

(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
2022年1月20日(20.01.2022)



(10) 国際公開番号

WO 2022/014646 A1

(51) 国際特許分類:

C07D 295/32 (2006.01) C09K 3/10 (2006.01)
C08G 59/50 (2006.01) H01L 23/29 (2006.01)
C09J 11/06 (2006.01) H01L 23/31 (2006.01)
C09J 161/30 (2006.01)

(21) 国際出願番号: PCT/JP2021/026500

(22) 国際出願日: 2021年7月14日(14.07.2021)

(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 2020-121122 2020年7月15日(15.07.2020) JP

(71) 出願人: 旭化成株式会社 (ASAHI KASEI
KABUSHIKI KAISHA) [JP/JP]; 〒1000006 東京
都千代田区有楽町一丁目1番2号 Tokyo (JP).

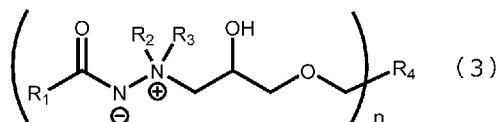
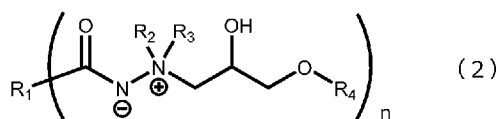
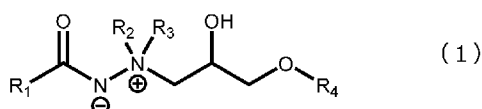
(72) 発明者: 上村 直弥 (KAMIMURA, Naoya);
〒1000006 東京都千代田区有楽町一丁目
1番2号 旭化成株式会社内 Tokyo (JP).
山田 輝久 (YAMADA, Teruhisa); 〒1000006 東京
都千代田区有楽町一丁目1番2号 旭
化成株式会社内 Tokyo (JP).

(74) 代理人: 稲葉 良幸, 外 (INABA, Yoshiyuki et al.);
〒1066123 東京都港区六本木6-10-
1 六本木ヒルズ森タワー23階 T M I
総合法律事務所 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, BN, BR, BW, BY, BZ, CA, CH,
CL, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DJ, DK, DM, DO, DZ,
EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, GT, HN,
HR, HU, ID, IL, IN, IR, IS, IT, JO, JP, KE, KG, KH,

(54) Title: AMINEIMIDE COMPOUND, AMINEIMIDE COMPOSITION, CURING AGENT, EPOXY RESIN COMPOSITION, METHOD FOR PRODUCING AMINEIMIDE COMPOUND, ENCAPSULANT, AND ADHESIVE

(54) 発明の名称: アミンイミド化合物、アミンイミド組成物、硬化剤、エポキシ樹脂組成物、アミンイミド化合物の製造方法、封止材、及び接着剤



(57) Abstract: Provided is an amineimide compound having excellent permeability, excellent curability, and storage stability. An amineimide compound represented by formula (1), (2), or (3). (In formulae (1)-(3), R₁s each independently represent a hydrogen atom, or a monovalent or n-valent C1-15 organic group which may have a hydroxyl group, a carbonyl group, an ester bond, or an ether bond, R₂ and R₃ each independently represent an unsubstituted or substituted C1-12 alkyl group, aryl group, aralkyl group, or a C7 or less heterocycle in which R₂ and R₃ are linked, R₄s each independently represent a hydrogen atom, or a monovalent or n-valent C1-30 organic group which may contain an oxygen atom, and n represents an integer of 1-3.)

KN, KP, KR, KW, KZ, LA, LC, LK, LR, LS, LU, LY,
MA, MD, ME, MG, MK, MN, MW, MX, MY, MZ,
NA, NG, NI, NO, NZ, OM, PA, PE, PG, PH, PL, PT,
QA, RO, RS, RU, RW, SA, SC, SD, SE, SG, SK, SL,
ST, SV, SY, TH, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG,
US, UZ, VC, VN, WS, ZA, ZM, ZW.

- (84) 指定国(表示のない限り、全ての種類の広域保護が可能): ARIPO (BW, GH, GM, KE, LR, LS, MW, MZ, NA, RW, SD, SL, ST, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), ユーラシア (AM, AZ, BY, KG, KZ, RU, TJ, TM), ヨーロッパ (AL, AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HR, HU, IE, IS, IT, LT, LU, LV, MC, MK, MT, NL, NO, PL, PT, RO, RS, SE, SI, SK, SM, TR), OAPI (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, KM, ML, MR, NE, SN, TD, TG).

