギーとする。

[0031] 上記アミンイミド化合物の、Ｂ３ＬＹＰ密度汎関数法により求められるＮ－Ｎ結合エネルギーは、１００～１９５ｋＪ／ｍｏｌであることが好ましく；１００～１９０ｋＪ／ｍｏｌであることがより好ましく；１００～１７０ｋＪ／ｍｏｌであることがさらに好ましい。アミンイミド化合物を潜在性硬化剤として含む樹脂組成物に、十分な低温硬化性と保存安定性を付与するためである。

[0032] Ｎ－Ｎ結合エネルギーが２１０ｋＪ／ｍｏｌを超えると、Ｎ－Ｎ結合が強固になり、アミンイミド化合物を分解させるために高温加熱が必要となる。一方で、Ｎ－Ｎ結合エネルギーが１００ｋＪ／ｍｏｌ未満であると、室温～６０℃程度の温度下でもＮ－Ｎ結合が容易に切断してアミンイミド化合物が分解するおそれがある。このため、該アミンイミド化合物を含む樹脂組成物の保存安定性が低下するおそれがある。

[0033] アミンイミド化合物のＮ－Ｎ結合エネルギーは、一般式（１）で表されるアミンイミド化合物の置換基Ｒ[1]～Ｒ[5]、特にＲ[1]、またはＲ[2]およびＲ[3]によって調整されうる。以下に、置換基Ｒ[1]～Ｒ[5]について説明する。

[0034] まず、一般式（１）で表されるアミンイミド化合物は、イオン性重合性化合物を硬化させる潜在性硬化剤として用いられうるため、置換基Ｒ[1]～Ｒ[5]は、いずれもイオン重合性化合物に対して活性な有機基を含まない。つまり、

イオン重合性化合物がエポキシ樹脂であれば、置換基Ｒ[1]～Ｒ[5]はエポキシ基に対して活性な基を含まない。「エポキシ基に対して活性な基」には、具体的には、アミノ基、フェノール性水酸基、チオール基、カルボキシル基などが含まれる。

[0035] さらに、置換基Ｒ[1]～Ｒ[5]はいずれも、水酸基を含まないことが好ましい。エポキシ樹脂の潜在硬化剤としての保存安定性をより高めるためである。水酸基は、必ずしも、エポキシ化合物との反応性が高いとは限らないが、本発明のアミンイミド化合物に含まれないことが好ましい。

[0036] 前記一般式（１）中のＲ[1]は任意の有機基でありうるが、Ｒ[1]の具体例には、未置換または置換基を有する、アルキル基、アラルキル基、アルコキシル基、アリール基またはアリーロキシ基が含まれる。Ｒ[1]を電子供与性の高い置換基としたり、嵩高い置換基としたりすることにより、アミンイミド化合物中のＮ－Ｎ結合エネルギーを上記の範囲に調整することができる。アリール基またはアリーロキシ基（特にアリール基）は、立体的な嵩高さも有するので、アミンイミド化合物中のＮ－Ｎ結合エネルギーをより低下させうると考えられる。

[0037] Ｒ[1]のアルキル基の例には、メチル基、エチル基、プロピル基、ブチル基、ペンチル基、ヘキシル基、ペプチル基などが含まれる。これらは枝分かれしてもよいし、シクロペンチル基やシクロヘキシル基のように環状であってもよい。アラルキル基の例には、ベンジル基、フェネチル基などが含まれる。Ｒ[1]のアルコキシ基の例には、メトキシ基、エトキシ基、プロポキシ基、ブトキシ基、ペンチルオキシ基、ヘキシルオキシ基、ペプチルオキシ基などが含まれる。これらは枝分かれしてもよいし、シクロペンチルオキシ基やシクロヘキシルオキシ基のように環状であってもよい。

[0038] Ｒ[1]のアリール基の例には、フェニル基、トリル基、ナフチル基、アントラニル基などの単環式、縮合環式または多環式の炭素環式アリール基；ピリジニル基、キノリル基などのヘテロアリール基が含まれる。Ｒ[1]のアリーロキシ基の例には、フェノキシ基、ナフトキシ基が含まれる。ただし、本発明の効

果を損なわない限り、R^1のアルキル基、アルコキシ基、アリール基およびアリーロキシ基は、特に限定されない。

[0039] また、R^1には、水酸基以外の任意の置換基が導入されていてもよい。任意の置換基の例には、アルキル基、アルコキシ基、アリーロキシ基、アシルオキシ基が含まれる。中でも、R^1に導入される置換基は、R^1の電子供与性を高める点で、アルコキシ基、アルキル基であることが好ましい。

[0040] R^1に導入されるアルコキシ基またはアリーロキシ基の例には、メトキシ基、エトキシ基、プロポキシ基、ブトキシ基、ペントキシ基、フェノキシ基、トリルオキシ基が含まれる。R^1に導入されるアルキル基の例には、メチル基、エチル基、プロピル基、ブチル基、ペンチル基、ヘキシル基、ヘプチル基、オクチル基、ノニル基、デシル基、シクロプロピル基、シクロブチル基、シクロペンチル基、シクロヘキシル基、シクロヘプチル基が含まれる。R^1に導入される、これらの置換基は、１つまたは２つ以上であってもよい。置換基が２以上ある場合は、それらの置換基は同じ種類であってもよいし、異なる種類であってもよい。

[0041] R^1は、高い電子供与性を有し、かつ嵩高い有機基である点で、アリール基（特にフェニル基）であることが好ましく；未置換またはアルキル基もしくはアルコキシ基が導入されたアリール基であることがより好ましい。

[0042] R^1のフェニル基に導入される置換基は、R^1の電子供与性を高めるため、アミンイミドのカルボニル炭素に結合する炭素原子に対して、オルト位またはパラ位の炭素原子に結合していることが好ましいと考えられる。特に、オルト位の炭素原子に置換基が結合すれば、置換基R^1の嵩高さが高まるため、アミンイミド化合物中のＮ－Ｎ結合エネルギーが低下して、分解性が向上すると考えられる。また、R^1のフェニル基に２つの置換基が導入される場合、アミンイミドのカルボニル炭素に結合する炭素原子に対して、オルト位とパラ位の炭素原子のそれぞれに置換基が結合していることが好ましいと考えられる。

[0043] 前記一般式（１）中のR^2およびR^3は、それぞれ独立して、未置換または

置換基を有するアルキル基またはアリール基を表す。R^2およびR^3を、アミンイミドのN－N結合エネルギーを低下させるという点では、嵩高な置換基とすることが好ましい。嵩高な置換基の例には、未置換または水酸基以外の置換基を有する、炭素数が１～１８のアルキル基、炭素数が４～１８のアリール基（例えば、フェニル基）が含まれる。

[0044] R^2およびR^3は相互に連結して、アミンイミドのN元素とともに環を形成していてもよい。それにより、R^2およびR^3を嵩高な置換基とすることができる。例えば、R^2およびR^3は相互に連結して、炭素数が４～８の２価の飽和炭化水素基、－（CH_2）$_n$O（CH_2）$_n$－または－（CH_2）$_n$$NR^{11}$（$CH_2$）$_n$－（いずれも、ｎは２～４の自然数を表わし；$R^{11}$は任意の有機基を表す）となることが好ましい。

R^{11}は、例えば炭素数１～１０のアルキル基、アシル基、スルホニル基でありうるが、保存安定性の観点からは、アシル基またはスルホニル基であることが好ましい。

[0045] 例えば、上記R^2およびR^3が互いに連結して－（CH_2）$_2$$NR^{11}$（$CH_2$）$_2$－基となる場合、ピペラジン環を形成し；上記$R^2$および$R^3$が互いに連結してブチレンとなる場合、ピロリジン環を形成し；上記R^2およびR^3が互いに連結してペンチレンとなる場合、ピペリジン環を形成し；上記R^2およびR^3が互いに連結して－（CH_2）$_2$O（CH_2）$_2$－基となる場合、モルホリン環を形成する。

[0046] R^2およびR^3は互いに連結して、－U_n－NR^{11}－U_n－で表される２価の有機基（Ｕは不飽和結合を持つ炭化水素基）となってもよい。例えば、U_nが－ＣＨ＝ＣＨ－であれば、ジヒドロピラジン環を形成する。

[0047] 前記一般式（１）中のR^4は、水酸基を含まない任意の有機基である。中でも、未置換または置換基を有する、アルキル基、アリール基またはアリーロキシ基が好ましい。

[0048] R^4のアルキル基の例には、メチル基、エチル基、プロピル基、ブチル基、ペンチル基、ヘキシル基、ヘプチル基、オクチル基、ノニル基、デシル基、

シクロプロピル基、シクロブチル基、シクロペンチル基、シクロヘキシル基、シクロヘプチル基、ベンジル基およびフェネチル基などが含まれる。

R^4のアリール基の例には、フェニル基、トリル基などの単環式アリール基；ナフチル基、アントラニル基などの縮合環式アリール基；ビフェニル基などの多環式アリール基；およびピリジン基、キノリル基のようなヘテロアリール基が含まれる。R^4のアリーロキシ基の例には、フェノキシ基、ナフトキシ基などが含まれる。

[0049] R^4には、水酸基以外の置換基が導入されていてもよい。R^4に導入される置換基の例には、アルキル基、アルコキシ基、アリールオキシ基、アシルオキシ基が含まれる。これらの置換基は、R^1に導入される置換基と同様である。

[0050] 一般式（１）で表されるアミンイミド化合物のR^5は、樹脂組成物の室温における保存安定性を高めるという点から、樹脂組成物中の他の成分（主に酸無水物など）との反応性を抑える「保護基」として機能する。

[0051] 一般式（１）中のR^5は、水酸基を含まない有機基であればよい。好ましくは、未置換または水酸基以外の置換基を有する、アルキル基もしくはアリール基、カルボニル基を含む有機基、またはスルホニル基を含む有機基であることが好ましい。

[0052] R^5のアルキル基の例には、メチル基、エチル基、プロピル基、ブチル基、ベンジル基、フェネチル基が含まれる。R^5のアリール基の例には、フェニル基、トリル基などの単環式アリール基；ナフチル基、アントラニル基などの縮合環式アリール基；ビフェニル基などの多環式アリール基；ピリジン基、キノリル基などのヘテロアリール基が含まれる。

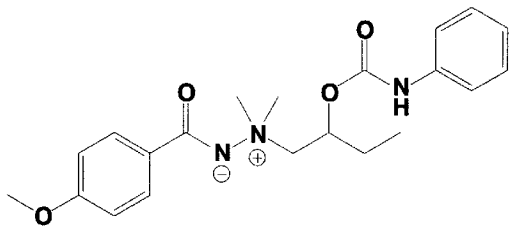
[0053] R^5のカルボニル基を含む有機基には、アルキル置換アミノカルボニル基；アリール置換アミノカルボニル基などのＮ置換アミノカルボニル基；ホルミル基；アセチル基、イソプロピルカルボニル基、ブチルカルボニル基、ベンゾイル基などのアシル基；メチルオキシカルボニル基、ベンジルオキシカルボニル基、ｔ－ブトキシカルボニル基などのＯ置換オキシカルボニル基；が

含まれる。

[0054] R[5]に導入される置換基の例には、アルキル基、アルコキシ基、アリールオキシ基、アシルオキシ基が含まれる。これらの置換基の具体例は、R[1]に導入される置換基と同様である。

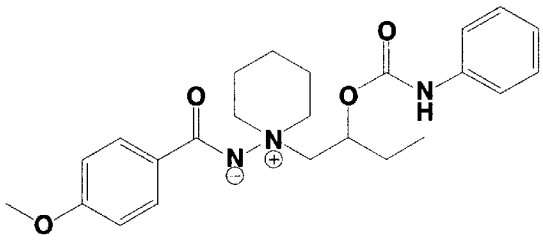
[0055] 前記一般式（１）で表されるアミンイミド化合物の具体例には、以下の化合物が含まれるが、これらに限定されるものではない。

[0056] [化5]



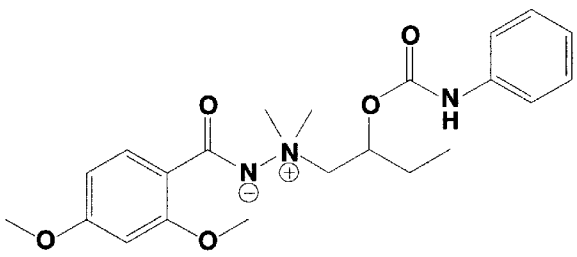
…(3)

[0057] [化6]



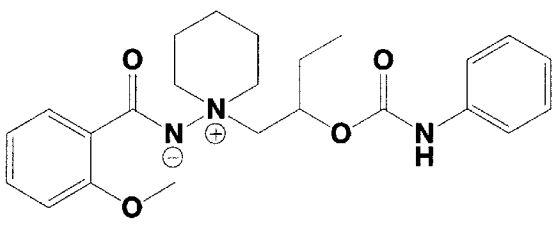
…(4)

[0058] [化7]



…(5)

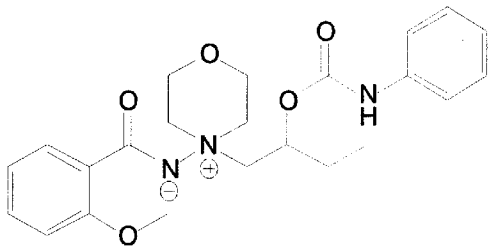
[0059] [化8]



…(6)

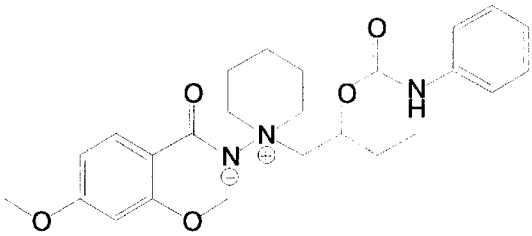
[0060]

[化9]



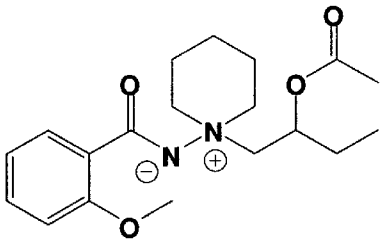
…(7)

[0061] [化10]



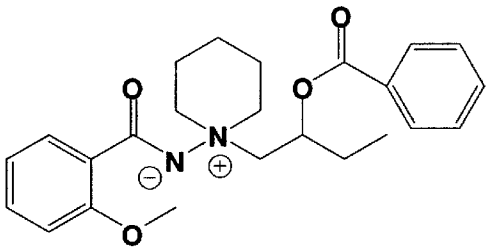
…(8)

[0062] [化11]



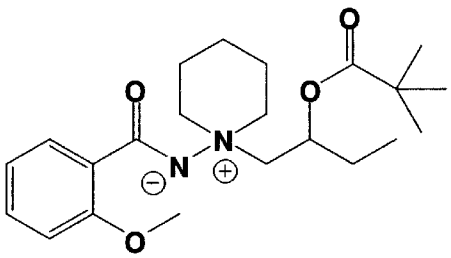
…(9)

[0063] [化12]



…(10)

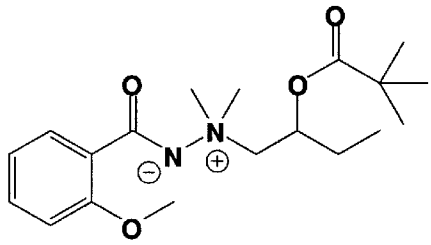
[0064] [化13]



…(11)

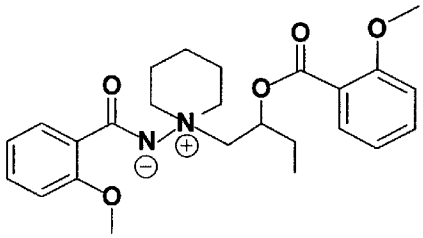
[0065]

[化14]



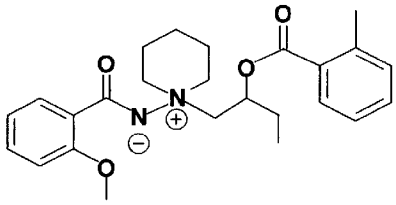
…(12)

[0066] [化15]



…(13)

[0067] [化16]



…(14)

[0068] 本発明に用いられるアミンイミド化合物は、室温環境下では、３級アミンを潜在的に（つまり、不活性な状態で）有している。また該アミンイミド化合物は、分子構造中のＮ－Ｎ結合エネルギーが低いため、低温加熱により分解し、イソシアネート化合物と３級アミンとを発生する。この３級アミンは、エポキシ樹脂等のイオン重合性化合物の重合または硬化を促進させる硬化促進剤として作用する。そのため、当該アミンイミド化合物を含む潜在性硬化剤は、低温硬化性が高いエポキシ樹脂組成物を提供できる。

[0069] 潜在性硬化剤は、通常の環境下（例えば室温環境下）では、イオン重合性化合物との反応性を有さない必要がある。アミンイミド化合物は、分子構造中のＮ－Ｎ結合が切断しない限りアミン化合物を発生させないので、イオン重合性化合物との反応性を有さない。ところが、Ｎ－Ｎ結合が切断していないアミンイミド化合物であっても、イオン重合性化合物の硬化や重合を促進

させてしまう場合があることがわかった。本発明者は、その原因が、アミンイミド化合物に含まれる水酸基にあることを見出し；さらに、それを保護することにより、保存安定性の高い潜在性硬化剤を得た。これにより、高い低温硬化性を有しながらも、室温では硬化せず安定した状態を保持できる、保存安定性が高いエポキシ樹脂組成物を提供できる。

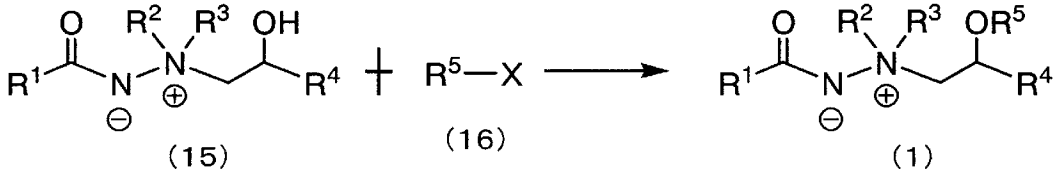
[0070] ２．アミンイミド化合物の合成方法

本発明の潜在性硬化剤に用いられるアミンイミド化合物は、本発明の効果を損なわない範囲で任意の方法により合成される。以下、好ましいアミンイミド化合物の合成方法を説明する。

[0071] アミンイミド化合物は、例えば、以下のスキーム１－１またはスキーム１－２で表される反応によって合成することができる。下記スキームの反応は、前記一般式（１５）で表される、分子構造中に水酸基を有するアミンイミド化合物（「水酸基含有アミンイミド化合物（ａ）」ともいう）と、前記一般式（１６）または一般式（１６’）で表される、水酸基に対して反応性を有する化合物（「キャップ剤（ｂ）」ともいう）との反応である。

[0072] [化17]

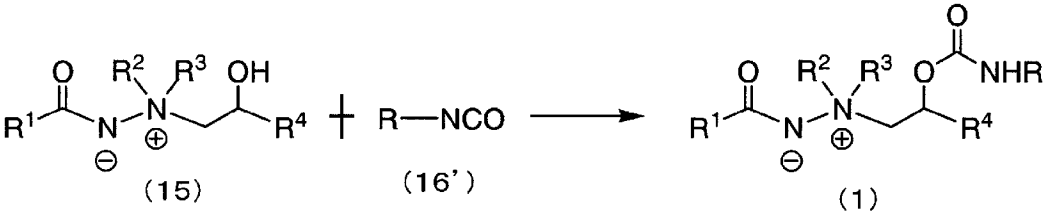
スキーム1－1



(15) (16) (1)

[化18]

スキーム1－2



(15) (16') (1)

[0073] 前記スキーム１－１およびスキーム１－２におけるR^1～R^5は、前記一般

式（１）と同義である。一般式（１６）または一般式（１６'）で表される化合物は、一般式（１３）で表される化合物の水酸基と反応する。一般式（１６）で表される化合物は水酸基と反応して、置換基Ｘが脱離し、R^5が水酸基の酸素原子と結合する。一方、一般式（１６'）で表されるイソシアネート化合物は水酸基と反応して、ウレタン結合を形成する。

[0074] スキーム１－１の反応およびスキーム１－２の反応は、まず水酸基含有アミンイミド化合物（ａ）を、反応容器内にて適切な溶剤に分散または溶解させる。そして、反応容器中にキャップ剤（ｂ）である一般式（１６）の化合物または一般式（１６'）の化合物を投入して、必要に応じて加熱しながら撹拌すればよい。また、この反応を促進するために、反応容器中には添加剤を加えていてもよい。一般式（１６）の化合物が、例えば酸ハロゲン化物のような場合、必要に応じて、塩基等の添加剤の存在下に氷冷下で滴下し、さらに必要に応じて加熱しながら撹拌すればよい。

[0075] 一般式（１）で表されるアミンイミド化合物のR^1～R^4は、水酸基含有アミンイミド化合物（ａ）に起因する基であり；R^5は、キャップ剤（ｂ）に起因する基である。よって、一般式（１）で表されるアミンイミド化合物の分子構造は、水酸基含有アミンイミド化合物（ａ）およびキャップ剤（ｂ）の分子設計を適宜行うことにより調整される。

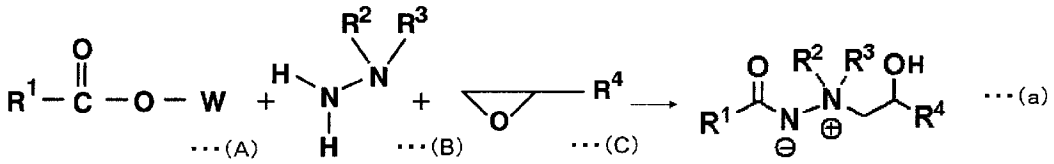
[0076] 一般式（１）で表されるアミンイミド化合物の原料となる化合物について説明する。

[0077] 〔水酸基含有アミンイミド化合物（ａ）〕

水酸基含有アミンイミド化合物（ａ）は、公知の合成方法に準じて合成されうる。合成の簡便性や安全性などの観点から、カルボン酸誘導体（Ａ）、ヒドラジン誘導体（Ｂ）およびエポキシ化合物（Ｃ）の３成分を反応させることにより、合成することが好ましい。より具体的には、等モル量のカルボン酸誘導体（Ａ）と、ヒドラジン誘導体（Ｂ）と、エポキシ化合物（Ｃ）とを溶剤中にて撹拌すればよい。反応温度は適宜設定すればよい。

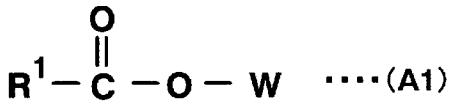
[0078]

[化19]



[0079] カルボン酸誘導体（Ａ）は、例えば、以下の式（Ａ１）または式（Ａ２）で表される化合物をいう。

[0080] [化20]



前記一般式（Ａ１）中の、Ｒ[1]は前記一般式（１）と同様に定義され、Ｗは任意の有機基を表わす。

[0081] [化21]



前記一般式（Ａ２）中の、Ｒ[1]は前記一般式（１）と同様に定義され、Ｈａｌはハロゲンを表わす。

[0082] カルボン酸誘導体（Ａ１）は、カルボン酸またはカルボン酸エステルでありうる。カルボン酸またはカルボン酸エステルの例には、３－メチル安息香酸、４－メチル安息香酸、３，５－ジメチル安息香酸、２，４，６－トリメチル安息香酸のようなアルキル置換安息香酸；２－メトキシ安息香酸、３－メトキシ安息香酸、４－メトキシ安息香酸、２－メトキシ－６－メチル安息香酸、２，４－ジメトキシ安息香酸、３，４－ジメトキシ安息香酸、３，５－ジメトキシ安息香酸、３，４，５－トリメトキシ安息香酸、４－エトキシ安息香酸のようなアルコキシ置換安息香酸；および、これらの炭素数１～４程度のアルキルエステル類が含まれる。

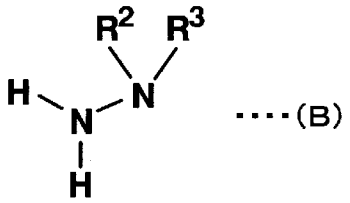
[0083] カルボン酸誘導体（Ａ２）は、カルボン酸中の水酸基がハロゲンで置換された酸ハロゲン化物である。酸ハロゲン化物の例には、カルボン酸クロライ

ドやカルボン酸ブロミドなどが含まれる。

[0084] 一般式（１）で表されるアミンイミド化合物のＲ[1]は、これらのカルボン酸誘導体（Ａ）の分子設計を適宜行うことによって決定される。中でも、特にオルト位に置換基を有するフェニル基は、一般式（１）で表されるアミンイミド化合物の分解性を向上させるのでより好ましい。

[0085] ヒドラジン誘導体（Ｂ）とは、例えば、下記の式（Ｂ）で表される化合物をいう。一般式（１）で表されるアミンイミド化合物のＲ[2]およびＲ[3]は、このヒドラジン誘導体の分子設計を適宜行うことによって決定される。

[0086] [化22]



····(B)

前記一般式（Ｂ）中の、Ｒ[2]およびＲ[3]は、前記一般式（１）と同様に定義される。

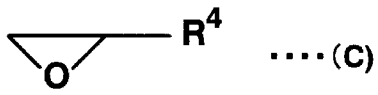
[0087] ヒドラジン誘導体の例には、ジメチルヒドラジン、ジエチルヒドラジン、メチルエチルヒドラジン、メチルプロピルヒドラジン、メチルブチルヒドラジン、メチルペンチルヒドラジン、メチルヘキシルヒドラジン、エチルプロピルヒドラジン、エチルブチルヒドラジン、エチルペンチルヒドラジン、エチルヘキシルヒドラジン、ジプロピルヒドラジン、ジブチルヒドラジン、ジペンチルヒドラジン、ジヘキシルヒドラジン、メチルフェニルヒドラジン、エチルフェニルヒドラジン、メチルトリルヒドラジン、エチルトリルヒドラジン、ジフェニルヒドラジン、ベンジルフェニルヒドラジン、ジベンジルヒドラジン、ジニトロフェニルヒドラジン、Ｎ－アミノピペリジン、Ｎ－アミノホモピペリジン、Ｎ－アミノ－２，６－ジメチルピペリジン、Ｎ－アミノピロリジン、Ｎ－アミノ－２－メチルピロリジン、Ｎ－アミノ－２－フェニルピロリジン、Ｎ－アミノピロール、Ｎ－アミノ－２，５－ジメチルピロール、Ｎ－アミノピロリン、Ｎ－アミノ－２－フェニルピロリン、Ｎ－アミノ

モルホリンが含まれるが、特に限定されない。

これらの中でも、低温で合成でき、かつＮ－Ｎ結合を維持し易いという点で、ジメチルヒドラジンやＮ－アミノピペリジン、Ｎ－アミノモルホリンがより好ましい。

[0088] エポキシ化合物（Ｃ）は、分子内にエポキシ基を有する化合物であり、例えば下記式（Ｃ）で表される。一般式（１）で表されるアミンイミド化合物のＲ^{4}は、エポキシ化合物（Ｃ）の分子設計を適宜行うことによって決定される。

[0089] [化23]



前記一般式（Ｃ）中のＲ^{4}は、前記一般式（１）と同様に定義される。

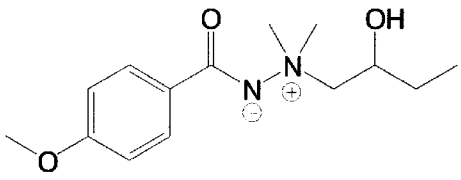
[0090] エポキシ化合物（Ｃ）の例には、エチレンオキシド、プロピレンオキシド、シクロヘキセンオキシド、１－オクテンオキシド、ｎ－ブチルグリシジルエーテル、アリルグリシジルエーテル、フェニルグリシジルエーテルが含まれる。

[0091] 水酸基含有アミンイミド化合物（ａ）の合成においては、溶剤を使用してもよい。溶剤の好ましい例には、メタノール、エタノール、プロパノール、イソプロパノール、ブタノールなどのアルコール類；テトラヒドロフラン、ジエチルエーテルなどのエーテル類が含まれるが、特に限定されない。溶剤は、水酸基含有アミンイミド化合物（ａ）の原料（カルボン酸誘導体（Ａ）、ヒドラジン誘導体（Ｂ）、エポキシ化合物（Ｃ））に対する相溶性などを考慮して適宜選択される。

[0092] 水酸基含有アミンイミド化合物（ａ）の例には、以下に示す化合物が含まれるが、特に限定されない。

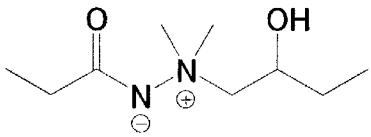
[0093]

[化24]



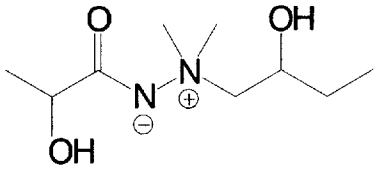
…(17)

[0094] [化25]



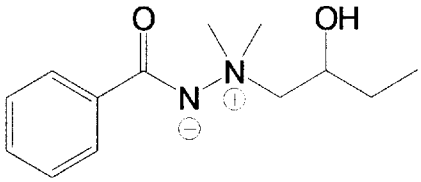
…(18)

[0095] [化26]



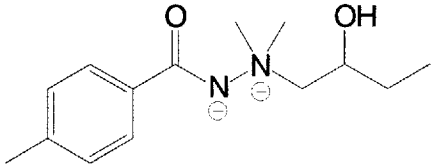
…(19)

[0096] [化27]



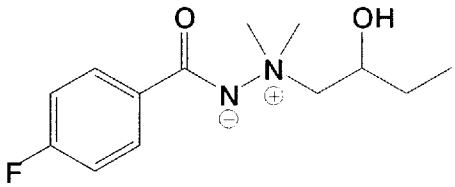
…(20)

[0097] [化28]



…(21)

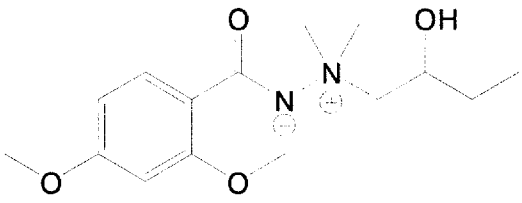
[0098] [化29]



…(22)

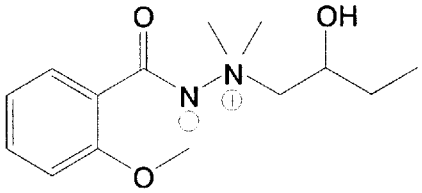
[0099]

[化30]



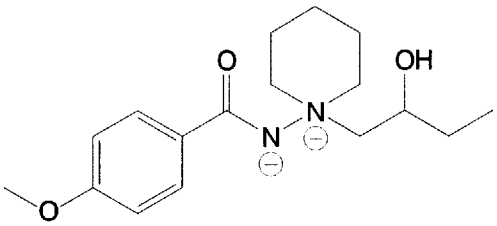
…(23)

[0100] [化31]



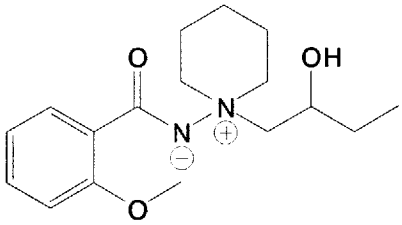
…(24)

[0101] [化32]



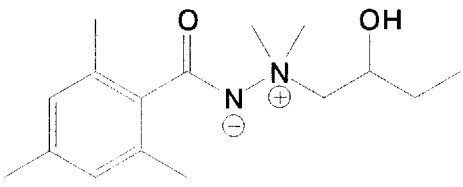
…(25)

[0102] [化33]



…(26)

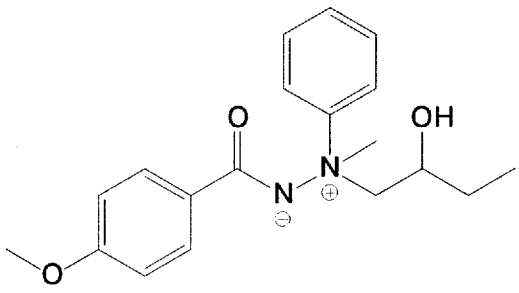
[0103] [化34]



…(27)

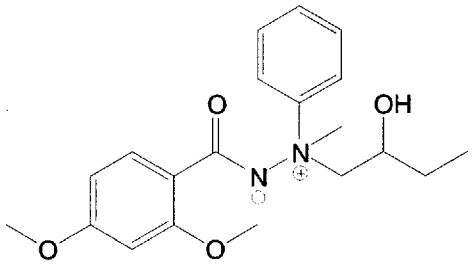
[0104]

[化35]



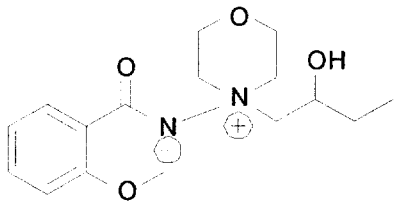
…(28)

[0105] [化36]



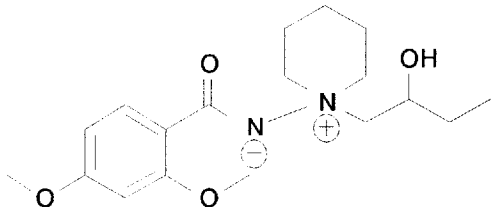
…(29)

[0106] [化37]



…(30)

[0107] [化38]



…(31)

[0108] 〔キャップ剤（ｂ）〕

キャップ剤（ｂ）とは、スキーム１－１中の一般式（１６）、またはスキーム１－２中の一般式（１６'）で表される化合物をいう。一般式（１６）で表される化合物は、脱離基であるＸ基と、一般式（１）で表されるアミンイミド化合物のＲ^{5}に相当する有機基（ヒドロキシ基の保護基となる）とを有する。一般式（１６）で表される化合物は、例えば、Ｒ^{5}がアシル基またはオキ

シカルボニル基などである、カルボン酸系化合物でありうる。一般式（１６’）で表される化合物は、水酸基と反応してウレタン結合を形成するイソシアネート基を有し、水酸基をキャップすることができる。一般式（１）で表されるアミンイミド化合物のＲ^{5}は、このキャップ剤（ｂ）の分子設計を行うことにより適宜設定される。

[0109] 一般式（１６）で表されるカルボン酸系化合物の例には、ギ酸、酢酸、プロピオン酸、酪酸、吉草酸、ピバル酸、オレイン酸、リノール酸、シュウ酸、コハク酸のような脂式カルボン酸；安息香酸、フタル酸、テレフタル酸のような芳香族カルボン酸；ピルビン酸、乳酸、フマル酸、マレイン酸のようなその他のカルボン酸化合物やその誘導体が含まれる。カルボン酸化合物の誘導体の例には、それらの酸無水物、エステルや酸ハロゲン化物が含まれる。

[0110] 一般式（１６’）で表されるイソシアネート化合物の例には、フェニルイソシアネート、トリルイソシアネート、エチルフェニルイソシアネート、ｐ-イソプロピルフェニルイソシアネート、２，６-ジメチルフェニルイソシアネート、メシチルイソシアネート、メトキシフェニルイソシアネート、３，５-ジメトキシフェニルイソシアネート、アセチルフェニルイソシアネート、ｐ-ジメチルアミノフェニルイソシアネート、ｐ-トルエンスルホニルイソシアネート、ｐ-トリフルオロメチルフェニルイソシアネート、ペンタフルオロフェニルイソシアネート、ｐ-クロロフェニルイソシアネート、ニトロフェニルイソシアネート、ベンジルイソシアネート、ベンゾイルイソシアネート、２-ビフェニルイソシアネート、ジフェニルメチルイソシアネート、２-フェノキシフェニルイソシアネート、１-ナフチルイソシアネート、１-アダマンチルイソシアネート、フルオレニルイソシアネート、トリフェニルメチルイソシアネート、チエニルイソシアネートのような芳香族イソシアネート化合物；メチルイソシアネート、エチルイソシアネート、プロピルイソシアネート、ブチルイソシアネート、ヘキシルイソシアネート、エトキシカルボニルイソシアネートのような脂肪族イソシアネート化合物；シクロペンチルイソシアネー