添付公開書類：

- 一 国際調査報告（条約第21条(3)）

(57) 要約：浸透性に優れ、優れた硬化性と保存安定性を有するアミンイミド化合物を提供する。【解決手段】下記式（１）、（２）又は（３）で表される、アミンイミド化合物。（式（１）～（３）中、 R_1 は、各々独立して、水素原子、又は、水酸基、カルボニル基、エステル結合、若しくはエーテル結合を有していてもよい、炭素数１～１５の、１価又は n 価の有機基を表し、 R_2 及び R_3 は、各々独立して、未置換又は置換基を有する、炭素数１～１２のアルキル基、アリール基、アラルキル基、又は R_2 及び R_3 が連結した炭素数７以下のヘテロ環を表し、 R_4 は、各々独立して、水素原子、又は、酸素原子を含んでもよい、炭素数１～３０の、１価又は n 価の有機基を表し、 n は１～３の整数を表す。）

明 細 書

発明の名称：

アミンイミド化合物、アミンイミド組成物、硬化剤、エポキシ樹脂組成物、アミンイミド化合物の製造方法、封止材、及び接着剤

技術分野

[0001] 本発明は、アミンイミド化合物、アミンイミド組成物、硬化剤、エポキシ樹脂組成物、アミンイミド化合物の製造方法、封止材、及び接着剤に関する。

背景技術

[0002] エポキシ樹脂は、その硬化物が、機械的特性、電気的特性、熱的特性、耐薬品性、接着性等の点で優れた性能を有することから、従来から、塗料、電気電子用絶縁材料、接着剤等の幅広い用途に利用されている。

現在一般的に使用されているエポキシ樹脂組成物は、使用時にエポキシ樹脂と硬化剤の二液を混合する、いわゆる二液性エポキシ樹脂組成物である。

[0003] 二液性エポキシ樹脂組成物は、室温で硬化し得る反面、エポキシ樹脂と硬化剤を別々に保管し、使用の都度、計量、混合する必要があるため、保管や取り扱いが煩雑であり、さらには、可使用時間が限られているため、予め大量に混合しておくことができない、という問題点を有している。

[0004] 上述したような二液性エポキシ樹脂組成物の問題点を解決する目的で、これまでいくつかの一液性エポキシ樹脂組成物が提案されてきている（例えば、特許文献1～3参照）。例えば、潜在性硬化剤を、エポキシ樹脂に配合したエポキシ樹脂組成物が挙げられる。

[0005] また、昨今の電子デバイス機器に対する要求は、小型化、高機能化、軽量化、高機能化、多機能化、と多岐に亘っており、例えば半導体のチップの実装技術においても電極パッドとパッドピッチのファインピッチ化による一層の微細化、小型化、高密度化が求められている。そのため、チップと基板の隙間に用いる接着剤としてのアンダーフィルには、より狭いギャップに浸透

することが求められている。

先行技術文献

特許文献

[0006] 特許文献1：特許第6 2 8 2 5 1 5号公報

特許文献2：特開2 0 0 3－9 6 0 6 1号公報

特許文献3：特開2 0 0 0－2 2 9 9 2 7号公報

発明の概要

発明が解決しようとする課題

[0007] 一液性エポキシ樹脂組成物を構成する潜在性硬化剤には、エポキシ樹脂と混合した後の良好な硬化性と保存安定性の両立が求められており、さらには電子部材の狭ギャップ部位や炭素繊維やガラス繊維等の密集繊維間への良好な浸透性も求められているが、未だこれらの特性を満足する潜在性硬化剤は得られていない。

[0008] 例えば、特許文献1には、硬化剤としてイミダゾールをアクリレートで変性した液状ビスイミダゾール化合物が開示されているが、保存安定性には改善の余地がある、という問題点を有している。

また、特許文献2には、1－アミノピロリジンを用いたアミンイミド化合物が開示されているが、固体であるため常温での浸透性に劣る、という問題点を有している。

さらに、特許文献3には、液状のアミンイミド化合物が開示されているが、自己反応性物質かつ毒物に指定されている1, 1－ジメチルヒドラジンを原料に用いているため、取り扱いが容易ではないという問題点を有している。

[0009] そこで、本発明においては、上述した従来技術の問題点に鑑み、浸透性に優れ、優れた硬化性と保存安定性を有するアミンイミド系化合物を提供することを目的とする。

課題を解決するための手段

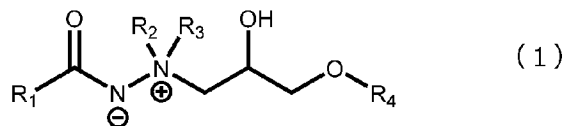
[0010] 本発明者らは鋭意検討した結果、特定構造のアミンイミド化合物が、浸透性、硬化性、保存安定性に優れていることを見出し、本発明を完成するに至った。

すなわち、本発明は以下のとおりである。

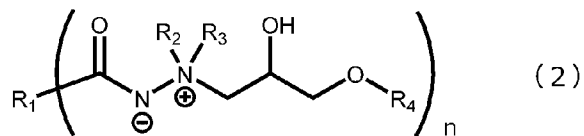
[0011] [1]

下記式(1)、(2)又は(3)で表される、アミンイミド化合物。

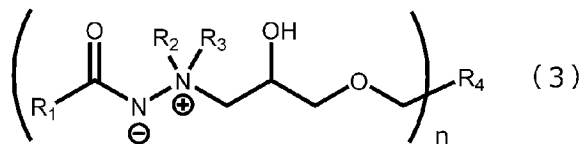
[0012] [化1]



[0013] [化2]



[0014] [化3]



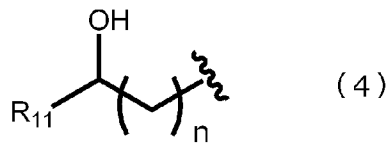
[0015] (式(1)～(3)中、 R_1 は、各々独立して、水素原子、又は、水酸基、カルボニル基、エステル結合、若しくはエーテル結合を有していてもよい、炭素数1～15の、1価又は n 価の有機基を表し、 R_2 及び R_3 は、各々独立して、未置換又は置換基を有する、炭素数1～12のアルキル基、アリール基、アラルキル基、又は R_2 及び R_3 が連結した炭素数7以下のヘテロ環を表し、 R_4 は、各々独立して、水素原子、又は、酸素原子を含んでもよい、炭素数1～30の、1価又は n 価の有機基を表し、 n は1～3の整数を表す。)

[0016] [2]

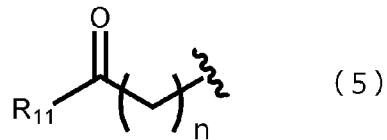
前記式(1)又は(3)における前記 R_1 が、下記式(4)又は(5)、で表される基である、前記[1]に記載のアミンイミド化合物。

[0017]

[化4]



[0018] [化5]



[0019] (式(4)、(5)中、 R_{11} は、各々独立して、炭素数1～5のアルキル基、炭素数1～5のアルコキシ基、アリール基、又は、炭素数7～9のアラルキル基を表し、 n は、各々独立して、0～6の整数を示す。)

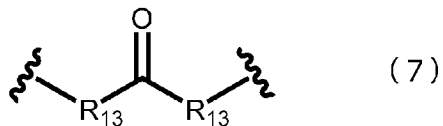
[0020] [3]

前記式(2)における前記 R_1 が、下記式(6)又は(7)、で表される基である、前記[1]に記載のアミンイミド化合物。

[0021] [化6]



[0022] [化7]



[0023] (式(6)、(7)中、 R_{12} 及び R_{13} は、各々独立して、単結合、炭素数1～5のアルキル基、アリール基、又は、炭素数7～9のアラルキル基を表す。)

[0024] [4]

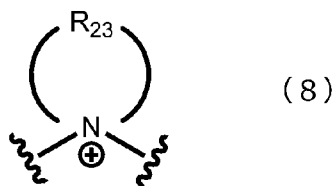
R_2 及び R_3 の少なくとも一方が、アラルキル基を表す、前記[1]乃至[3]のいずれかーに記載のアミンイミド化合物。

[5]

R_2 及び R_3 が連結した炭素数7以下のヘテロ環が、下記式(8)で表される

、 R_{23} と式（１）、（２）又は（３）中の N^+ により形成されるヘテロ環である
、前記〔１〕乃至〔３〕のいずれかに記載のアミンイミド化合物。

[0025] [化8]



[0026] （式（８）中、 R_{23} は、 N^+ とともに、ヘテロ環構造を形成する基を表す。）

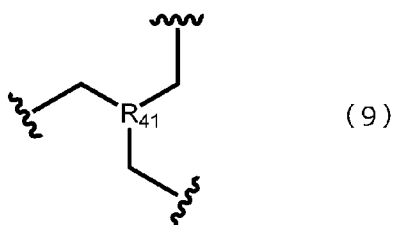
[0027] [６]

前記式（１）又は（２）における前記 R_4 が、直鎖状若しくは分岐状の炭素数３～１２のアルキル基、又は、直鎖状若しくは分岐状の炭素数３～６のアルケニル基である、前記〔１〕乃至〔５〕のいずれかに記載のアミンイミド化合物。

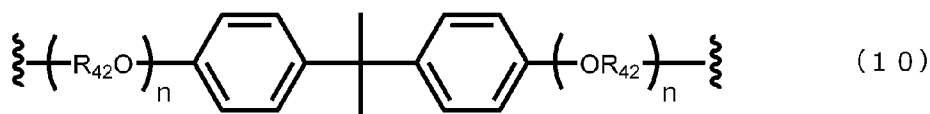
[７]