ト、シクロヘキシルイソシアネートのような脂環式イソシアネート化合物が含まれる。

[0111] キャップ剤（ｂ）は、水酸基との反応性が高いという点においては、一般式（１６）で表される酸無水物もしくは酸ハロゲン化物、または一般式（１６'）で表されるイソシアネート化合物であることが好ましい。水酸基含有アミンイミド化合物（ａ）は、分子構造中のＮ－Ｎ結合エネルギーが低いために分解しやすい。酸無水物、酸ハロゲン化物またはイソシアネート化合物は水酸基に対して反応性が高く、非加熱状態でも水酸基と反応するので、不安定な水酸基含有アミンイミド化合物（ａ）を分解させることなく、水酸基をキャップして一般式（１）で表されるアミンイミド化合物を得ることができる。

[0112] キャップ反応において、水酸基含有アミンイミド化合物（ａ）の水酸基を適切にキャップするため、水酸基含有アミンイミド化合物（ａ）とキャップ剤（ｂ）は、水酸基の総量／保護基の総量（当量比）が１～５となるように配合されることが好ましい。当量比が５を超えると、反応後のアミンイミド化合物の単離が困難になるおそれがある。一方で、当量比が１未満であると、水酸基含有アミンイミド化合物（ａ）の水酸基の一部しかキャップされない。

[0113] キャップ反応では、溶剤を使用してもよい。溶剤の例には、アルコール類、エーテル類、酢酸エステル類のほかにクロロホルム、ジクロロメタンのようなハロゲン系溶剤などが含まれるが、特に限定されない。溶剤は、合成原料である化合物との相溶性などを考慮して適宜選択すればよい。

[0114] キャップ剤（ｂ）としてイソシアネート化合物を用いて水酸基含有アミンイミド化合物（ａ）の水酸基をキャップするには、例えば、イソシアネート化合物と水酸基含有アミンイミド化合物（ａ）とを溶媒中で、少量の塩基存在下、室温～１００℃において、０．１～２４時間撹拌すればよい。キャップ剤（ｂ）としてカルボン酸系化合物（例えばカルボン酸無水物や酸ハロゲン化物）を用いて水酸基含有アミンイミド化合物（ａ）の水酸基をキャップ

するには、例えば、酸無水物や酸ハロゲン化物と水酸基含有アミンイミド化合物（ａ）とを溶媒中に塩基などの反応促進剤の存在下で、室温～１００℃において、０．１～２４時間撹拌すればよい。

[0115] キャップ反応の進行具合は、例えば、ＴＬＣ（薄層クロマトグラフィー）やＨＰＬＣ（高速液体クロマトグラフィー）、あるいは反応溶液に含まれる水酸基当量の経時変化を測定することによって確認することができる。水酸基当量の測定方法は、特に限定されない。例えば、一定時間ごとに反応溶液の一部を採取し、水酸基価測定装置などを用いて溶液中の水酸基を測定してもよいし、水酸基を知るための公知の滴定方法などで測定してもよい。

[0116] ３．樹脂組成物

本発明における樹脂組成物は、少なくとも本発明の潜在性硬化剤と、イオン重合性化合物とを含む。イオン重合性化合物は、本発明の潜在性硬化剤によって重合または硬化されるイオン重合性化合物であればよく、例えばエポキシ樹脂、ポリアミド樹脂、ポリアミドイミド樹脂、ポリウレタン樹脂、ビニル基を有する化合物（例えば、アクリル樹脂等）、エピスルフィド、チエタンのようなチオエーテル化合物などであり、好ましくはエポキシ樹脂である。

[0117] 以下、イオン重合性化合物がエポキシ樹脂である例について説明する。エポキシ樹脂は、分子内にエポキシ基を有する化合物であれば、特に限定されない。なかでも、液状のエポキシ樹脂は、エポキシ樹脂組成物の他の原料と室温で相溶し易いので、均質なエポキシ樹脂組成物を与える。このような液状のエポキシ樹脂の例には、ビスフェノールＡ型エポキシ樹脂やビスフェノールＦ型エポキシ樹脂が含まれるが、特に限定されない。

[0118] エポキシ樹脂組成物は、さらに酸無水物を含んでいてもよい。酸無水物は、２つのカルボキシル基が脱水縮合した化合物をいう。酸無水物が開列して生じるカルボキシル基は、エポキシ基と高い反応性を有するため、エポキシ樹脂の硬化剤として適するだけでなく、透明な樹脂組成物を与える。エポキシ樹脂と酸無水物との反応は、本発明の潜在性硬化剤のアミンイミド化合物

から生成する３級アミンにより促進される。

[0119] 酸無水物の例には、メチルヘキサヒドロ無水フタル酸、ヘキサヒドロ無水フタル酸、メチルテトラヒドロ無水フタル酸、テトラヒドロ無水フタル酸、メチルナジック酸無水物、無水酢酸、無水プロピオン酸、無水安息香酸、無水コハク酸、無水マレイン酸、無水フタル酸が含まれる。しかし、これらに限定されず、公知の酸無水物を使用できる。

中でも、酸無水物は、透明度および硬化性が高いエポキシ樹脂組成物を得る上で、メチルヘキサヒドロ無水フタル酸であることがより好ましい。酸無水物は、４－（２，５－ジオキソテトラヒドロフラン－３－イル）－１，２，３，４－テトラヒドロナフタレン－１，２－ジカルボン酸無水物または５－（２，５－ジオキソテトラヒドロ－３－シクロヘキセン－１，２－ジカルボン酸無水物のような２官能以上の化合物であってもよい。室温で液状である酸無水物を用いると、均一なエポキシ樹脂組成物が得られる。

[0120] アミンイミド化合物を含む潜在性硬化剤を、エポキシ樹脂を重合させて硬化するための硬化促進剤として使用する場合、硬化促進効果を十分に得るために、エポキシ樹脂組成物中のアミンイミド基／エポキシ基のモル比が０．００８～０．１５２の範囲であることが好ましい。アミンイミド基／エポキシ基のモル比が０．０１０～０．１００の範囲であることがより好ましく、０．０１５～０．０７５の範囲であることが特に好ましい。

アミンイミド基／エポキシ基のモル比が０．１５２を超えると、エポキシ樹脂組成物の硬化物中に未反応のアミンイミド化合物が多く残存し、硬化物の物性に悪影響を与えるおそれがある。一方で、アミンイミド基／エポキシ基のモル比が０．００８を下回ると、エポキシ樹脂を十分に硬化させることができないおそれがある。

[0121] エポキシ樹脂と、酸無水物とを含むエポキシ樹脂組成物は、エポキシ基と酸無水物基とが交互に結合して硬化するため、一般的に、エポキシ樹脂と酸無水物とは、約１当量比で配合される。本発明では、エポキシ樹脂組成物における酸無水物基／エポキシ基の当量比が、０．８～１．２であることが好

ましい。

酸無水物基／エポキシ基の当量比が１．２超か、または酸無水物基／エポキシ基の当量比が０．８未満であると、酸無水物またはエポキシ樹脂のうちのいずれか過剰な方が未反応のまま硬化物中に残存し、硬化物の物性に悪影響を与えるおそれがある。

[0122] エポキシ樹脂組成物は、接着対象となる基材との界面密着性を向上させる上で、さらにカップリング剤を含んでもよい。カップリング剤の例には、シランカップリング剤やチタンカップリング剤が含まれるが、特に限定されない。

[0123] カップリング剤は、分子構造中の炭素－水素結合に係る水素原子の一部または全部が、フッ素置換された化合物であってもよい。カップリング剤の含有量は、エポキシ樹脂１００質量部に対して、０～３０質量部であることが好ましい。

[0124] エポキシ樹脂組成物は、耐熱性、耐水性などの諸特性を向上させる上で、必要に応じて、無機または有機フィラのような充填剤；老化防止剤や可塑剤のような改質剤；紫外線吸収剤、防腐剤、抗菌剤のような安定剤などの各種添加剤を含んでいてもよい。

[0125] 〔充填剤〕

充填剤は、特に限定されず、無機または有機フィラを使用することができる。無機フィラは、一次粒子の平均粒径が０．００５～１０μｍの無機微粒子をいう。

無機フィラの例には、シリカ、タルク、アルミナ、雲母、炭酸カルシウムが含まれるが特に限定されない。無機フィラの表面は、未処理であってもよいし、メトキシ化、トリメチルシリル化、またはオクチルシリル化されてもよいし、シリコーンオイルによって処理されてもよい。

有機フィラは、有機物からなる粒子をいう。有機フィラの例には、スチレン系ポリマ粒子、メタクリレート系ポリマ粒子、エチレン系ポリマ粒子、プロピレン系ポリマ粒子が含まれるが、特に限定されない。

充填剤は、その材質に関わらず、単独で使用してもよいし、２種以上を組み合わせて使用してもよい。

[0126] 充填剤の含有量は、エポキシ樹脂１００質量部に対して、０～５００質量部とすることが好ましい。これにより、耐透湿性、接着力などが高いエポキシ樹脂組成物が得られる。充填剤の含有量は、シール剤に要求される透明性や粘度によって適宜調整されるとよい。

[0127] 〔改質剤〕

改質剤は、樹脂組成物本来の特性を改質する成分をいう。改質剤の例には、重合開始助剤、老化防止剤、レベリング剤、濡れ性改良剤、界面活性剤、可塑剤、可とう剤が含まれる。これらは、単独で使用してもよいし、２種以上を組み合わせて使用してもよい。

[0128] 〔その他の樹脂〕

エポキシ樹脂組成物は、さらにエポキシ樹脂以外の樹脂を含んでいてもよい。エポキシ樹脂以外の樹脂の例には、ポリアミド、ポリアミドイミド、ポリウレタン、ポリブタジェン、ポリクロロプレン、ポリエーテル、ポリエステル、スチレンーブタジエンースチレンブロック共重合体、石油樹脂、キシレン樹脂、ケトン樹脂、セルロース樹脂、フッ素系オリゴマー、シリコン系オリゴマー、ポリスルフィド系オリゴマーが含まれる。これらは、単独で使用してもよいし、２種以上を組み合わせて使用してもよい。

[0129] エポキシ樹脂組成物は、チオール化合物やフェノール化合物を含んでいてもよい。チオール化合物は、分子構造中にチオール基を有する化合物をいう。チオール化合物は、特に限定されず、公知の化合物であってもよい。フェノール化合物とは、分子構造中にフェノール基を有する化合物をいう。その具体例には、フェノール、メチルフェノール、エチルフェノール、イソプロピルフェノールが含まれるが、特に限定されない。

[0130] 本発明の潜在性硬化剤は、エポキシ樹脂以外の架橋性樹脂と共に用いられてもよい。この場合、本発明の潜在性硬化剤は、架橋性樹脂を硬化剤または硬化促進剤として作用する。

[0131] 架橋性樹脂の例には、マイケル付加反応が可能な不飽和結合を有する化合物、ゾルゲル反応を示すアルコキシシリル基を有する化合物が含まれる。

架橋性樹脂組成物としては、例えば、本発明の潜在性硬化剤、ポリウレタン樹脂を形成するイソシアネート化合物、およびポリオールを含む架橋性樹脂組成物がある。このような架橋性樹脂組成物は、さらに酸無水物、チオール化合物、またはフェノール性化合物を含んでいてもよい。

[0132] 〔樹脂組成物の保存安定性〕

エポキシ樹脂組成物の保存安定性は、当該エポキシ樹脂組成物を室温（２５℃）で２４時間保存したときの保存前後の粘度変化、すなわち「保存後のエポキシ樹脂組成物の粘度（ｍＰａ・ｓ）／保存前のエポキシ樹脂組成物の粘度（ｍＰａ・ｓ）」で表される粘度比により示される。前記粘度比が、１．０以上２．０未満であることが好ましく、１．０以上１．５未満であることがより好ましい。粘度比が１．０であると、エポキシ樹脂組成物の保存前後での粘度変化がないことを意味する。このため、粘度比が１．０に近いほど、粘度変化が生じていないため、好ましい。

[0133] エポキシ樹脂組成物の粘度は、Ｅ型粘度計にて測定されうる。測定条件は、測定温度：２５℃、測定時間：３分とすればよい。

[0134] 〔樹脂組成物の低温硬化性〕

エポキシ樹脂組成物の低温硬化性は、示差走査熱量測定（ＤＳＣ）により示されうる。具体的には、エポキシ樹脂組成物を２枚のＮａＣｌ結晶板（厚み５ｍｍ）の間に挟んだものをサンプルとする。このサンプルを、所定温度および所定時間で熱処理する前と後とで、当該サンプルの赤外線透過スペクトルを公知のＦＴ－ＩＲ測定装置にて測定する。この測定で得られるエポキシ基の逆対称環伸縮に由来する吸収ピーク高さ（９１０ｃｍ$^{-1}$付近）を、ベンゼン環の環内Ｃ－Ｃ伸縮に由来する吸収ピーク高さ（１６００ｃｍ$^{-1}$付近）で除して規格化する。これにより、熱処理によるエポキシ基由来のピークの減少度合いから、エポキシ基の反応率を算出することができる。

[0135] ４．樹脂組成物を含むシール剤、それを用いた有機ＥＬディスプレイ

本発明の潜在性硬化剤を含むエポキシ樹脂組成物は、１液タイプの樹脂組成物として好適である。１液タイプの樹脂組成物とは、アミンイミド化合物のような硬化促進成分と、エポキシ樹脂のような被硬化成分と、酸無水物のような硬化成分と、が均一に混合されていながらも、室温で保存されている間は、硬化成分と被硬化成分とが反応せず、安定した状態が維持されるものである。

このような１液タイプの樹脂組成物は、使用時に硬化成分と被硬化成分とを混合する必要がある２液タイプと比べて、各成分を計量、混合、および攪拌するなどの作業が不要であるため、取扱性や作業性が高い。

また、本発明の潜在性硬化剤を含む樹脂組成物では、硬化反応に関わる原料が均一に混合されているため、樹脂を均一に硬化させることができる。これにより、硬化後の物性に局所的なムラが生じにくく、信頼性の高い材料として使用できる。また、硬化後に高い透明性を要求される用途にも好ましく使用することができる。

[0136] 前記エポキシ樹脂組成物は、室温では硬化せず、粘度が安定しているものの、低温加熱で硬化物となる。このため、塗料、接着剤、フォトレジスト、各種自動車部品、電気・電子材料、光学材料のような工業材料に応用することができる。特に、前記エポキシ樹脂組成物は、耐熱性が低い部材の接着剤あるいはコート剤として、また熱に弱く劣化しやすい液晶または有機ＥＬ素子などのシール剤として有用である。

[0137] 前記エポキシ樹脂組成物は、その硬化時に紫外線などの光を照射されなくても、低温で硬化が十分に促進されるため、金属のような光を透過しない部材のための接着剤としても有用である。また、エポキシ樹脂組成物は、熱のみで十分に硬化するので、紫外線の照射によって劣化する有機ＥＬ素子の封止にも応用することができる。

[0138] 以下、本発明の潜在性硬化剤を含むエポキシ樹脂組成物を、有機ＥＬディスプレイのシール剤として適用する例について説明する。

[0139] 有機ＥＬディスプレイは、有機ＥＬ素子が配置された表示基板と、前記表

示基板と対になる対向基板とを有し、表示基板と対向基板との間に、有機ＥＬ素子を封止するためのシール剤が付与される。

[0140] 有機ＥＬディスプレイにおけるシール剤は、液晶や有機ＥＬ素子を封止する封止剤として、または各種画像表示装置を構成する表示基板の接着剤として利用される。

本発明のシール剤は、本発明の潜在性硬化剤とエポキシ樹脂とを含むため、室温での保存安定性と低温硬化性がともに高く；さらに酸無水物を含有すれば透明性も高くなる。このため、特に有機ＥＬ素子を全面封止する「面封止型有機ＥＬディスプレイ」に好適である。

[0141] 面封止型有機ＥＬディスプレイは、有機ＥＬ素子を枠封止する有機ＥＬディスプレイと比べて、ディスプレイの高強度化が可能である。また、シール剤によって有機ＥＬ素子を直接封止することができる。そのため、従来、有機ＥＬ素子を保護するために使用していたマスクが不要となり、さらに製造工程の簡略化や製造コストの削減が期待される。

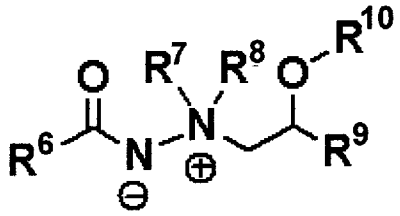
[0142] シール剤を、有機ＥＬディスプレイの基板上に塗布する方法は、特に限定されず、シール剤を基板上に均一に塗布できる方法であればよい。塗布方法の例には、スクリーン印刷やディスペンサーなどを用いた公知の方法が含まれる。また、樹脂製フィルムやガラス板、金属板など防湿性に優れた板状の部材を封止板とし、シール剤をディスプレイ基板と封止板の間に充填してもよい。

[0143] シール剤の粘度は、例えば、使用する樹脂やその他の添加剤の配合比を変えることで、調整される。シール剤の粘度は、有機ＥＬ素子の全面封止に適した作業性の観点から、１００～１００００ｍＰａ・ｓであることが好ましく、５００～８０００ｍＰａ・ｓであることがより好ましい。粘度は、Ｅ型粘度計（東機産業製　ＲＣ－５００）によって、２５℃の測定温度で測定されうる。シール剤は、各原料が均一に混合するように調製されることが好ましい。

[0144] ５．第２のアミンイミド化合物

本発明における、第２のアミンイミド化合物は、下記の一般式（２）で表される。

[0145] [化39]



・・・・（2）

前記一般式（２）中の、Ｒ[6]は、未置換または水酸基以外の置換基を有する、アリール基またはアリーロキシ基を表し；

Ｒ[7]およびＲ[8]は、それぞれ独立して、未置換または水酸基以外の置換基を有する、アルキル基またはアリール基を表すか、あるいは相互に連結して水酸基を含まない環を形成し；

Ｒ[9]は、水酸基以外の有機基を表し；

Ｒ[10]は、未置換または水酸基以外の置換基を有する、アルキル基、アリール基、アミノカルボニル基、アシル基またはオキシカルボニル基を表わす。ただし、Ｒ[6]～Ｒ[10]は、エポキシ基に対して活性な基を有しないものとする。

[0146] 前記一般式（２）中のＲ[6]は、一般式（１）中のＲ[1]における、未置換または水酸基以外の置換基を有する、アリール基またはアリーロキシ基と同義である。中でも、前記一般式（２）中のＲ[6]は、未置換のアリール基、アルキル基を有するアリール基、またはアルコキシ基を有するアリール基であることが好ましい。