前記式（３）における前記 R_4 が、下記式（９）又は（１０）、で表される基である、前記〔１〕乃至〔５〕のいずれかに記載のアミンイミド化合物。

[0028] [化9]



[0029] [化10]



[0030] （式（９）、（１０）中、 R_{41} 及び R_{42} は、各々独立して、炭素数１～５のアルキル基、アリール基、又は、アラルキル基を表し、 n は、各々独立して、０～１０の整数を示す。）

[0031] [8]

前記アミンイミド化合物が、前記式(2)又は(3)で表され、 n は2又は3である、前記[1]乃至[7]のいずれかに記載のアミンイミド化合物。

[9]

前記アミンイミド化合物が、前記式(2)又は(3)で表され、 n は2である、前記[1]乃至[7]のいずれかに記載のアミンイミド化合物。

[10]

25℃における粘度が1300Pa・s以下である、前記[1]乃至[9]のいずれかに記載のアミンイミド化合物。

[11]

示差熱分析におけるN-N結合の分解に係る発熱ピークの頂点温度(T_{peak})と立ち上がり温度(T_{onset})との差($T_{peak} - T_{onset}$)が、45℃以下である、前記[1]乃至[10]のいずれかに記載のアミンイミド化合物。

[12]

前記[1]乃至[11]のいずれかに記載のアミンイミド化合物を複数含む、アミンイミド組成物。

[13]

前記式(1)及び前記式(3)で表されるアミンイミド化合物を含む、前記[12]に記載のアミンイミド組成物。

[14]

前記[1]乃至[10]のいずれかに記載のアミンイミド化合物、又は、前記[12]、若しくは[13]に記載のアミンイミド組成物を含む、硬化剤。

[15]

エポキシ樹脂(α)と、

前記[14]に記載の硬化剤(β)と、

を、含む、

エポキシ樹脂組成物。

〔16〕

前記硬化剤（ β ）の含有量が、前記エポキシ樹脂（ α ）100質量部に対して、1～50質量部である、前記〔15〕に記載のエポキシ樹脂組成物。

〔17〕

酸無水物系硬化剤（ γ ）をさらに含む、前記〔15〕又は〔16〕に記載のエポキシ樹脂組成物。

〔18〕

前記〔1〕乃至〔11〕のいずれかに記載のアミンイミド化合物、又は前記〔12〕若しくは〔13〕に記載のアミンイミド組成物中のアミンイミド化合物の製造方法であって、

カルボン酸エステル化合物（A）、ヒドラジン化合物（B）、及びグリシジルエーテル化合物（C）を反応させる反応工程を有する、

アミンイミド化合物の製造方法。

〔19〕

前記〔15〕乃至〔17〕のいずれかに記載のエポキシ樹脂組成物の硬化物である封止材。

〔20〕

前記〔15〕に記載のエポキシ樹脂組成物を含み、前記硬化剤（ β ）が、前記式（3）で表されるアミンイミド化合物を含む、接着剤。

発明の効果

〔0032〕 本発明によれば、浸透性に優れ、優れた硬化性と保存安定性を有する潜在性硬化剤を提供することができる。

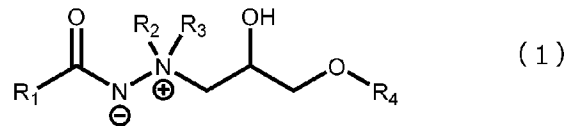
発明を実施するための形態

〔0033〕 以下、本発明を実施するための形態（以下、単に「本実施形態」という。）について詳細に説明する。本実施形態は、本発明を説明するための例示であり、本発明を以下の内容に限定する趣旨ではない。本発明はその趣旨の範囲内で適宜に変形して実施できる。

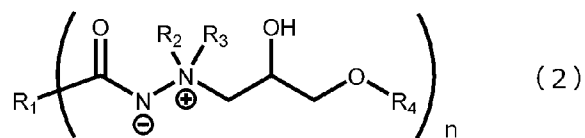
[0034] [アミンイミド化合物]

本実施形態のアミンイミド化合物は、下記式（１）、（２）又は（３）で表される。

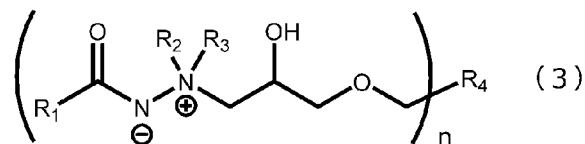
[0035] [化11]



[0036] [化12]



[0037] [化13]