[0147] 前記一般式（２）中のＲ[7]およびＲ[8]は、一般式（１）中のＲ[2]およびＲ[3]における、未置換または水酸基以外の置換基を有する、アルキル基またはアリール基か、あるいは相互に連結して、水酸基を含まない環を形成する場合と同義である。前記一般式（２）中のＲ[7]およびＲ[8]は、相互に連結して、炭素数が４～８の飽和炭化水素基、－（ＣＨ$_2$）$_n$Ｏ（ＣＨ$_2$）$_n$－または－（ＣＨ$_2$）$_n$ＮＲ[12]（ＣＨ$_2$）$_n$－（いずれも、ｎは２～４の自然数を表わし；Ｒ[12]は任意の有機基を表す）を表すことが好ましい。Ｒ[12]は、例えば、炭素数１～

１０のアルキル基、アシル基、スルホニル基などでありうるが、保存安定性の観点からは、アシル基またはスルホニル基であることが好ましい。

[0148] 前記一般式（２）中のＲ^{9}は、一般式（１）中のＲ^{4}における、水酸基以外の有機基と同義である。

[0149] 前記一般式（２）中のＲ^{10}は、一般式（１）中のＲ^{5}における、未置換または水酸基以外の置換基を有する、アルキル基、アリール基、アミノカルボニル基、アシル基またはオキシカルボニル基と同義である。

[0150] 第２のアミンイミド化合物は、分子構造内のＮ－Ｎ結合が不安定であり、かつ立体障害により、低温加熱でも容易に分解して、イソシアネート化合物と３級アミンとを発生する。一方で、第２のアミンイミド化合物は、その分子構造中の水酸基がキャップ剤でキャップされている。

そのため、第２のアミンイミド化合物、酸無水物およびエポキシ樹脂を含むエポキシ樹脂組成物は、室温ではエポキシ基と反応せず、粘度上昇が低く抑えられる。さらに、低温加熱でも容易に３級アミンを発生し、エポキシ樹脂と酸無水物との硬化反応を素早く進行させる。なお、第２のアミンイミド化合物が分解すると、３級アミンのほかにイソシアネート化合物が発生する。このイソシアネート化合物は、エポキシ基が開環して生成する水酸基などと反応するため、エポキシ樹脂組成物の硬化物に悪影響を与えることがない。

実施例

[0151] 以下に、本発明に係る実施例、比較例を挙げて、本発明をより詳細に説明する。ただし、本発明はここに示す形態に限定されない。

[0152] ［水酸基含有アミンイミド化合物Ａの合成］

４－メトキシ安息香酸メチル１６．６２ｇ（０．１０モル）と、Ｎ，Ｎ－ジメチルヒドラジン６．０１ｇ（０．１０モル）と、１，２－エポキシブタン７．２１ｇ（０．１０モル）と、をｔ－ブタノール８０ｍｌに溶解させた。この溶液を５５℃で４０時間撹拌しながら反応させた。反応終了後に得た溶液を減圧濃縮することにより、溶媒と副生したメタノールとを溶液から除

去し、粘稠性の濃縮物を得た。この粘稠性の濃縮物を、該濃縮物の倍量の酢酸エチルに溶解した。得た溶液を、メタノール：酢酸エチル＝１：１０の展開液を使用して、ＮＨ－シリカゲル（富士シリシア化学（株）製）によりカラム精製を行った。ヘキサンを使用して精製後の濃縮物を結晶化させた後、この結晶を減圧乾燥することにより、純度９９．６%の白色結晶１３．１ｇ（収率４９．０モル%）を得た。

[0153] 当該白色結晶の一部を採取し、^{1}Ｈ－ＮＭＲ（日本電子製　ＥＸｃａｌｉｂｕｒ２７０；２５℃、ＣＤＣｌ$_3$、２７０ＭＨｚ）を使用して、その構造を特定した。

７．８０（ｄ，２Ｈ，C_6H_4）、６．８３（ｄ，２Ｈ，C_6H_4）、４．２３－４．０８（ｍ，１Ｈ，ＣＨＯＨ）、３．８０（ｓ，３Ｈ，OCH_3）、３．６４（ｄ，６Ｈ，NCH_3）、３．５６－３．１０（ｍ，２Ｈ，NCH_2）、１．６５－１．４４（ｍ，２Ｈ，CH_2CH_3）　１．０３（ｔ，３Ｈ，CH_2CH_3）

[0154] また、当該白色結晶の一部を採取し、ＥＳＩ－ＭＳ（マイクロマス製　ＺＮＤ）を使用して質量分析を行ったところ、その測定値は２６７．２であった。以上の結果から、当該白色結晶は、水酸基含有アミンイミド化合物Ａ、すなわち１，１－ジメチル－1－（２－ヒドロキシブチル）アミン　ｐ－メトキシベンズイミドであることが確認された。

[0155] ［水酸基含有アミンイミド化合物Ｂの合成］

２－メトキシ安息香酸メチル１６．６２ｇ（０．１０モル）と、１－アミノピペリジン１０．５２ｇ（０．１０５モル）と、１，２－エポキシブタン７．５７ｇ（０．１０５モル）と、をｔ－ブタノール１００ｍｌに溶解させた。この溶液を、６０℃で３日間撹拌し反応させた。反応が終了した溶液を減圧濃縮することにより、溶液中から溶媒と副生したメタノールを除去して、粘稠性の濃縮物を得た。この粘稠性の濃縮物を、該濃縮物の倍量の酢酸エチルに溶解した。この溶液をメタノール：酢酸エチル＝１：１０の展開液を使用して、ＮＨ－シリカゲル（富士シリシア化学（株）製）によりカラム精

製を行った。ヘキサンを使用して精製した濃縮物を結晶化させた後、この結晶を減圧乾燥することにより、純度９６．４%の白色結晶１４．８８ｇ（収率４６．８モル%）を得た。

[0156] 当該白色結晶の一部を採取し、^{1}Ｈ－ＮＭＲ（日本電子製　ＥＸｃａｌｉｂｕｒ２７０；２５℃、ＣＤＣｌ$_{3}$、２７０ＭＨｚ）を使用して、その構造を特定した。

７．４２（ｄ，１Ｈ，Ｃ$_{6}$Ｈ$_{4}$）、７．３１－７．１７（ｍ，１Ｈ，Ｃ$_{6}$Ｈ$_{4}$）、６．９７－６．８０（ｍ，２Ｈ，Ｃ$_{6}$Ｈ$_{4}$）、４．８９－４．７１（ｍ，２Ｈ，Ｃ$_{5}$Ｈ$_{10}$）、４．６２－４．５１（ｍ，２Ｈ，Ｃ$_{5}$Ｈ$_{10}$）、４．３３－４．２０（ｍ，１Ｈ，ＣＨＯＨ）、３．８８－３．４２（ｍ，２Ｈ，ＮＣＨ$_{2}$）、３．８４（ｓ，３Ｈ，ＯＣＨ$_{3}$）、３．２１－２．９２（ｍ，２Ｈ，Ｃ$_{5}$Ｈ$_{10}$）、２．３２－２．０９（ｍ，２Ｈ，Ｃ$_{5}$Ｈ$_{10}$）、１．８２－１．５９（ｍ，２Ｈ，Ｃ$_{5}$Ｈ$_{10}$）、１．６０－１．４０（ｍ，２Ｈ，ＣＨ$_{2}$ＣＨ$_{3}$）、１．０２（ｔ，３Ｈ，ＣＨ$_{2}$ＣＨ$_{3}$）

[0157] また、当該白色結晶の一部を採取し、ＥＳＩ－ＭＳ（マイクロマス製　ＺＮＤ）を使用して質量分析を行ったところ、その測定値は３０７．１であった。以上の結果から、当該白色結晶は、水酸基含有アミンイミド化合物Ｂ、すなわち１－（２－ヒドロキシブチル）－１－（２－メトキシベンゾイル）アミノピペリジニウム分子内塩であることが確認された。

[0158] ［水酸基含有アミンイミド化合物Ｃの合成］

２，４－ジメトキシ安息香酸メチル１９．６２ｇ（０．１０モル）と、Ｎ，Ｎ－ジメチルヒドラジン６．０１ｇ（０．１０モル）と、１，２－エポキシブタン７．２１ｇ（０．１０モル）と、をイソプロピルアルコール１００ｍｌに溶解させた。室温下において、この溶液を６日間撹拌し、反応させた。反応終了後の溶液を減圧濃縮することにより、溶液中から溶媒と副生したメタノールを除去して、粘稠性の濃縮物を得た。この濃縮物を、該濃縮物の倍量の酢酸エチルに溶解してから、この溶液をメタノール：酢酸エチル＝１：１０の展開液を使用して、ＮＨ－シリカゲル（富士シリシア化学（株）製

）によりカラム精製を行った。精製した後の濃縮物を減圧乾燥することにより、純度９８．０%の無色透明な油状物５．８０ｇ（収率１９．２モル%）を得た。

[0159] 当該白色結晶の一部を採取し、^{1}Ｈ－ＮＭＲ（日本電子製　ＥＸｃａｌｉｂｕｒ２７０；２５℃、ＣＤＣｌ$_{3}$、２７０ＭＨｚ）を使用して、その構造を特定した。

７．６９(ｄ，１Ｈ，Ｃ$_{6}$Ｈ$_{3}$)、６．９５－６．８７(ｍ，２Ｈ，Ｃ$_{6}$Ｈ$_{3}$)、４．２４－４．０５(ｍ，１Ｈ，ＣＨＯＨ)、３．８３(ｓ，６Ｈ，ＯＣＨ$_{3}$)、３．６０(ｄ，６Ｈ，ＮＣＨ$_{3}$)、３．５２－３．０７(ｍ，２Ｈ，ＮＣＨ$_{2}$)、１．６０－１．４８(ｍ，２Ｈ，ＣＨ$_{2}$ＣＨ$_{3}$)、１．０２（ｔ，３Ｈ，ＣＨ$_{2}$ＣＨ$_{3}$）

[0160] また、当該白色結晶の一部を採取し、ＥＳＩ－ＭＳ（マイクロマス製　ＺＮＤ）を使用して質量分析を行ったところ、その測定値は２９７．２であった。以上の結果から、当該白色結晶は、水酸基含有アミンイミド化合物Ｃ、すなわち１，１－ジメチル－１－（２－ヒドロキシブチル）アミン　ｏ，ｐ－ジメトキシベンズイミドであることが確認された。

[0161] ［水酸基含有アミンイミド化合物Ｄの合成］

２－メトキシ安息香酸メチル１７．１３ｇ（０．１０モル）と、Ｎ－アミノモルホリン１１．０６ｇ（０．１０モル）と、１，２－エポキシブタン７．２１ｇ（０．１０モル）と、をｔ－ブタノール１００ｍｌに溶解させた。この溶液を、６０℃で３３時間撹拌し、反応させた。反応が終了した溶液を濃縮することにより、溶液中から溶剤を留去し、粘稠性の濃縮物を得た。この濃縮物を、メタノール：酢酸エチル＝１：１０の展開液を使用して、ＮＨ－シリカゲル（富士シリシア化学（株）製）によりカラム精製を行った。ヘキサンを使用して精製後の濃縮物を結晶化させた後、この結晶を減圧乾燥することにより、純度９８．６%の白色結晶６．１７ｇ（収率１９．７モル%）を得た。

[0162] 当該白色結晶の一部を採取し、^{1}Ｈ－ＮＭＲ（日本電子製　ＥＸｃａｌｉｂ

ｕｒ２７０；２５℃、ＣＤＣｌ$_3$、２７０ＭＨｚ）を使用して、その構造を特定した。

７．４３（ｄ，１Ｈ，Ｃ$_6$Ｈ$_4$）、７．３０－７．１７（ｍ，１Ｈ，Ｃ$_6$Ｈ$_4$）、６．９６－６．８１（ｍ，２Ｈ，Ｃ$_6$Ｈ$_4$）、４．６１－４．５１（ｍ，４Ｈ，Ｃ$_4$Ｈ$_8$Ｏ）、４．３４－４．２０（ｍ，１Ｈ，ＣＨＯＨ）、３．８７－３．４２（ｍ，２Ｈ，ＮＣＨ$_2$）、３．８３（ｓ，３Ｈ，ＯＣＨ$_3$）、３．２１－２．９１（ｍ，４Ｈ，Ｃ$_4$Ｈ$_8$Ｏ）、１．５８－１．４０（ｍ，２Ｈ，ＣＨ$_2$ＣＨ$_3$）、１．０２（ｔ，３Ｈ，ＣＨ$_2$ＣＨ$_3$）

[0163] また、当該白色結晶の一部を採取し、ＥＳＩ－ＭＳ（マイクロマス製　ＺＮＤ）を使用して質量分析を行ったところ、その測定値は３０９．２であった。以上の結果から、当該白色結晶は、水酸基含有アミンイミド化合物Ｄ、すなわちＮ－（２－ヒドロキシブチル）－Ｎ－（２－メトキシベンゾイル）アミノモルホリニウム分子内塩であることが確認された。

[0164] ［水酸基含有アミンイミド化合物Ｅの合成］

２，４－ジメトキシ安息香酸メチル１９．６２ｇ（０．１０モル）と、１－アミノピペリジン１０．９６ｇ（０．１０モル）と、１，２－エポキシブタン７．２１ｇ（０．１０モル）と、をｔ－ブタノール１００ｍｌに溶解させた。この溶液を６０℃で３３時間撹拌し、反応させた。反応が終了した溶液を濃縮することにより、溶液中から溶剤を留去し、粘稠性の濃縮物を得た。この濃縮物をメタノール：酢酸エチル＝１：１０の展開液を使用して、ＮＨ－シリカゲル（富士シリシア化学（株）製）によりカラム精製を行った。精製した後の濃縮物を、酢酸エチル：ヘキサン＝１：１の溶剤を使用して洗浄した。そして、洗浄後の濃縮物を減圧乾燥することによって純度９９．０％の白色結晶１１．４３ｇ（収率３３．６モル％）を得た。

[0165] 当該白色結晶の一部を採取し、^{1}Ｈ－ＮＭＲ（日本電子製　ＥＸｃａｌｉｂｕｒ２７０；２５℃、ＣＤＣｌ$_3$、２７０ＭＨｚ）を使用して、その構造を特定した。

７．３９（ｄ，１Ｈ，Ｃ$_6$Ｈ$_3$）、６．９７－６．８２（ｍ，２Ｈ，Ｃ$_6$Ｈ$_3$）、

４．８９－４．７４(m，２H，C_5H_{10})、４．６４－４．５１(m，２H，C_5H_{10})、４．３４－４．２０(m，１H，CHOH)、３．８７－３．４２(m，２H，NCH_2)、３．８３(s，６H，OCH_3)、３．２１－２．９３(m，２H，C_5H_{10})、２．３３－２．０９(m，２H，C_5H_{10})、１．８２－１．５９(m，２H，C_5H_{10})、１．５８－１．４０(m，２H，CH_2CH_3)、１．０３（t，３H，CH_2CH_3）

[0166] また、当該白色結晶の一部を採取し、ＥＳＩ－ＭＳ（マイクロマス製　ＺＮＤ）を使用して質量分析を行ったところ、その測定値は３３７．２であった。以上の結果から、当該白色結晶は、水酸基含有アミンイミド化合物Ｅ、すなわち１－（２，４－ジメトキシベンゾイル）アミノ－１－（２－ヒドロキシブチル）ピペリジニウム分子内塩であることが確認された。

[0167] ［水酸基含有アミンイミド化合物Ｆの合成］

プロピオン酸エチル１０．２１ｇ（０．１０モル）と、Ｎ，Ｎ－ジメチルヒドラジンを６．０１ｇ（０．１０モル）と、１，２－エポキシブタン７．２１ｇ（０．１０モル）とをｔ－ブタノール８０ｍｌに溶解させた。この溶液を５５℃で１５時間撹拌し、反応させた。反応終了後の溶液を減圧濃縮することにより溶液から溶媒と副生したエタノールを除去し、粘稠性の濃縮物を得た。酢酸エチルを使用して粘稠性の濃縮物を結晶化させた後、この結晶を減圧乾燥することにより、純度９７．４%の白色結晶７．５８ｇ（収率３９．２モル%）を得た。

[0168] 当該白色結晶の一部を採取し、^{1}Ｈ－ＮＭＲ（日本電子製　ＥＸｃａｌｉｂｕｒ２７０；２５℃、$CDCl_3$、２７０ＭＨｚ）を使用して、その構造を特定した。

７．１１（ｓ，１Ｈ，ＯＨ）、４．１６－４．０７（ｍ，１Ｈ，ＣＨ）、３．５５（ｓ，３Ｈ，ＮＣＨ３）、３．５３（ｓ，３Ｈ，NCH_3）、３．４４－３．０５（ｍ，２Ｈ，NCH_2）、２．０９－２．０１（ｑ，２Ｈ，$COCH_2$）、１．６２－１．４１（ｍ，２Ｈ，$CHCH_2$）、１．１０－１．０５（ｔ，３Ｈ，$COCH_2CH_3$）、１．０５－０．９９（ｔ，３Ｈ，CH_2C

H_3）

[0169] また、当該白色結晶の一部を採取し、ＥＳＩ－ＭＳ（マイクロマス製　ＺＮＤ）を使用して質量分析を行ったところ、その測定値は１８９．２であった。以上の結果から、当該白色結晶は、水酸基含有アミンイミド化合物Ｆ、すなわち１，１－ジメチル－１－（２－ヒドロキシブチル）アミンエチルイミドであることが確認された。

[0170] ［水酸基含有アミンイミド化合物Ｇの合成］

乳酸エチル１１．８１ｇ（０．１０モル）と、Ｎ，Ｎ－ジメチルヒドラジン６．０１ｇ（０．１０モル）と、１，２-エポキシブタン７．２１ｇ（０．１０モル）とをｔ-ブタノール８０ｍｌに溶解させた。この溶液を５５℃で１３時間撹拌し、反応させた。反応終了後の溶液を減圧濃縮することにより溶液から溶媒と副生したエタノールを除去し、粘稠性の濃縮物を得た。この粘稠性の濃縮物を、該濃縮物の倍量の酢酸エチルに溶解した。この溶液をメタノール：酢酸エチル＝１：１０の展開液を使用して、ＮＨ－シリカゲル（富士シリシア化学（株）製）によりカラム精製を行った。精製後に得た濃縮物を減圧乾燥することにより、純度９９．６%の無色透明な油状物１７．５７ｇ（収率７４．９モル%）を得た。