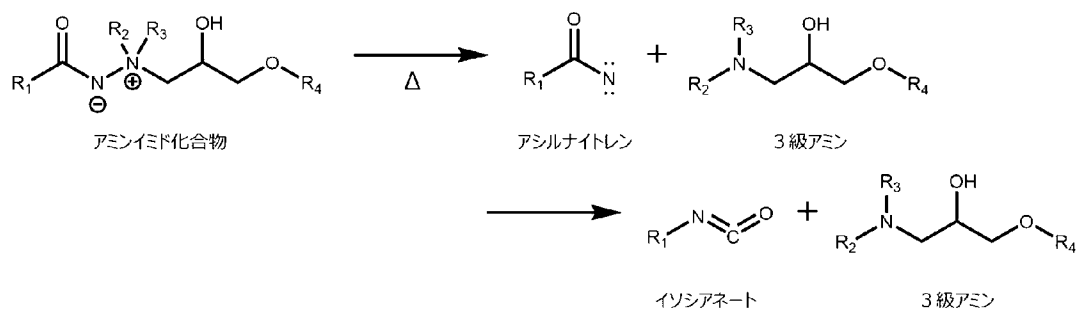


[0038] （式（１）～（３）中、 R_1 は、各々独立して、水素原子、又は、水酸基、カルボニル基、エステル結合、若しくはエーテル結合を有していてもよい、炭素数１～１５の、１価又は n 価の有機基を表し、 R_2 及び R_3 は、各々独立して、未置換又は置換基を有する、炭素数１～１２のアルキル基、アリール基、アラルキル基、又は R_2 及び R_3 が連結した炭素数７以下のヘテロ環を表し、 R_4 は、各々独立して、水素原子、又は、酸素原子を含んでもよい、炭素数１～３０の、１価又は n 価の有機基を表し、 n は１～３の整数を表す。）

[0039] 本実施形態のアミンイミド化合物は、アミンイミド化合物の状態では硬化性能を有する置換基が存在しないため、室温においてエポキシ樹脂と相溶させてもエポキシ基との付加反応は起こらない。しかし、以下の反応式で表されるように、加熱することで $\text{N}-\text{N}$ 結合が開裂し、アシルナイトレンと３級アミンを生じる。さらにアシルナイトレンは１，２－転移反応によりイソシアネートとなる。ここで生成したイソシアネートと３級アミンは硬化性能を有しており、エポキシ基と付加反応を起こして硬化に至る。すなわち、本実

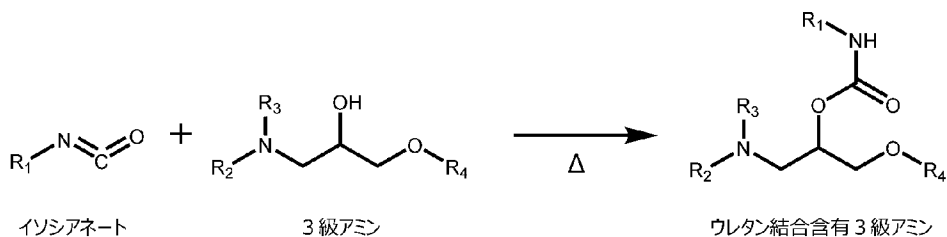
施形態のアミンイミド化合物は、潜在性硬化剤として機能する。

[0040] [化14]



[0041] また、本実施形態のアミンイミド化合物は、水酸基を有しているため、以下の反応式で表されるように、加熱により生成したイソシアネートと3級アミンの付加反応が起こり、1分子中に3級アミンとウレタン結合を有する構造へと変化する。この構造はイソシアネートと3級アミンより優れた硬化性能を有するため、本実施形態のアミンイミド化合物は優れた硬化性能を有する潜在性硬化剤として機能する。

[0042] [化15]



[0043] なお、式(2)で表される化合物は、 n 個の結合基 R_1 により式(1)で表される化合物が連結された化合物であり、式(3)で表される化合物は、 n 個の結合基 R_4 により式(1)で表される化合物が連結された化合物である。式(2)で表される化合物の場合、加熱により、 n 個のイソシアネート化合物と1個の三級アミンを生成し、式(3)で表される化合物の場合、加熱により、1個のイソシアネート化合物と n 個の三級アミンを生成する。

[0044] 本実施形態のアミンイミド化合物のN-N結合の分解温度の頂点温度(T_{peak})は、好ましくは100℃以上250℃以下であり、より好ましくは100℃以上220℃以下であり、さらに好ましくは100℃以上200℃以下で

あり、さらにより好ましくは 100°C 以上 180°C 以下である。

T_{peak} が 100°C 以上であることにより、保存安定性がより向上する傾向にある。また、 T_{peak} が 250°C 以下であることにより、アミンイミド化合物の硬化性能がより向上する傾向にある。なお、ここで、N-N結合の分解温度の頂点温度(T_{peak})とは、N-N結合の分解に係る発熱ピークの頂点温度であって、示差熱分析における発熱ピークのピーク温度をいう。