[0171] 当該白色結晶の一部を採取し、^{1}Ｈ－ＮＭＲ（日本電子製　ＥＸｃａｌｉｂｕｒ２７０；２５℃、$CDCl_3$、２７０ＭＨｚ）を使用して、その構造を特定した。６．１８（ｓ，１Ｈ，ＯＨ）、４．１６－４．０８（ｍ，１Ｈ，ＣＯＣＨ）、４．０８－３．９０（ｍ，１Ｈ，CH_2CH）　３．８３－３．２６（ｍ，２Ｈ，NCH_2）、３．５４（ｓ，３Ｈ，NCH_3）　３．５２（ｓ，３Ｈ，NCH_3）、１．６７－１．４１（ｍ，２Ｈ，$CHCH_2$）、１．３３－１．２３（ｍ，３Ｈ，$CHCH_3$）、１．０６－０．９８（ｔ，３Ｈ，CH_2CH_3）

[0172] また、当該白色結晶の一部を採取し、ＥＳＩ－ＭＳ（マイクロマス製　ＺＮＤ）を使用して質量分析を行ったところ、その測定値は２０５．２であった。以上の結果から、当該白色結晶は、水酸基含有アミンイミド化合物Ｇ、

すなわち１，１－ジメチル－１－（２－ヒドロキシブチル）アミンラクトイミドであることが確認された。

[0173] ［水酸基含有アミンイミド化合物Ｈの合成］

４－メチル安息香酸エチル１６．４２ｇ（０．１０モル）と、Ｎ，Ｎ－ジメチルヒドラジン６．０１ｇ（０．１０モル）と、１，２－エポキシブタン７．２１ｇ（０．１０モル）とをｔ－ブタノール８０ｍｌに溶解させた。この溶液を５５℃で１４時間撹拌し、反応させた。反応終了後の溶液を減圧濃縮することにより、溶液から溶媒と副生したエタノールを除去し、粘稠性の濃縮物を得た。ヘキサン：酢酸エチル＝１：１を使用して粘稠性の濃縮物を結晶化させた後、得た結晶を減圧乾燥することにより、純度９４．７%の白色結晶１７．３２ｇ（収率６５．５モル%）を得た。

[0174] 当該白色結晶の一部を採取し、^{1}Ｈ－ＮＭＲ（日本電子製　ＥＸｃａｌｉｂｕｒ２７０；２５℃、ＣＤＣｌ$_{3}$、２７０ＭＨｚ）を使用して、その構造を特定した。

７．７４（ｄ，２Ｈ，Ｃ$_{6}$Ｈ$_{4}$）、７．１２（ｄ，２Ｈ，Ｃ$_{6}$Ｈ$_{4}$）、４．２４－４．１６（ｍ，１Ｈ，ＣＨＯＨ）、３．６７（ｄ，６Ｈ，ＮＣＨ$_{3}$）、３．５８－３．０８（ｍ，２Ｈ，ＮＣＨ$_{2}$）、２．３４（ｓ，３Ｈ，Ｃ$_{6}$Ｈ$_{4}$ＣＨ$_{3}$）、１．７０－１．４２（ｍ，２Ｈ，ＣＨ$_{2}$ＣＨ$_{3}$）、１．０４（ｔ，３Ｈ，ＣＨ$_{2}$ＣＨ$_{3}$）

[0175] また、当該白色結晶の一部を採取し、ＥＳＩ－ＭＳ（マイクロマス製　ＺＮＤ）を使用して質量分析を行ったところ、その測定値は２５１．３であった。以上の結果から、当該白色結晶は、水酸基含有アミンイミド化合物Ｈ、すなわち１，１－ジメチル－１－（２－ヒドロキシブチル）アミン　ｐ－メチルベンズイミドであることが確認された。

[0176] ［水酸基含有アミンイミド化合物Ｉの合成］

４－フルオロ安息香酸エチル１６．８２ｇ（０．１０モル）と、Ｎ，Ｎ－ジメチルヒドラジン６．０１ｇ（０．１０モル）と、１，２－エポキシブタン７．２１ｇ（０．１０モル）とを、ｔ－ブタノール８０ｍｌに溶解させた

。この溶液を５５℃で１０時間撹拌し、反応させた。反応終了後の溶液を減圧濃縮することにより、溶液から溶媒と副生したエタノールを除去し、粘稠性の濃縮物を得た。ヘキサン：酢酸エチル＝１：１を使用して粘稠性の濃縮物を結晶化させた後、得た結晶を減圧乾燥することにより、純度９７．２％の白色結晶１７．４４ｇ（収率６６．６モル%）を得た。

[0177] 当該白色結晶の一部を採取し、^{1}Ｈ－ＮＭＲ（日本電子製　ＥＸｃａｌｉｂｕｒ２７０；２５℃、ＣＤＣｌ$_3$、２７０ＭＨｚ）を使用して、その構造を特定した。

７．８７－７．８１（ｍ，２Ｈ，C_6H_4）、７．０２－６．９５（ｍ，２Ｈ，C_6H_4）、４．２４－４．１６（ｍ，１Ｈ，ＣＨＯＨ）、３．６７（ｄ，６Ｈ，NCH_3）、３．５９－３．１３（ｍ，２Ｈ，NCH_2）、１．６７－１．４５（ｍ，２Ｈ，CH_2CH_3）、１．０４（ｔ，３Ｈ，CH_2CH_3）

[0178] また、当該白色結晶の一部を採取し、ＥＳＩ－ＭＳ（マイクロマス製　ＺＮＤ）を使用して質量分析を行ったところ、その測定値は２５５．２であった。以上の結果から、当該白色結晶は、水酸基含有アミンイミド化合物Ｉ、すなわち１，１－ジメチル－１－（２－ヒドロキシブチル）アミン　ｐ－フルオロベンズイミドであることが確認された。

[0179] ［水酸基含有アミンイミド化合物Ｊの合成］

２－メトキシ安息香酸メチル１６．６２ｇ（０．１０モル）と、Ｎ，Ｎ－ジメチルヒドラジン６．０１ｇ（０．１０モル）と、１，２－エポキシブタン７．２１ｇ（０．１０モル）とを、イソプロピルアルコール１００ｍｌに溶解させた。室温下において、この溶液を３日間撹拌し、反応させた。反応終了後の溶液を減圧濃縮することにより、溶液中から溶媒と副生したメタノールを除去して、粘稠性の濃縮物を得た。この濃縮物を、該濃縮物の倍量の酢酸エチルに溶解させてから、この溶液をメタノール：酢酸エチル＝１：１０の展開液を使用して、ＮＨ－シリカゲル（富士シリシア化学（株）製）によりカラム精製を行った。精製した後の濃縮物を減圧乾燥することにより、純度９６．８%の無色透明な油状物１２．１２ｇ（収率４４．０モル%）を

得た。

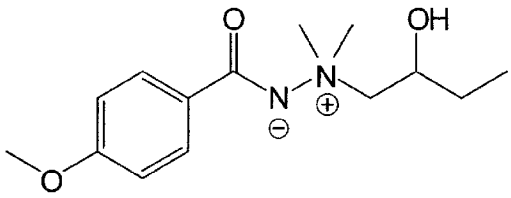
[0180] 当該白色結晶の一部を採取し、^{1}Ｈ－ＮＭＲ（日本電子製　ＥＸｃａｌｉｂｕｒ２７０；２５℃、ＣＤＣｌ$_3$、２７０ＭＨｚ）を使用して、その構造を特定した。

７．７０（ｄ，１Ｈ，Ｃ$_6$Ｈ$_4$）、７．２９－７．２４（ｍ，１Ｈ，Ｃ$_6$Ｈ$_4$）、６．９５－６．８５（ｍ，２Ｈ，Ｃ$_6$Ｈ$_4$）、４．２７－４．０５（ｍ，１Ｈ，ＣＨＯＨ）、３．８４（ｓ，３Ｈ，ＯＣＨ$_3$）、３．６５（ｄ，６Ｈ，ＮＣＨ$_3$）、３．５６－３．０１（ｍ，２Ｈ，ＮＣＨ$_2$）、１．６０－１．４８（ｍ，２Ｈ，ＣＨ$_2$ＣＨ$_3$）、１．０２（ｔ，３Ｈ，ＣＨ$_2$ＣＨ$_3$）

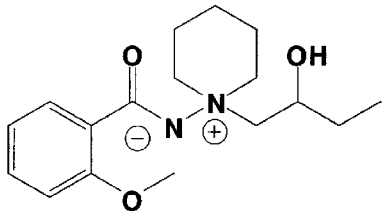
[0181] また、当該白色結晶の一部を採取し、ＥＳＩ－ＭＳ（マイクロマス製　ＺＮＤ）を使用して質量分析を行ったところ、その測定値は２６６．０であった。以上の結果から、当該白色結晶は、水酸基含有アミンイミド化合物Ｊ、すなわち１，１－ジメチル－１－（２－ヒドロキシブチル）アミン　ｏ－メトキシベンズイミドであることが確認された。

[0182] 水酸基含有アミンイミド化合物Ａ～Ｊ

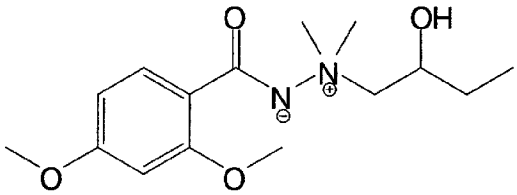
[化40]



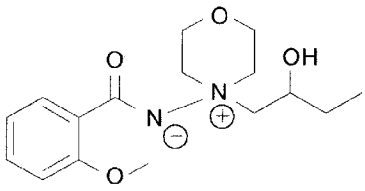
化合物A



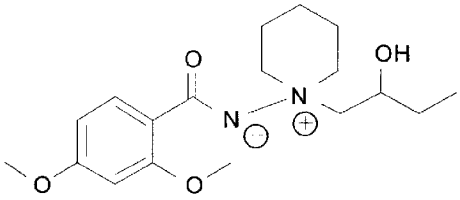
化合物B



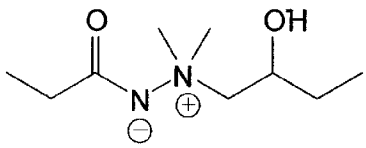
化合物C



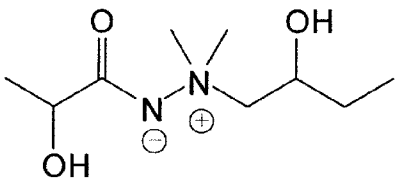
化合物D



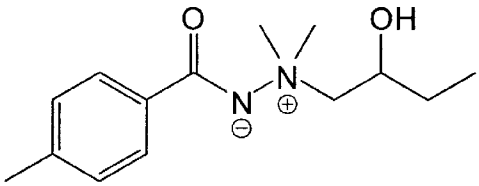
化合物E



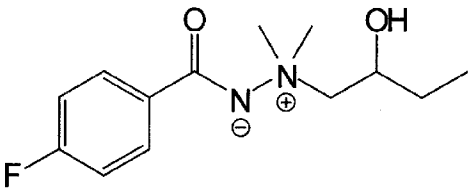
化合物F



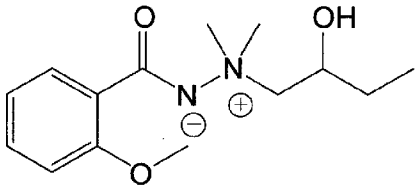
化合物G



化合物H



化合物I



化合物J

[0183] [合成実施例１]

上記の方法で合成した水酸基含有アミンイミド化合物Ａ１．００ｇ（３．

７２ミリモル）と、トリエチルアミン０．０７ｇ（０．６９ミリモル）とをジクロロメタン１０ｍｌに溶解させた。室温下において、この溶液にフェニルイソシアネート０．６６ｇ（５．５８ミリモル）を添加してから、溶液を室温で５時間攪拌し、反応させて均一な溶液とした。得られた溶液を減圧濃縮させて溶液から溶媒を除去することにより、粘稠性の濃縮物を得た。この濃縮物を酢酸エチルに溶解させて得た溶液を、水で洗浄した後、この洗浄時に分離回収される有機層を減圧濃縮することにより粘稠性の濃縮物を得た。そして、この粘稠性の濃縮物を、該濃縮物の倍量の酢酸エチルに溶解させた。続いて、この濃縮物を、メタノール：酢酸エチル＝１：１０の溶媒を展開液として使用し、ＮＨ－シリカゲル（富士シリシア化学（株）製）により２回のカラム精製を行った。ヘキサンを使用して精製後の濃縮物を結晶化させた後、得た結晶を減圧乾燥することにより、純度９９．０%の白色結晶０．６７ｇ（収率４６．３モル%）を得た。

[0184] 当該白色結晶の一部を採取し、^{1}Ｈ－ＮＭＲ（日本電子製　ＥＸｃａｌｉｂｕｒ２７０；２５℃、ＣＤＣｌ$_{3}$、２７０ＭＨｚ）を使用して、その構造を特定した。

７．８８（ｄ，２Ｈ，Ｃ$_{6}$Ｈ$_{4}$）、７．３４－７．０２（ｍ，５Ｈ，Ｃ$_{6}$Ｈ$_{5}$）、６．７５（ｄ，２Ｈ，Ｃ$_{6}$Ｈ$_{4}$）、５．４４－５．３９（ｍ，１Ｈ，ＣＨＯＨ）、４．０７－４．０４（ｍ，２Ｈ，ＮＣＨ$_{2}$）　３．７５（ｓ，３Ｈ，ＯＣＨ$_{3}$）、３．４５（ｄ，６Ｈ，ＮＣＨ$_{3}$）、１．７５－１．６５（ｍ，２Ｈ，ＣＨ$_{2}$ＣＨ$_{3}$）、０．９７（ｔ，３Ｈ，ＣＨ$_{2}$ＣＨ$_{3}$）

[0185] また、当該白色結晶の一部を採取し、ＥＳＩ－ＭＳ（マイクロマス製　ＺＮＤ）を使用して質量分析を行ったところ、その測定値は３８６．２であった。以上の結果から、当該白色結晶は、アミンイミド化合物１、すなわち１，１－ジメチル－1－（２－フェニルカルバミルブチル）アミン　ｐ－メトキシベンズイミドであることが確認された。

[0186] ［合成実施例２］

上記の方法で合成した水酸基含有アミンイミド化合物Ｂ６．３６ｇ（２４

．０ミリモル）と、トリエチルアミン０．４０ｇ（４．０ミリモル）とをジクロロメタン３０ｍｌに溶解させた。室温下において、この溶液にフェニルイソシアネート３．５７ｇ（３０．０ミリモル）を滴下した。室温下において、滴下が終了した溶液を、１０時間攪拌し、反応させた。反応を終了させた溶液を、減圧濃縮することによって溶液中から溶媒を除去し、粘稠性の濃縮物を得た。この濃縮物を酢酸エチルに溶解させた後、この溶液を水で洗浄することによって有機層を得た。有機層を減圧濃縮して、粘稠性の濃縮物を得た。この粘稠性の濃縮物を、該濃縮物の倍量の酢酸エチルに溶解させた。この溶液をメタノール：酢酸エチル＝１：１０の展開液を使用して、ＮＨ－シリカゲル（富士シリシア化学（株）製）により２回のカラム精製を行った。ヘキサンを使用して精製後の濃縮物を結晶化させた後、この結晶を減圧乾燥することにより、純度９７．２%の白色結晶７．０４ｇ（収率８０．４モル%）を得た。

[0187] 当該白色結晶の一部を採取し、^{1}Ｈ－ＮＭＲ（日本電子製　ＥＸｃａｌｉｂｕｒ２７０；２５℃、$CDCl_3$、２７０ＭＨｚ）を使用して、その構造を特定した。

７．４１－７．１８（ｍ，２Ｈ，C_6H_4）、７．４１－７．０２（ｍ，５Ｈ，C_6H_5）、６．９０－６．８４（ｍ，２Ｈ，C_6H_4）、４．９２－４．８０（ｍ，２Ｈ，C_5H_{10}）、４．７７－４．６４（ｍ，２Ｈ，C_5H_{10}）、４．１７－４．０４（ｍ，１Ｈ，ＣＨＯ）、４．００－３．６０（ｍ，２Ｈ，NCH_2）、３．８４（ｓ，３Ｈ，OCH_3）、３．１２－２．８３（ｍ，２Ｈ，C_5H_{10}）、２．４９－２．２０（ｍ，２Ｈ，C_5H_{10}）、１．８８－１．７１（ｍ，２Ｈ，C_5H_{10}）、１．７１－１．５６（ｍ，２Ｈ，CH_2CH_3）、１．０１（ｔ，３Ｈ，CH_2CH_3）

[0188] また、当該白色結晶の一部を採取し、ＥＳＩ－ＭＳ（マイクロマス製　ＺＮＤ）を使用して質量分析を行ったところ、その測定値は４２６．１であった。以上の結果から、当該白色結晶は、アミンイミド化合物２、すなわち１－（２－メトキシベンゾイル）アミノ－１－（２－フェニルカルバモイルオ

キシブチル）ピペリジニウム分子内塩であることが確認された。

[0189] ［合成実施例３］

上記の方法で合成した水酸基含有アミンイミド化合物Ｃ２．８２ｇ（９．０４ミリモル）と、トリエチルアミン０．１８ｇ（１．７８ミリモル）とをジクロロメタン１７ｍｌに溶解した。室温下において、この溶液にフェニルイソシアネート１．６５ｇ（１３．６ミリモル）を添加した後、当該溶液を５０℃で１０時間攪拌し、反応させた。得られた溶液を、減圧濃縮することによって溶液中から溶媒を除去し、粘稠性の濃縮物を得た。この濃縮物を、メタノール：酢酸エチル＝１：１０の展開液を使用してＮＨ－シリカゲル（富士シリシア化学（株）製）によりカラム精製を行った。そして、ヘキサンを使用して精製後の濃縮物を結晶化させた後、この結晶を水洗してから乾燥することにより、純度９３．２%の白色結晶１．７５ｇ（収率４９．１モル%）を得た。

[0190] 当該白色結晶の一部を採取し、^{1}Ｈ－ＮＭＲ（日本電子製　ＥＸｃａｌｉｂｕｒ２７０；２５℃、ＣＤＣｌ$_{3}$、２７０ＭＨｚ）を使用して、その構造を特定した。