[0045] また、本実施形態のアミンイミド化合物のN-N結合の分解温度の立ち上がり温度(T_{onset})は、好ましくは 80°C 以上 200°C 以下であり、より好ましくは 80°C 以上 185°C 以下であり、さらに好ましくは 80°C 以上 170°C 以下であり、さらにより好ましくは 80°C 以上 160°C 以下である。

T_{onset} が 80°C 以上であることにより、保存安定性がより向上する傾向にある。また、 T_{onset} が 200°C 以下であることにより、アミンイミド化合物の硬化性能がより向上する傾向にある。なお、ここで、N-N結合の分解温度の立ち上がり温度(T_{onset})とは、示差熱分析における発熱ピークの立ち上がり温度をいう。より具体的には、発熱ピークの立ち上がり部分の最大傾斜の接線と、基線（ベースライン）の外挿線との交点を立ち上がり温度(T_{onset})とする。

[0046] 前記頂点温度(T_{peak})と前記立ち上がり温度(T_{onset})の差($T_{\text{peak}} - T_{\text{onset}}$)は、好ましくは 45°C 以下であり、より好ましくは 40°C 以下であり、さらに好ましくは 35°C 以下であり、さらにより好ましくは 30°C 以下である。差($T_{\text{peak}} - T_{\text{onset}}$)が 45°C 以下であることにより、加熱によるN-N結合の分解が速やかに進行し、硬化反応の反応急峻性がより向上する傾向にある。また、差($T_{\text{peak}} - T_{\text{onset}}$)の下限は、特に制限されないが、好ましくは 5°C 以上であり、より好ましくは 10°C 以上であり、さらに好ましくは 15°C 以上である。

[0047] 頂点温度(T_{peak})、立ち上がり温度(T_{onset})、及び差($T_{\text{peak}} - T_{\text{onset}}$)は、本実施形態のアミンイミド化合物の官能基を調整することにより制御することができる。例えば、 R_1 は、N-N結合の開裂の低エネルギー化に寄与し

、 R_2 及び R_3 は、立体障害による不安定化による開裂反応の低エネルギー化に寄与しやすい傾向にある。したがって、後述する R_1 、 R_2 及び R_3 として、硬化性能の向上に寄与する基やそれ以外の基を適宜組み合わせて用いることにより、これら温度を制御することができる。

[0048] 本実施形態のアミンイミド化合物は、常温において液状の化合物であることが好ましい。

本実施形態においては、常温において液状であることを表す指標として、 25°C における粘度を用いることができる。本実施形態のアミンイミド化合物の 25°C における粘度は、 $1300\text{Pa}\cdot\text{s}$ 以下であることが好ましく、より好ましくは $900\text{Pa}\cdot\text{s}$ 以下であり、さらに好ましくは $800\text{Pa}\cdot\text{s}$ 以下であり、さらにより好ましくは $700\text{Pa}\cdot\text{s}$ 以下である。

なお、 25°C における粘度の下限値は特に制限されないが、 $0.01\text{Pa}\cdot\text{s}$ 以上であることが好ましい。

本実施形態のアミンイミド化合物が常温において液状の化合物であり、特に、 25°C における粘度が $1300\text{Pa}\cdot\text{s}$ 以下であることにより、エポキシ樹脂組成物への溶解性や分散性、基材等への浸透性がより向上する。

なお、本実施形態のアミンイミド化合物の粘度は、式(1)～式(3)中の R_1 ～ R_4 の官能基を調整することにより、上記数値範囲に制御できる。

[0049] 式(1)、(2)又は(3)における、 R_1 は、N-N結合の開裂の低エネルギー化に寄与し、 R_2 及び R_3 は、立体障害による不安定化による開裂反応の低エネルギー化に寄与し、 R_4 は、化合物の液状化、得られる硬化物のガラス転移温度の低下の抑制に寄与すると考えられるが、特に制限されない。以下、各基の詳細について説明する。

[0050] 式(1)、(2)及び(3)中、 R_1 は、各々独立して、水素原子、又は、水酸基、カルボニル基、エステル結合、若しくはエーテル結合を有していてもよい、炭素数1～15の、1価又はn価の有機基を表す。このような有機基としては、特に制限されないが、例えば、炭化水素基、炭化水素基中の炭素原子に結合した水素原子が、水酸基又はカルボニル基により置換された基

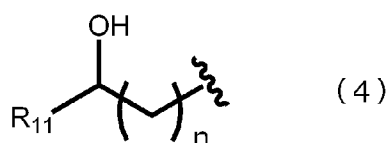
、又は、炭化水素基を構成する炭素原子の一部がエステル結合やエーテル結合に置き換えられた基が挙げられる。このような炭化水素基としては、メチル基、エチル基、プロピル基、ブチル基、ペンチル基、ヘキシル基、ヘプチル基、オクチル基、エチルヘキシル基等の直鎖状、分岐状、又は環状のアルキル基；ビニル基、プロピニル基、ブチニル基、ペンチニル基、ヘキシニル基、オクチニル基、デシニル基、ドデシニル基、ヘキサデシニル基、オクタデシニル基等のアルケニル基；フェニル基等アリール基；又は、メチルフェニル基、エチルフェニル基、プロピルフェニル基等のアルキル基とフェニル基の組み合わせからなるアラルキル基が挙げられる。