７．４１－７．２５(m，１Ｈ，Ｃ$_{6}$Ｈ$_{3}$)、７．４１－７．２５(m，４Ｈ，Ｃ$_{6}$Ｈ$_{5}$)、７．０８－７．０３(m，１Ｈ，Ｃ$_{6}$Ｈ$_{5}$)、６．４１－６．３３(m，２Ｈ，Ｃ$_{6}$Ｈ$_{3}$)、４．１７－４．１１(m，１Ｈ，ＣＨＯ)、３．８３(ｓ，３Ｈ，ＯＣＨ$_{3}$)、３．７７(ｓ，３Ｈ，ＯＣＨ$_{3}$)、３．３７－３．２８(m，２Ｈ，ＮＣＨ$_{2}$)、２．０４－２．０２(m，３Ｈ，ＮＣＨ$_{3}$)、１．８０－１．６９(m，３Ｈ，ＮＣＨ$_{3}$)、１．２８－１．２３(m，２Ｈ，ＣＨ$_{2}$ＣＨ$_{3}$)、１．０２－０．９４(m，３Ｈ，ＣＨ$_{2}$ＣＨ$_{3}$)

[0191] また、当該白色結晶の一部を採取し、ＥＳＩ－ＭＳ（マイクロマス製　ＺＮＤ）を使用して質量分析を行ったところ、その測定値は４１６．２であった。以上の結果から、当該白色結晶は、アミンイミド化合物３、すなわち１，１－ジメチル－１－（２－フェニルカルバミルブチル）アミン　ｏ，ｐ－ジメトキシベンズイミドであることが確認された。

[0192] ［合成実施例４］

上記の方法で合成した水酸基含有アミンイミド化合物Ｄ４．６９ｇ（１５．０ミリモル）と、トリエチルアミン０．３０ｇ（３．０ミリモル）とをジクロロメタン２０ｍｌに溶解させた。室温下において、この溶液にフェニルイソシアネート２．４３ｇ（２０．０ミリモル）を添加してから、当該溶液を室温で１２時間攪拌し、反応させた。得られた溶液を、減圧濃縮することによって溶液中から溶媒を除去し、粘稠性の濃縮物を得た。この濃縮物を、メタノール：酢酸エチル＝１：１０の展開液を使用してＮＨ－シリカゲル（富士シリシア化学（株）製）によってカラム精製を行った。ヘキサンを使用して精製後の濃縮物を結晶化させた後、この結晶を乾燥することにより、純度９８．６%の白色結晶５．０８ｇ（収率７８．１モル%）を得た。

[0193] 当該白色結晶の一部を採取し、^{1}Ｈ－ＮＭＲ（日本電子製　ＥＸｃａｌｉｂｕｒ２７０；２５℃、ＣＤＣｌ$_{3}$、２７０ＭＨｚ）を使用して、その構造を特定した。

７．４１－７．２４(m，５Ｈ，Ｃ$_{6}$Ｈ$_{5}$)、７．３９－６．９２(m，４Ｈ，Ｃ$_{6}$Ｈ$_{4}$)、４．６３－４．５１(m，４Ｈ，Ｃ$_{4}$Ｈ$_{8}$Ｏ)、４．１８－４．０７(m，１Ｈ，ＣＨＯ)、４．００－３．６２(m，２Ｈ，ＮＣＨ$_{2}$)、３．８１(s，３Ｈ，ＯＣＨ３)、３．２１－２．９４(m，４Ｈ，Ｃ$_{4}$Ｈ$_{8}$Ｏ)、１．７１－１．５６(m，２Ｈ，ＣＨ$_{2}$ＣＨ$_{3}$)、１．０１（ｔ，３Ｈ，ＣＨ$_{2}$ＣＨ$_{3}$）

[0194] また、当該白色結晶の一部を採取し、ＥＳＩ－ＭＳ（マイクロマス製　ＺＮＤ）を使用して質量分析を行ったところ、その測定値は４２８．１であった。以上の結果から、当該白色結晶は、アミンイミド化合物４、すなわちＮ－（２－メトキシベンゾイル）アミノ－Ｎ－（２－フェニルカルバモイルオキシブチル）モルホリニウム分子内塩であることが確認された。

[0195] ［合成実施例５］

上記の方法で合成した水酸基含有アミンイミド化合物Ｅ８．５０ｇ（２５．０ミリモル）と、トリエチルアミン０．５１ｇ（５．１ミリモル）とをジクロロメタン４０ｍｌに溶解させた。室温下において、この溶液にフェニル

イソシアネート４．０１ｇ（３３．０ミリモル）を添加してから、当該溶液を室温で３日間攪拌し、反応させた。反応を終了させた溶液を、減圧濃縮することによって、溶液中から溶媒を除去し、粘稠性の濃縮物を得た。この濃縮物を、メタノール：酢酸エチル＝１：１０の展開液を使用してＮＨ－シリカゲル（富士シリシア化学（株）製）によりカラム精製を行った。ヘキサンを使用して、精製後の濃縮物を減圧濃縮することにより結晶化させた後、この結晶を洗浄し、乾燥することによって純度９８．２%の白色結晶１０．９１ｇ（収率９４．１モル%）を得た。

[0196] 当該白色結晶の一部を採取し、^{1}Ｈ－ＮＭＲ（日本電子製　ＥＸｃａｌｉｂｕｒ２７０；２５℃、ＣＤＣｌ$_{3}$、２７０ＭＨｚ）を使用して、その構造を特定した。

７．６１－７．０２(m，５Ｈ，Ｃ$_{6}$Ｈ$_{5}$)、７．５９－６．８４(m，３Ｈ，Ｃ$_{6}$Ｈ$_{3}$)、４．８２－４．７０(m，２Ｈ，Ｃ$_{5}$Ｈ$_{10}$)、４．６７－４．６０(m，２Ｈ，Ｃ$_{5}$Ｈ$_{10}$)、４．１８－４．０４(m，１Ｈ，ＣＨＯ)、３．８１－３．６０(m，２Ｈ，ＮＣＨ$_{2}$)、３．７４(ｓ，６Ｈ，ＯＣＨ$_{3}$)、３．１２－２．９３(m，２Ｈ，Ｃ$_{5}$Ｈ$_{10}$)、２．５５－２．３２(m，２Ｈ，Ｃ$_{5}$Ｈ$_{10}$)、１．８８－１．７３(m，２Ｈ，Ｃ$_{5}$Ｈ$_{10}$)、１．６７－１．５６(m，２Ｈ，ＣＨ$_{2}$ＣＨ$_{3}$)、１．０３（ｔ，３Ｈ，ＣＨ$_{2}$ＣＨ$_{3}$）

[0197] また、当該白色結晶の一部を採取し、ＥＳＩ－ＭＳ（マイクロマス製　ＺＮＤ）を使用して質量分析を行ったところ、その測定値は４５６．２であった。以上の結果から、当該白色結晶は、アミンイミド化合物５、すなわち１－（２，４－ジメトキシベンゾイル）アミノ－１－（２－ピバロイルオキシブチル）ピペリジニウム分子内塩であることが確認された。

[0198] ［合成実施例６］

上記の方法で合成した水酸基含有アミンイミド化合物Ｂ６．１６ｇ（０．０２０モル）と、無水酢酸２．９８ｇ（０．０２８モル）と、をメチルエチルケトン１９ｍＬに溶解させた。この溶液を、８０℃で６時間攪拌し、反応させた。反応を終了させた溶液を、減圧濃縮により溶媒および酢酸を除去し

、粘調性の濃縮物を得た。この濃縮物を酢酸エチルに溶解させ、水で抽出した後、水層を減圧濃縮して、粘調性の濃縮物を得た。この濃縮物を酢酸エチルで溶媒交換した後、濃縮し、得られたスラリーを酢酸エチルで洗浄した。得られた有機層を濃縮して、ヘキサンを使用して結晶化させた後、減圧乾燥して純度９９．２%の白色結晶３．７４ｇ（収率５３．２モル%）を得た。

[0199] 当該白色結晶の一部を採取し、^{1}Ｈ－ＮＭＲ（日本電子製　ＥＸｃａｌｉｂｕｒ２７０；２５℃、ＣＤＣｌ$_3$、２７０ＭＨｚ）を使用して、その構造を特定した。

７．３９－７．３５（ｍ，１Ｈ，Ｃ$_6$Ｈ$_4$）、７．２４－７．１８（ｍ，１Ｈ，Ｃ$_6$Ｈ$_4$）、６．９１－６．８４（ｍ，２Ｈ，Ｃ$_6$Ｈ$_4$）、５．６７－５．６５（ｍ，１Ｈ，ＣＨＯ）、４．９８－４．９０（ｍ，２Ｈ，ＮＣＨ$_2$）、３．８４（ｓ，３Ｈ，ＯＣＨ$_3$）、３．７８－３．７４（ｍ，１Ｈ，Ｃ$_5$Ｈ$_{10}$）、３．４４－３．３６（ｍ，１Ｈ，Ｃ$_5$Ｈ$_{10}$）、３．１４－３．０６（ｍ，１Ｈ，Ｃ$_5$Ｈ$_{10}$）、２．９２－２．８１（ｍ，１Ｈ，Ｃ$_5$Ｈ$_{10}$）、２．３９－２．２６（ｍ，２Ｈ，Ｃ$_5$Ｈ$_{10}$）、２．０５（ｓ，３Ｈ，ＣＨ$_3$ＣＯ）、１．８３－１．３６（ｍ，６Ｈ，Ｃ$_5$Ｈ$_{10}$＋ＣＨ$_2$ＣＨ$_3$）、０．９６（ｔ，３Ｈ，ＣＨ$_2$ＣＨ$_3$）

[0200] また、当該白色結晶の一部を採取し、ＥＳＩ－ＭＳ（マイクロマス製　ＺＮＤ）を使用して質量分析を行ったところ、その測定値は３４９．２であった。以上の結果から、当該白色結晶は、アミンイミド化合物６、すなわち１－（２－アセトキシブチル）－１－（２－メトキシベンゾイル）アミノピペリジニウム分子内塩であることが確認された。

[0201] ［合成実施例７］

上記の方法で合成した水酸基含有アミンイミド化合物Ｂ６．１６ｇ（０．０２０モル）と、無水安息香酸６．５３ｇ（０．０２８モル）とを、メチルエチルケトン１５ｍＬに溶解させた。この溶液を、８０℃で２時間攪拌し、反応させた。反応を終了させた溶液から、減圧濃縮により溶媒を除去し、粘調性の濃縮物を得た。この濃縮物を、濃縮物の倍量の酢酸エチルに溶解させ

、メタノール：酢酸エチル＝１：１０の展開液を使用してＮＨ－シリカゲル（富士シリシア化学（株）製）によりカラム精製を行った。ヘキサンを使用して、精製後の濃縮物を再結晶化させた後、減圧乾燥して純度９９．２%の白色結晶７．９４ｇ（収率７５．９モル%）を得た。

[0202] 当該白色結晶の一部を採取し、^{1}Ｈ－ＮＭＲ（日本電子製　ＥＸｃａｌｉｂｕｒ２７０；２５℃、ＣＤＣｌ$_{3}$、２７０ＭＨｚ）を使用して、その構造を特定した。

８．０５－８．０２（ｍ，２Ｈ，Ｃ$_{6}$Ｈ$_{5}$）、７．６１－７．５５（ｍ，１Ｈ，Ｃ$_{6}$Ｈ$_{5}$）、７．４８－７．３８（ｍ，３Ｈ，Ｃ$_{5}$Ｈ$_{10}$＋Ｃ$_{6}$Ｈ$_{4}$）、７．２７－７．１９（ｍ，１Ｈ，Ｃ$_{6}$Ｈ$_{4}$）、６．９２－６．８６（ｍ，２Ｈ，Ｃ$_{6}$Ｈ$_{4}$）、５．９５－５．９３（ｍ，１Ｈ，ＣＨＯ）、５．１４－４．９４（ｍ，２Ｈ，ＮＣＨ$_{2}$）、３．８７（ｓ，３Ｈ，ＯＣＨ$_{3}$）、３．８０－３．７６（ｍ，１Ｈ，Ｃ$_{5}$Ｈ$_{10}$）、３．６４－３．５７（ｍ，１Ｈ，Ｃ$_{5}$Ｈ$_{10}$）、３．１５－３．１４（ｍ，１Ｈ，Ｃ$_{5}$Ｈ$_{10}$）、２．９２－２．９１（ｍ，１Ｈ，Ｃ$_{5}$Ｈ$_{10}$）、２．３９－２．２７（ｍ，２Ｈ，Ｃ$_{5}$Ｈ$_{10}$）、１．９４－１．３５（ｍ，６Ｈ，Ｃ$_{5}$Ｈ$_{10}$＋ＣＨ$_{2}$ＣＨ$_{3}$）、１．０３（ｔ，３Ｈ，ＣＨ$_{2}$ＣＨ$_{3}$）

[0203] また、当該白色結晶の一部を採取し、ＥＳＩ－ＭＳ（マイクロマス製　ＺＮＤ）を使用して質量分析を行ったところ、その測定値は４１１．３であった。以上の結果から、当該白色結晶は、アミンイミド化合物７、すなわち、１－（２－ベンゾイルオキシブチル）－１－（２－メトキシベンゾイル）アミノピペリジニウム分子内塩であることが確認された。

[0204] ［合成実施例８］

上記の方法で合成した水酸基含有アミンイミド化合物Ｂ３．０６ｇ（０．０１０モル）と、ピリジン１．６３ｇ（０．０２０モル）とを、ジクロロメタン１０ｍＬに溶解させ、さらにピバル酸クロリド１．８１ｇ（０．０１５モル）を氷冷下で滴下した。滴下終了後、当該溶液を５０℃で７時間攪拌し、反応させた。反応を終了させた溶液から、減圧濃縮により溶媒を除去し、粘調性の濃縮物を得た。この濃縮物をジクロロメタンに溶解させ、水で抽出

洗浄した。得られた有機層を減圧濃縮し、粘調性の濃縮物を得た。この濃縮物を、濃縮物の倍量の酢酸エチルに溶解させ、ヘキサンを使用して結晶化させた後、減圧乾燥して純度９９．８%の白色結晶２．７１ｇ（収率６９．４モル%）を得た。

[0205] 当該白色結晶の一部を採取し、^{1}Ｈ－ＮＭＲ（日本電子製　ＥＸｃａｌｉｂｕｒ２７０；２５℃、ＣＤＣｌ$_3$、２７０ＭＨｚ）を使用して、その構造を特定した。

７．３８－７．３５（ｍ，１Ｈ，C_6H_4）、７．２７－７．１８（ｍ，１Ｈ，C_6H_4）、６．９１－６．８５（ｍ，２Ｈ，C_6H_4）、５．６７－５．６５（ｍ，１Ｈ，ＣＨＯ）、５．０７－４．８７（ｍ，２Ｈ，NCH_2）、３．８５（ｓ，３Ｈ，OCH_3）、３．７１－３．６７（ｍ，１Ｈ，C_5H_{10}）、３．４５－３．３７（ｍ，１Ｈ，C_5H_{10}）、３．１８－３．１０６（ｍ，１Ｈ，C_5H_{10}）、２．８９－２．８１（ｍ，１Ｈ，C_5H_{10}）、２．３８－２．２５（ｍ，２Ｈ，C_5H_{10}）、１．８２－１．４１（ｍ，６Ｈ，$C_5H_{10}+CH_2CH_3$）、１．２０（ｓ，９Ｈ，$C(CH_3)_3$）、０．９６（ｔ，３Ｈ，CH_2CH_3）

[0206] また、当該白色結晶の一部を採取し、ＥＳＩ－ＭＳ（マイクロマス製　ＺＮＤ）を使用して質量分析を行ったところ、その測定値は３９１．３であった。以上の結果から、当該白色結晶は、アミンイミド化合物８、すなわち、１－（２－メトキシベンゾイル）アミノ－１－（２－ピバロイルオキシブチル）ピペリジニウム分子内塩であることが確認された。

[0207] ［合成実施例９］

上記の方法で合成した水酸基含有アミンイミド化合物Ｊ１．７４ｇ（０．００６５モル）と、ピリジン５．９４ｇ（０．０７５モル）とを、ジクロロメタン１５ｍＬに溶解させ、さらにピバル酸クロリド３．３９ｇ（０．０２８モル）を氷冷下で滴下した。滴下終了後、当該溶液を室温で７０時間攪拌し、反応させた。反応を終了させた溶液から、減圧濃縮により溶媒を除去し、粘調性の濃縮物を得た。この濃縮物を、濃縮物の倍量の酢酸エチルに溶解

させ、メタノール：酢酸エチル＝１：１０の展開液を用いてＮＨ－シリカゲル（富士シリシア化学（株）製）によりカラム精製を行った。精製した濃縮物を、ヘキサンを使用して再結晶化させた後、減圧乾燥して純度９８．１％の白色結晶０．８２ｇ（収率３６．０モル%）を得た。

[0208] 該白色結晶の一部を採取し、^{1}Ｈ－ＮＭＲ（日本電子製　ＥＸｃａｌｉｂｕｒ２７０；２５℃、ＣＤＣｌ$_3$、２７０ＭＨｚ）を使用して、その構造を特定した。

７．４９－７．４３（ｍ，２Ｈ，C_6H_4）、７．１２－６．９８（ｍ，２Ｈ，C_6H_4）、５．６１－５．５３（ｍ，１Ｈ，ＣＨＯ）、４．９２－４．７０（ｍ，２Ｈ，NCH_2）、３．９５（ｓ，３Ｈ，OCH_3）、３．７１（ｓ，２Ｈ，NCH_3）、３．４０（ｓ，２Ｈ，NCH_3）、１．８０－１．６０（ｍ，２Ｈ，CH_2CH_3）、１．２１（ｓ，９Ｈ，Ｃ（CH_3）$_3$）、０．９６（ｔ，３Ｈ，CH_2CH_3）

[0209] また、当該白色結晶の一部を採取し、ＥＳＩ－ＭＳ（マイクロマス製　ＺＮＤ）を使用して質量分析を行ったところ、その測定値は３５１．３であった。以上の結果から、当該白色結晶は、アミンイミド化合物９、すなわち、１，１－ジメチル－１－（２－ピバロイロキシブチル）アミン　ｏ－メトキシベンズイミドであることが確認された。

[0210] ［合成実施例１０］

上記の方法で合成した水酸基含有アミンイミド化合物Ｂ　４．５６ｇ（０．０１４９モル）と、ピリジン１．９７６ｇとを、酢酸エチル６０ｍＬに溶解させ、さらに2-メトキシベンゾイルクロリド７．７６ｇ（０．０４５５モル）を氷冷下で滴下した。滴下終了後、当該溶液を５０℃で７時間加熱撹拌して、反応させた。この溶液を冷却した後、重曹水と酢酸エチルを加え、析出した固体を溶解させた。得られた有機層を水洗いし、硫酸マグネシウムで乾燥させた。乾燥剤をろ別した後、減圧濃縮して得られた残渣を酢酸エチルで再結晶化させて、１－（２－メトキシベンゾイル）アミノ－１－［２－（２－メトキシベンゾイルオキシ）ブチル］ピペリジニウム分子内塩の白色結

晶４．１５ｇ（収率６３．２モル%）を得た。

[0211] 当該白色結晶の一部を採取し、１Ｈ－ＮＭＲ（日本電子製 ＥＸｃａｌｉｂｕｒ２７０；２５℃、$CDCl_3$、２７０ＭＨｚ）を使用して、その構造を特定した。

δ（ｐｐｍ） ７．７６（ｄ，１Ｈ，Ｊ＝２．６Ｈｚ）、７．５１６－７．４５１（ｍ，１Ｈ）、７．４０（ｄｄ，１Ｈ，Ｊ＝２、８Ｈｚ）、７．２６－７．１９（ｍ，１Ｈ）、７．０２－６．９６（ｍ，２Ｈ）、５．８７（ｑ，１Ｈ，Ｊ＝６Ｈｚ）、５．０５（ｄｄ，１Ｈ，Ｊ＝１、１４Ｈｚ）、４．９５（ｂｒ．ｄ，１Ｈ）、３．８７（ｄ，７Ｈ，Ｊ＝５Ｈｚ）、３．５９（ｑ，１Ｈ，Ｊ＝７．７Ｈｚ）、３．１２（ｄｔ，１Ｈ，Ｊ＝９、１１Ｈｚ）、２．９５（ｄｔ，１Ｈ，Ｊ＝３、１２Ｈｚ）、２．４８－２．２２（ｍ，１Ｈ）、１．９７－１．８４（ｍ，２Ｈ）、１．８２－１．７１（ｍ，１Ｈ）、１．８０－１．５２（ｍ，３Ｈ）、１．５０－１．３１（ｍ，１Ｈ）、１．０４（ｔ，３Ｈ，Ｊ＝８Ｈｚ）

[0212] また、当該白色結晶の一部を採取し、ＥＳＩ－ＭＳ（マイクロマス製 ＺＮＤ）を使用して質量分析を行ったところ、アミンイミド化合物１０、すなわち１－（２－メトキシベンゾイル）アミノ－１－［２－（２－メトキシベンゾイルオキシ）ブチル］ピペリジニウム分子内塩の親ピークを観測した。

[0213] ［合成実施例１１］

上記の方法で合成した水酸基含有アミンイミド化合物Ｂ ４．６ｇ（０．０１５モル）と、ピリジン２．３４ｇとを、酢酸エチル６０ｍＬに溶解させ、さらに2-メチルベンゾイルクロリド４．８５ｇ（０．０３１４モル）を氷冷下で滴下した。滴下終了後、当該溶液を５０℃で７時間加熱撹拌し、反応させた。この溶液を冷却した後、重曹水と酢酸エチルを加え、析出した固体を溶解させた。得られた有機層を水洗いし、硫酸マグネシウムで乾燥させた。乾燥剤をろ別した後、減圧濃縮して得られた残渣を、酢酸エチル／ヘキサン混合溶媒で再結晶化させて、１－（２－メトキシベンゾイル）アミノ－１－［２－（２－メチルベンゾイルオキシ）ブチル］ピペリジニウム分子内塩

の白色結晶３．６２ｇ（収率５６．７モル%）を得た。

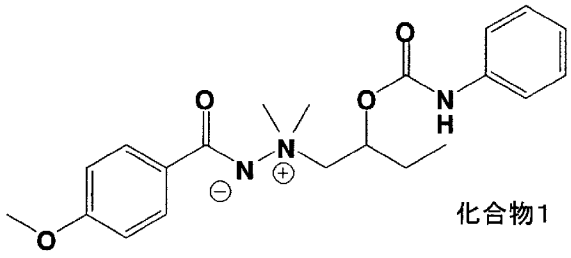
[0214] 当該白色結晶の一部を採取し、１Ｈ－ＮＭＲ（２５℃、ＣＤＣｌ$_3$、２７０ＭＨｚ）を使用して、その構造を特定した。

δ（ｐｐｍ） ７．８９（ｄ，１Ｈ，Ｊ＝９Ｈｚ）、７．４５－７．３８（ｍ，２Ｈ）、７．２７－７．１９（ｍ，３Ｈ）、６．９２－６．８６（ｍ，２Ｈ）、５．９０（ｑ，１Ｈ，Ｊ＝６Ｈｚ）、５．１０（ｄｄ，１Ｈ，Ｊ＝１．４、１４Ｈｚ）、４．９８（ｂｒ．ｄ，１Ｈ）、３．８７（ｓ，３Ｈ）、３．７９（ｂｒ．ｄ，１Ｈ）、３．５７（ｑ，１Ｈ，Ｊ＝７Ｈｚ）、３．１１（ｄｔ，１Ｈ，Ｊ＝３、１２Ｈｚ）、２．９１（ｄｔ，１Ｈ，Ｊ＝３、１２Ｈｚ）、２．６１（ｓ，３Ｈ）、２．４５－２．２０（ｍ，２Ｈ）、２．００－１．８０（ｍ，２Ｈ）、１．８０－１．５０（ｍ，３Ｈ）、１．５０－１．３０（ｍ，１Ｈ）、１．０５（ｔ，３Ｈ，Ｊ＝７．５Ｈｚ）

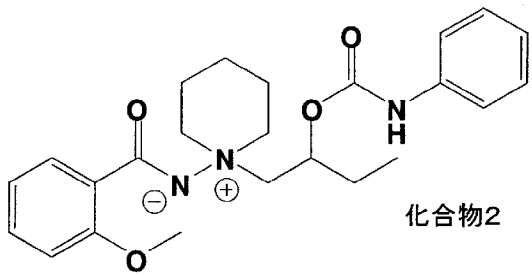
[0215] また、当該白色結晶の一部を採取し、ＥＳＩ－ＭＳ（マイクロマス製 ＺＮＤ）を使用して質量分析を行ったところ、アミンイミド化合物１１、すなわち１－（２－メトキシベンゾイル）アミノ－１－［２－（２－メチルベンゾイルオキシ）ブチル］ピペリジニウム分子内塩の親ピークを観測した。

[0216] 本発明に用いられるアミンイミド化合物１～１１

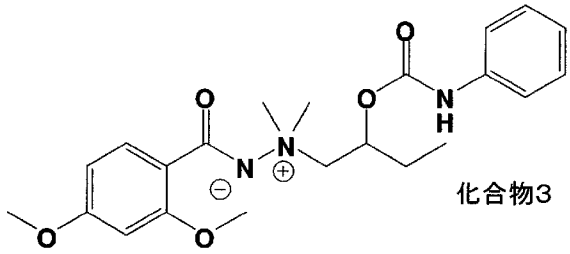
[化41]



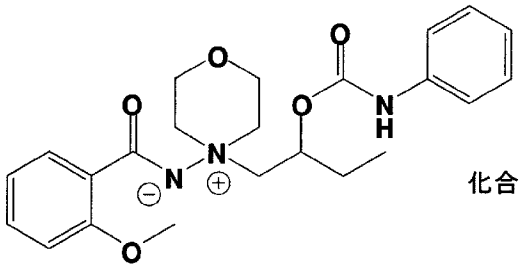
化合物1



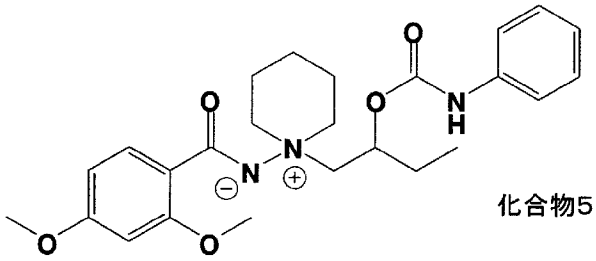
化合物2



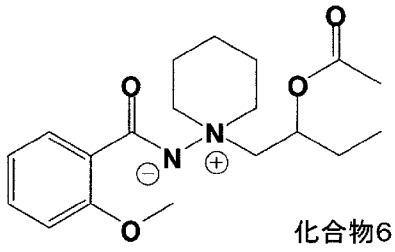
化合物3



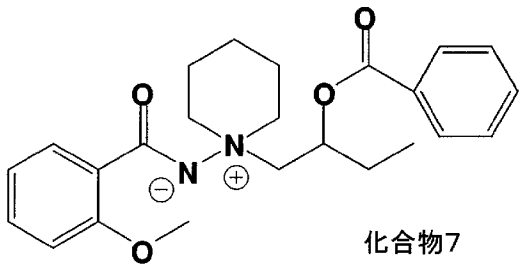
化合物4



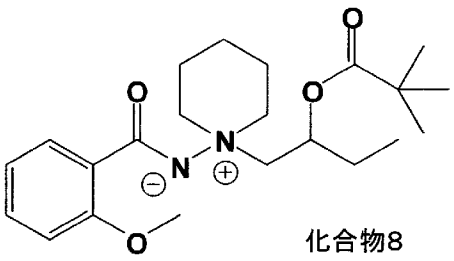
化合物5



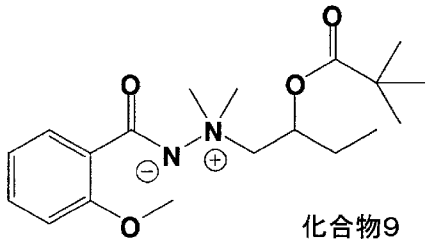
化合物6



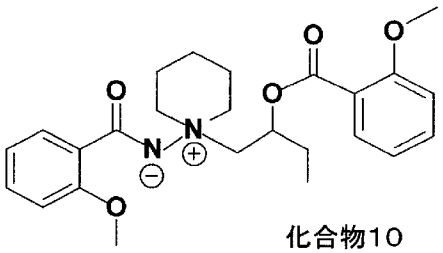
化合物7



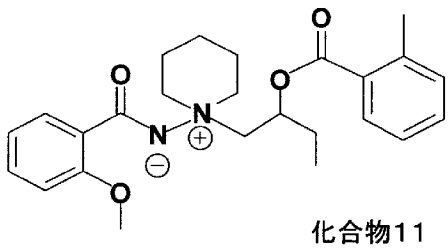
化合物8



化合物9



化合物10



化合物11

[0217] 次に、本発明のアミンイミド化合物または水酸基含有アミンイミド化合物を原料とするエポキシ樹脂組成物を調製した。そして、このエポキシ樹脂組成物の諸特性である、硬化性、室温での保存安定性、および初期粘度、をそれぞれ測定した。

[0218] ［エポキシ樹脂組成物の調製］

以下の各実施例および比較例で使用したエポキシ樹脂組成物は、下記の原料を使用した。

各原料を混合するにあたり、酸無水物を、エポキシ樹脂と酸無水物の当量比が１になるように添加した。また、エポキシ樹脂１００質量部に対して、アミンイミド化合物を「その分子量の０．０３７倍質量部」を添加した。酸無水物とアミンイミド化合物とを攪拌容器に入れ、これを２５℃で８時間、撹拌混合することにより、アミンイミド化合物を酸無水物に溶解させた。各

原料を溶解させた溶液に、所定量のエポキシ樹脂を加え、さらに２５℃で１時間攪拌混合することによりエポキシ樹脂組成物を調製した。

エポキシ樹脂（エピクロン８３０Ｓ　大日本インキ化学工業株式会社）：１００質量部

酸無水物（リカシッドＭＨ－７００　新日本理化株式会社）：９３質量部

各実施例および比較例に準じた所定のアミンイミド化合物：（分子量×０．０３７）質量部

[0219] ［硬化性］

エポキシ樹脂組成物を、２枚のＮａＣｌ結晶板（厚み５ｍｍ）の間に挟んだサンプルを用意した。このサンプルを、所定の温度（９０℃）で２時間熱処理した前後の赤外線透過スペクトルを、ＦＴ－ＩＲ測定装置によって測定した。本測定で得られたスペクトルに基づき、エポキシ基の逆対称環伸縮に由来する吸収ピーク高さ（９１０ｃｍ－１付近）を、ベンゼン環の環内Ｃ－Ｃ伸縮に由来する吸収ピーク高さ（１６００ｃｍ－１付近）で除して規格化した。そして、熱処理によるエポキシ基由来のピークの減少度合いからエポキシ基の反応率を算出した。

[0220] 上記熱処理前のエポキシ樹脂組成物のエポキシ基由来ピークの規格値をｘ１、所定の温度で２時間加熱した後に測定されるエポキシ樹脂組成物のエポキシ基由来ピークの規格値をｘ２とした場合、｛（ｘ１－ｘ２）／ｘ１｝×１００（％）で算出される値を、エポキシ転化率として算出した。

このエポキシ転化率は１００％に近づくほど、エポキシ基が消費されて硬化が進んだことを意味する。そして、以下の３段階で評価した。

当該エポキシ転化率が９０～１００％の場合、硬化性が高く極めて良好である（○）とし、当該エポキシ転化率が５０～９０％未満の場合、硬化性が良好である（△）とし、当該エポキシ転化率が０～５０％未満の場合、硬化性が劣る（×）とした。

[0221] ［室温での保存安定性］

エポキシ樹脂組成物の、室温での粘度をη１、室温に２４時間放置した後

の当該エポキシ樹脂組成物の粘度をη２とした場合、η２／η１で算出される値を粘度変化として求めた。そして、以下の３段階で評価した。

当該η２／η１が、１．５未満である場合を保存安定性が極めて良好である（○）とし、当該η２／η１が１．５以上から２．０未満の間にある場合を保存安定性が良好である（△）とし、当該η２／η１が２．０以上である場合を、保安安定性が劣る（×）、とした。

[0222] ［初期粘度］

エポキシ樹脂組成物の粘度を、Ｅ型粘度計（東機産業製　ＲＣ－５００）により２５℃、３分の条件で測定し、この測定値を、エポキシ樹脂組成物の初期粘度（ｍＰａ・ｓ）とした。

[0223] ［アミンイミド化合物の分解性；Ｎ－Ｎ結合エネルギー］

アミンイミド化合物のＮ－Ｎ結合エネルギーを、密度汎関数法として知られる「Ｂ３ＬＹＰ法」によって算出した。全ての計算は、Ｇａｕｓｓｉａｎ０３　Ｒｅｖ．Ｃ．０２を使用して行った。ここで使用した基底関数は、全ての元素に対してｃｃ－ｐＶＤＺとした。

具体的には、前述のスキームＡで表される解離反応を想定し、解離前後の反応物および生成物の構造の最適化と、全エネルギー計算を行った。そして、Ｎ－Ｎ結合エネルギーは、解離後の生成物の全エネルギーの和から解離前のアミンイミド化合物の全エネルギーを引くことで推算した。

[0224] ［実施例１］

合成実施例１で合成したアミンイミド化合物１を使用してエポキシ樹脂組成物を調製し、その諸特性を調べた。

[0225] ［実施例２］

実施例１で用いたアミンイミド化合物の代わりに、合成実施例２で合成したアミンイミド化合物２を使用してエポキシ樹脂組成物を調製した以外は実施例１と同様に、その諸特性を調べた。

[0226] ［実施例３］

実施例１で用いたアミンイミド化合物の代わりに、合成実施例３で合成し

たアミンイミド化合物３を使用してエポキシ樹脂組成物を調製した以外は実施例１と同様に、その諸特性を調べた。

[0227] ［実施例４］

実施例１で用いたアミンイミド化合物の代わりに、合成実施例４で合成したアミンイミド化合物４を使用してエポキシ樹脂組成物を調製した以外は実施例１と同様に、その諸特性を調べた。

[0228] ［実施例５］

実施例１で用いたアミンイミド化合物の代わりに、合成実施例５で合成したアミンイミド化合物５を使用してエポキシ樹脂組成物を調製した以外は実施例１と同様に、その諸特性を調べた。

[0229] ［実施例６］

実施例１で用いたアミンイミド化合物の代わりに、合成実施例６で合成したアミンイミド化合物６を使用してエポキシ樹脂組成物を調製した以外は実施例１と同様に、その諸特性を調べた。

[0230] ［実施例７］

実施例１で用いたアミンイミド化合物の代わりに、合成実施例７で合成したアミンイミド化合物７を使用してエポキシ樹脂組成物を調製した以外は実施例１と同様に、その諸特性を調べた。

[0231] ［実施例８］

実施例１で用いたアミンイミド化合物の代わりに、合成実施例８で合成したアミンイミド化合物８を使用してエポキシ樹脂組成物を調製した以外は実施例１と同様に、その諸特性を調べた。

[0232] ［実施例９］

実施例１で用いたアミンイミド化合物の代わりに、合成実施例９で合成したアミンイミド化合物９を使用してエポキシ樹脂組成物を調製した以外は実施例１と同様に、その諸特性を調べた。

[0233] ［比較例１］

実施例１で用いたアミンイミド化合物の代わりに、水酸基含有アミンイミ

ド化合物Ａを使用してエポキシ樹脂組成物を調製した以外は実施例１と同様に、その諸特性を調べた。

[0234] ［比較例２］

実施例１で用いたアミンイミド化合物の代わりに、水酸基含有アミンイミド化合物Ｂを使用してエポキシ樹脂組成物を調製した以外は実施例１と同様に、その諸特性を調べた。

[0235] ［比較例３］

実施例１で用いたアミンイミド化合物の代わりに、水酸基含有アミンイミド化合物Ｆを使用してエポキシ樹脂組成物を調製した以外は実施例１と同様に、その諸特性を調べた。

[0236] ［比較例４］

実施例１で用いたアミンイミド化合物の代わりに、水酸基含有アミンイミド化合物Ｇを含むエポキシ樹脂組成物を調製した以外は実施例１と同様に、その諸特性を調べた。

[0237] ［比較例５］

実施例１で用いたアミンイミド化合物の代わりに、水酸基含有アミンイミド化合物Ｈを使用してエポキシ樹脂組成物を調製した以外は実施例１と同様に、その諸特性を調べた。

[0238] ［比較例６］

実施例１で用いたアミンイミド化合物の代わりに、水酸基含有アミンイミド化合物Ｉを使用してエポキシ樹脂組成物を調製した以外は実施例１と同様に、その諸特性を調べた。

[0239] ［比較例７］

実施例１で用いたアミンイミド化合物の代わりに、水酸基含有アミンイミド化合物Ｃを使用してエポキシ樹脂組成物を調製した以外は実施例１と同様に、その諸特性を調べた。

[0240] ［比較例８］

実施例１で用いたアミンイミド化合物の代わりに、水酸基含有アミンイミ

ド化合物Ｊを使用してエポキシ樹脂組成物を調製した以外は実施例１と同様に、その諸特性を調べた。

[0241] 各実施例１～９および各比較例１～８のエポキシ樹脂組成物の諸特性（硬化性、室温での保存安定性、初期粘度、Ｎ－Ｎ結合エネルギー）の評価結果を、図１の表１－１および表１－２に示す。