[0051] また、 R_1 で表される有機基は、その他置換基を有してもよい。置換基としては、特に制限されないが、例えば、ハロゲン原子、アルコキシ基、カルボニル基、シアノ基、アゾ基、アジ基、チオール基、スルホ基、ニトロ基、ヒドロキシ基、アシル基、アルデヒド基が挙げられる。

[0052] R_1 が表す有機基の炭素数は1～15であり、好ましくは1～12であり、より好ましくは1～7である。 R_1 が表す有機基の炭素数が上記範囲内であることにより、上記粘度を充足する液状のアミンイミド化合物が得られやすく、またアミンイミド化合物の硬化性能がより向上する傾向にある。また、 R_1 が表す有機基の炭素数が上記範囲内であることにより、原料の入手容易性がより向上する。

[0053] 上記の中でも、式(1)又は(3)における R_1 は、下記式(4)又は(5)、で表される基であることが好ましい。このような基を有することにより、上記粘度を充足する液状のアミンイミド化合物が得られやすく、またアミンイミド化合物の硬化性能がより向上する傾向にある。

[0054] [化16]



[0055]

[化17]



[0056] (式(4)、(5)中、 R_{11} は、各々独立して、炭素数1～5のアルキル基、炭素数1～5のアルコキシ基、アリール基、又は、炭素数7～9のアラルキル基を表し、 n は、各々独立して、0～6の整数を示す。)

[0057] 上記の中でも、式(5)において n が0又は1である基が好ましい。これにより、式(1)又は(3)で表される化合物は、 $\text{R}_1-\text{C}(=\text{O})-$ 構造中に、ジケトン構造を有する。このようなジケトン構造は、アミンイミド化合物の硬化性能をより向上させる傾向にある。

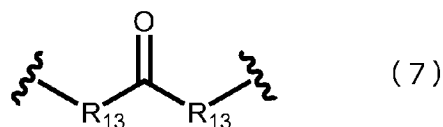
[0058] なお、式(4)又は(5)における R_{11} の炭素数と n は、式(4)又は(5)で表される基の炭素数の最大値が15を超えないように調整される。

[0059] また、式(2)における R_1 は、下記式(6)又は(7)、で表される基であることが好ましい。このような基を有することにより、上記粘度を充足する液状のアミンイミド化合物が得られやすく、またアミンイミド化合物の硬化性能がより向上する傾向にある。

[0060] [化18]



[0061] [化19]



[0062] (式(6)、(7)中、 R_{12} 及び R_{13} は、各々独立して、単結合、炭素数1～5のアルキル基、アリール基、又は、炭素数7～9のアラルキル基を表す。)

[0063] 上記の中でも、式(7)において R_{13} は単結合又はメチル基が好ましい。こ

れにより、式（２）で表される化合物は、 $R_1-C(=O)-$ 構造中に、ジケトン構造を有する。このようなジケトン構造は、アミンイミド化合物の硬化性能をより向上させる傾向にある。

[0064] 式（１）、（２）及び（３）中、 R_2 及び R_3 は、各々独立して、未置換又は置換基を有する、炭素数１～１２のアルキル基、アリール基、アラルキル基、又は R_2 及び R_3 が連結した炭素数７以下のヘテロ環を表す。

[0065] R_2 又は R_3 で表される炭素数１～１２のアルキル基としては、特に限定されないが、例えば、メチル基、エチル基、プロピル基、 n -ブチル基、 n -ペンチル基、 n -ヘキシル基、 n -オクチル基、 n -デシル基、 n -ドデシル基等の直鎖状アルキル基；イソプロピル基、イソブチル基、 t -ブチル基、ネオペンチル基、２-ヘキシル基、２-オクチル基、２-デシル基、２-ドデシル基等の分岐状アルキル基；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、シクロオクチル基、シクロデシル基、シクロドデシル基等の環状アルキル基が挙げられる。また、上記アルキル基は、直鎖状アルキル基又は分岐状アルキル基と環状アルキル基とを組み合わせたものであってもよい。さらに、上記アルキル基は、不飽和結合基を含んでもよい。