[0242] 表１－１に示されるように、分子構造内に水酸基のような反応性が高い有機基を持たないアミンイミド化合物を含む実施例１～９のエポキシ樹脂組成物は、９０℃程度の低温でも硬化するとともに、室温での保存安定性が高いことがわかる。さらに、これらのエポキシ樹脂組成物の初期粘度は低く、作業性が良好である。

[0243] 一方、表１－２に示されるように、比較例１～８のエポキシ樹脂組成物の中には、低温硬化性が良好なものもある。しかしながら、これらのエポキシ樹脂組成物は、水酸基を有するアミンイミド化合物を含むため、室温での保存安定性が低い。また、これらのエポキシ樹脂組成物は、初期粘度が高く、作業性が低い。このように、比較例１～８のエポキシ樹脂組成物は、低温硬化性、室温での保存安定性、初期粘度においてバランスが取れていないことがわかる。

[0244] このことは、実施例１と比較例１、および実施例２と比較例２とを比較すると、より明らかである。実施例１～９のエポキシ樹脂組成物が高い低温硬化性を有するのは、エポキシ樹脂組成物の原料の一つであるアミンイミド化合物のＮ－Ｎ結合エネルギーが小さいことに起因すると考えられる。

[0245] 具体的には、各実施例で使用したアミンイミド化合物の分子構造中のＮ－Ｎ結合エネルギーを下記の方法で算出し、その大きさを比較することによりアミンイミド化合物の分解性を評価した。表１－１にも示されるように、実施例１～９のアミンイミド化合物のＮ－Ｎ結合エネルギーは、上限でも２１０ｋＪ／ｍｏｌ程度であり、下限値は１１２ｋＪ／ｍｏｌ未満である。よって、実施例１～９のアミンイミド化合物のＮ－Ｎ結合エネルギーは極めて小さいことが分かった。

[0246] これに対して、表１－２に示されるように、比較例１～８のアミンイミド化合物のＮ－Ｎ結合エネルギーは、１７５ｋＪ／ｍｏｌ以上であり、中には２１０ｋＪ／ｍｏｌ程を越えるものが多い。よって、比較例１～８のアミンイミド化合物のＮ－Ｎ結合エネルギーは、比較的高いことが分かった。

[0247] さらに、実施例１と実施例３を比較すると、アミンイミドのカルボニル炭素に結合するフェニル基上の置換基が、パラ位のみにあるよりも、オルト位とパラ位の両方にあるほうが、Ｎ－Ｎ結合エネルギーが低いことがわかる。そして、低温硬化性も向上することがわかる。同様に、実施例２と実施例５を比較すると、アミンイミドのカルボニル炭素に結合するフェニル基上の置換基が、オルト位のみにあるよりも、オルト位とパラ位の両方にあるほうが、Ｎ－Ｎ結合エネルギーを低くなることがわかる。そして、低温硬化性も向上することがわかる。

[0248] さらに、実施例３と実施例５、または実施例８と実施例９とを比較すると、Ｎ－Ｎ結合エネルギーが低い方が、低温硬化性が高いことが明らかである。

[0249] また、実施例２と実施例６～８とを比較すると、R^5がアシル基であるアミンイミド化合物を含む樹脂組成物は、R^5がＮ置換アミノカルボニル基であるアミンイミド化合物を含む樹脂組成物よりも、室温での保存安定性と低温硬化性のバランスが一層良好であることがわかる。

[0250] また、実施例１～５のエポキシ樹脂組成物を使用して、８０℃での低温硬化性を調べた。この結果、実施例１のエポキシ樹脂組成物のエポキシ転化率は若干低かったが、実施例２～５のエポキシ樹脂組成物のエポキシ転化率は、順に、８３．８％、７０．０％、７９．８％、８１．９％であり、いずれも８０℃での硬化性が高いことが分かった。

[0251] 本出願は、２００７年１２月２８日出願の特願２００７－３４０７８５に基づく優先権を主張する。当該出願明細書および図面に記載された内容は、すべて本願明細書に援用される。

産業上の利用可能性

[0252] 本発明に用いられるアミンイミド化合物は、分子構造内のＮ－Ｎ結合が比較的不安定であるので、低温で容易に分解し、イソシアネート化合物と３級アミンとを発生する。そのため、当該アミンイミド化合物は、エポキシ樹脂等のイオン重合性化合物の硬化を促進させる硬化促進剤として有用である。

[0253] また、本発明に用いられるアミンイミド化合物、エポキシ樹脂および酸無水物を含むエポキシ樹脂組成物は、室温での保存安定性が高く良好でありながら、低温で十分に硬化が進行する。このため、本発明に用いられるアミンイミド化合物は、有機ＥＬディスプレイのシール剤など、多種多様な用途に応じたエポキシ樹脂組成物を与え得る。

請求の範囲

[1] イオン重合性化合物を硬化させる潜在性硬化剤であって、

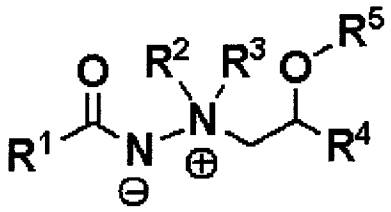
水酸基を有しないアミンイミド化合物を含み、

前記アミンイミド化合物の、Ｂ３ＬＹＰ密度汎関数法により求められるＮ－Ｎ結合エネルギーが１００～２１０ｋＪ／ｍｏｌである、潜在性硬化剤。

[2] 前記アミンイミド化合物のＮ－Ｎ結合エネルギーが、１００～１９５ｋＪ／ｍｏｌである、請求項１記載の潜在性硬化剤。

[3] 前記アミンイミド化合物は、下記一般式（１）で表される、請求項１記載の潜在性硬化剤。

[化1]



....(1)

[一般式（１）中の、

R^1およびR^4は、互いに同一もしくは異なってもよい有機基を表し；

R^2およびR^3は、それぞれ独立して、未置換または置換基を有するアルキル基またはアリール基を表すか、あるいは相互に連結して環を形成し；

R^5は、有機基を表す。ただし、R^1～R^5は、いずれもイオン重合性化合物に対して活性な基を有しないものとする。]

[4] 前記一般式（１）中のR^1が、未置換または置換基を有する、アリール基またはアリーロキシ基である、請求項３記載の潜在性硬化剤。

[5] 前記一般式（１）中のR^2とR^3が相互に連結して、炭素数が４～８の２価の飽和炭化水素基、－（CH_2）$_n$Ｏ（CH_2）$_n$－または－（CH_2）$_n$ＮＲ^{11}（CH_2）$_n$－（いずれも、ｎは２～４の自然数を表わし；R^{11}は任意の有機基を表す）を表す、請求項３記載の潜在性硬化剤。

[6] 前記一般式（１）中のR^5がカルボニル基を有する有機基であって、

前記カルボニル基の炭素原子が、前記一般式（１）の酸素原子と結合して

いる、請求項３記載の潜在性硬化剤。

[7] 前記一般式（１）中のＲ[5]がアシル基である、請求項６記載の潜在性硬化剤。

[8] （ａ）請求項１記載の潜在性硬化剤と、（ｂ）エポキシ樹脂とを含む、エポキシ樹脂組成物。

[9] （ｃ）酸無水物をさらに含む、請求項８記載のエポキシ樹脂組成物。

[10] 前記エポキシ樹脂組成物において、

酸無水基／エポキシ基で表される当量比が０．８～１．２であり、かつ、

アミンイミド基／エポキシ基のモル比が０．００８～０．１５２である、請求項９記載のエポキシ樹脂組成物。

[11] 請求項８記載のエポキシ樹脂組成物を含む、シール剤。

[12] 有機ＥＬ素子が配置された表示基板と、

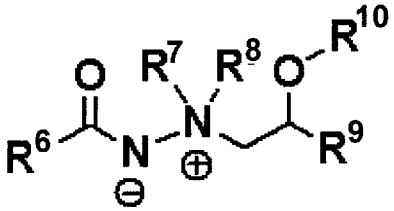
前記表示基板と対になる対向基板と、

前記表示基板と対向基板との間に介在し、前記有機ＥＬ素子を封止する請求項１１記載のシール剤の硬化物と、

を含む有機ＥＬディスプレイ。

[13] 下記一般式（２）で表される、アミンイミド化合物。

[化2]



・・・・(2)

[一般式（２）中の、

Ｒ[6]は、未置換または水酸基以外の置換基を有する、アリール基またはアリーロキシ基を表し；

Ｒ[7]およびＲ[8]は、それぞれ独立して、未置換または水酸基以外の置換基を有するアルキル基またはアリール基を表すか、あるいは相互に連結して水酸基を含まない環を形成し；

R^9は、水酸基以外の有機基を表し；

R^{10}は、未置換または水酸基以外の置換基を有する、アルキル基、アリール基、アミノカルボニル基、アシル基またはオキシカルボニル基を表わす。

ただし、R^6～R^{10}は、エポキシ基に対して活性な基を有しないものとする。]

[14] 前記一般式（２）中のR^6は、未置換のアリール基、アルキル基を有するアリール基、またはアルコキシ基を有するアリール基である、請求項１３記載のアミンイミド化合物。

[15] 前記一般式（２）中のR^7とR^8が相互に連結して、炭素数が４～８の２価の飽和炭化水素基、－（CH_2）$_n$O（CH_2）$_n$－または－（CH_2）$_n$NR^{12}（CH_2）$_n$－（いずれも、ｎは２～４の自然数を表わし；R^{12}は任意の有機基を表す）を表す、請求項１３記載のアミンイミド化合物。

[図1]

表1－1

	単位	実施例1	実施例2	実施例3	実施例4	実施例5	実施例6	実施例7	実施例8	実施例9
アミンイミド化合物		化合物1	化合物2	化合物3	化合物4	化合物5	化合物6	化合物7	化合物8	化合物9
低温硬化性（90℃／2h）	%	62.3	92.3	76.8	92.1	90.8	94.2	94.2	94.4	89.0
		△	○	△	○	○	○	○	○	△
室温での保存安定性	－	1.3	1.7	1.6	1.7	1.7	1.7	1.6	1.4	1.5
		○	△	△	△	△	△	△	○	△
初期粘度	mPa･s	4360	5640	6000	5320	6770	4770	4350	4260	3953
N-N結合エネルギー	kJ/mol	206.6	145.5	173.3	139.2	140.2	127.8	111.4	147.9	174.1

表1－2

	単位	比較例1	比較例2	比較例3	比較例4	比較例5	比較例6	比較例7	比較例8
アミンイミド化合物		化合物A	化合物B	化合物F	化合物G	化合物H	化合物I	化合物C	化合物J
低温硬化性（90℃／2h）	%	64.2	86.2	溶解せず（測定不可）		64.3	49.3	90.0	87.9
		△	△			△	×	○	△
室温での保存安定性	－	1.6	測定不可			2.0	1.6	3.5	2.8
		△	×			×	△	×	×
初期粘度	mPa･s	7330	73000			5640	7250	100000	100000
N-N結合エネルギー	kJ/mol	216.1	174.6	—	242.6	219.6	227.0	187.5	192.7

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.
PCT/JP2008/004016

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER
C08G59/50(2006.01)i, *C07C243/40*(2006.01)i, *C07C271/28*(2006.01)i,
H01L51/50(2006.01)i, *H05B33/04*(2006.01)i

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)
C08G59/50, C07C243/40, C07C271/28, H01L51/50, H05B33/04

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched
Jitsuyo Shinan Koho 1922-1996 Jitsuyo Shinan Toroku Koho 1996-2009
Kokai Jitsuyo Shinan Koho 1971-2009 Toroku Jitsuyo Shinan Koho 1994-2009

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)
CA(STN), 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	JP 53-057258 A (Skeist Laboratories, Inc.), 24 May, 1978 (24.05.78), Claims; example 4 & US 4005055 A	1-15
A	US 3985807 A (ASHLAND OIL INC.), 12 October, 1976 (12.10.76), Claims; table III (Family: none)	1-15
A	JP 10-507753 A (Arqule, Inc.), 28 July, 1998 (28.07.98), Claims; examples; full text & US 5734082 A & US 5892113 A & EP 0789566 A & WO 1996/012482 A1	1-15

☒ 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
"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	Date of mailing of the international search report
26 February, 2009 (26.02.09)	10 March, 2009 (10.03.09)
Name and mailing address of the ISA/ Japanese Patent Office Facsimile No.	Authorized officer Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.
PCT/JP2008/004016

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	WO 2002/051905 A1 (Hitachi Chemical Co., Ltd.), 04 July, 2002 (04.07.02), Claims; examples & JP 3912287 B	1-15
A	JP 10-139748 A (Chugoku Marine Paints, Ltd.), 26 May, 1998 (26.05.98), Claims; Par. No. [0001]; examples (Family: none)	1-15
A	JP 2003-096061 A (Otsuka Chemical Co., Ltd.), 03 April, 2003 (03.04.03), Claims; Par. No. [0003]; examples (Family: none)	1-15
A	JP 2000-229927 A (Three Bond Co., Ltd.), 22 August, 2000 (22.08.00), Claims; Par. No. [0004]; examples (Family: none)	1-15

Claims 1-12

Claim 1 includes all "latent curing agents for ionically polymerizable compounds which agents contain hydroxyl-free amine imide compounds" and have a desired characteristic that the N-N bond energy of the hydroxyl-free amine imide compound falls within a specific range as determined by B3LYP density functional theory method. However, only curing agents containing amine imide compounds having specific structures represented by general formula (1) (in claim 3) wherein R^1 is substituted aryl and R^5 is a carbonyl-bearing organic group are disclosed within the meaning of PCT Article 5, so that the invention of claim 1 lacks support within the meaning of PCT Article 6.

Therefore, search has been made only about latent curing agents which are supported by the description and disclosed therein, namely, about latent curing agents containing specifically disclosed amine imide compounds having structures represented by general formula (1) wherein R^1 is substituted aryl and R^5 is a carbonyl-bearing organic group.

The same applies to the inventions of claims 2-12 referring to claim 1.

国際調査報告

国際出願番号　ＰＣＴ／ＪＰ２００８／００４０１６

Ａ．　発明の属する分野の分類（国際特許分類（ＩＰＣ））

Int.Cl.　C08G59/50(2006.01)i, C07C243/40(2006.01)i, C07C271/28(2006.01)i, H01L51/50(2006.01)i, H05B33/04(2006.01)i

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））

Int.Cl.　C08G59/50, C07C243/40, C07C271/28, H01L51/50, H05B33/04

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	１９７１－２００９年
日本国実用新案登録公報	１９９６－２００９年
日本国登録実用新案公報	１９９４－２００９年

国際調査で使用した電子データベース（データベースの名称、調査に使用した用語）

CA(STN), 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	関連する請求の範囲の番号
A	JP 53-057258 A (スケイスト・ラボラトリイーズ・インコーポレーテイツド) 1978.05.24, 特許請求の範囲、実施例４ & US 4005055 A	1-15
A	US 3985807 A (ASHLAND OIL INC) 1976.10.12, 特許請求の範囲、ＴＡＢＬＥ　ＩＩＩ（ファミリーなし）	1-15
A	JP 10-507753 A (アーキュール、インコーポレーテッド) 1998.07.28, 特許請求の範囲、実施例及び全文 & US 5734082 A & US 5892113 A & EP 0789566 A & WO 1996/012482 A1	1-15

☑　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、一般的技術水準を示すもの
「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矛盾するものではなく、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 ２６．０２．２００９	国際調査報告の発送日 １０．０３．２００９
国際調査機関の名称及びあて先 日本国特許庁（ＩＳＡ／ＪＰ） 郵便番号１００－８９１５ 東京都千代田区霞が関三丁目４番３号	特許庁審査官（権限のある職員）　４Ｊ　３３４６ 松岡　弘子 電話番号　０３－３５８１－１１０１　内線　３４５７

Ｃ（続き）．　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	関連する請求の範囲の番号
A	WO 2002/051905 A1（日立化成工業株式会社）2002.07.04, 特許請求の範囲、実施例 & JP 3912287 B	1-15
A	JP 10-139748 A（中国塗料株式会社）1998.05.26, 特許請求の範囲、段落番号【０００１】、実施例（ファミリーなし）	1-15
A	JP 2003-096061 A（大塚化学株式会社）2003.04.03, 特許請求の範囲、段落番号【０００３】、実施例（ファミリーなし）	1-15
A	JP 2000-229927 A（株式会社スリーボンド）2000.08.22, 特許請求の範囲、段落番号【０００４】、実施例（ファミリーなし）	1-15

・請求の範囲１～１２

請求の範囲１には、イオン重合性化合物を硬化させる潜在性硬化剤であって、水酸基を有しないアミンイミド化合物を含み、アミンイミド化合物のＢ３ＬＹＰ密度汎関数法によりＮ－Ｎ結合エネルギーが特定の範囲であるという所望の特性を有するあらゆる「水酸基を有しないアミンイミド化合物を含有する潜在性硬化剤」を包含するものであるが、PCT 第 5 条の意味において開示されているのは、明細書に記載された特定の構造である一般式（１）（請求の範囲３）を備え、かつR^1が置換基を有するアリール基であり、R^5がカルボニル基を有する有機基であるアミンイミド化合物のみであり、PCT 第 6 条の意味での裏付けを欠いている。

したがって、調査は、明細書に裏付けられ、開示されている範囲、すなわち、明細書に具体的に開示されている一般式（１）の構造式を有し、かつR^1が置換基を有するアリール基であり、R^5がカルボニル基を有する有機基であるアミンイミド化合物を含む潜在性硬化剤についてのみ行った。

請求の範囲１を引用する請求の範囲２～１２に係る発明についても同様である。