[0066] R_2 又は R_3 で表されるアルキル基の炭素数は、各々独立して、１～１２であり、好ましくは２～１０であり、より好ましくは５～１０である。非対称ジアルキルヒドラジンのアルキル基の炭素数が少ないジメチルヒドラジンなどの化合物は、爆発などの危険の他、人体への有毒性があるが、 R_2 又は R_3 で表されるアルキル基の炭素数を２以上とすることにより、このような毒性等のリスクのある原料の使用を回避することができる。また、 R_2 又は R_3 で表されるアルキル基の炭素数を５以上とすることにより、上記粘度を充足する液状のアミンイミド化合物が得られやすく、またアミンイミド化合物の硬化性能がより向上する傾向にある。

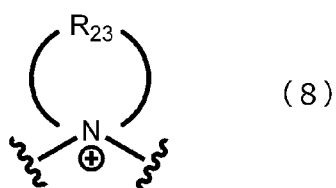
[0067] また、 R_2 又は R_3 で表されるアリール基としては、特に制限されないが、例えば、フェニル基、ナフチル基が挙げられる。さらに、 R_2 又は R_3 で表される

アラルキル基としては、特に制限されないが、例えば、メチルフェニル基、エチルフェニル基、メチルナフチル基、ジメチルナフチル基が挙げられる。このなかでも、 R_2 及び R_3 は、少なくとも一方がアラルキル基であることが好ましく、メチルフェニル基（ベンジル基）がより好ましい。これにより、アミンイミド化合物の硬化性能がより向上する傾向にある。なお、 R_2 又は R_3 で表されるアリール基及びアラルキル基の炭素数は、特に制限されないが、6～20であることが好ましい。

[0068] R_2 又は R_3 で表されるアルキル基、アリール基、又はアラルキル基の置換基としては、特に制限されないが、例えば、ハロゲン原子、アルコキシ基、カルボニル基、シアノ基、アゾ基、アジ基、チオール基、スルホ基、ニトロ基、ヒドロキシ基、アシル基、アルデヒド基が挙げられる。

[0069] R_2 及び R_3 は、連結して炭素数7以下のヘテロ環を構成してもよい。このようなヘテロ環としては、特に制限されないが、例えば、下記式(8)で表される、 R_{23} と式(1)、(2)又は(3)中の N^+ により形成されるヘテロ環が挙げられる。なお、 R_{23} は、 R_2 及び R_3 が連結した基を示す。

[0070] [化20]



[0071] (式(8)中、 R_{23} は、 N^+ とともに、ヘテロ環構造を形成する基を表す。)

[0072] R_{23} と N^+ とが形成するヘテロ環としては、特に制限されないが、例えば、アゼチジン環等の4員環；ピロリジン環、ピロール環、モルホリン環、チアジン環等の5員環；ピペリジン環等の6員環；ヘキサメチレンイミン環、アゼピン環等の7員環等が挙げられる。

[0073] このなかでも、ヘテロ環としては、ピロール環、モルホリン環、チアジン環、ピペリジン環、ヘキサメチレンイミン環、アゼピン環が好ましく、6員環及び7員環がより好ましい。このような基を有することにより、上記粘度

を充足する液状のアミンイミド化合物が得られやすく、またアミンイミド化合物の硬化性能がより向上する傾向にある。

[0074] また、置換基としては、特に限定されないが、例えば、アルキル基、アリール基、又は上述した R_2 及び R_3 における置換基が挙げられる。さらに、ヘテロ環が置換基としてアルキル基を有する場合、 N^+ に隣接する炭素原子に結合したメチル基などを例示することができる。

[0075] 式(1)、(2)及び(3)中、 R_4 は、水素原子、又は、酸素原子を含んでもよい、炭素数1～30の、1価又は n 価の有機基を表す。このような有機基としては、特に制限されないが、例えば、炭化水素基、炭化水素基中の炭素原子に結合した水素原子が、水酸基、カルボニル基、又はケイ素原子を含む基により置換された基、又は、炭化水素基を構成する炭素原子の一部がエステル結合やエーテル結合、ケイ素原子に置き換えられた基が挙げられる。このような炭化水素基としては、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、エチルヘキシル基等の直鎖状、分岐状、又は環状のアルキル基；ビニル基、プロピニル基、ブチニル基、ペンチニル基、ヘキシニル基、オクチニル基、デシニル基、ドデシニル基、ヘキサデシニル基、オクタデシニル基等のアルケニル基；フェニル基等のアリール基；又は、メチルフェニル基、エチルフェニル基、プロピルフェニル基等のアルキル基とフェニル基の組み合わせからなるアラルキル基が挙げられる。

[0076] また、 R_4 で表される炭化水素基には、ビスフェノールA型骨格、ビスフェノールAP型骨格、ビスフェノールB型骨格、ビスフェノールC型骨格、ビスフェノールE型骨格、ビスフェノールF型骨格などのビスフェノール骨格が含まれる。ビスフェノール骨格を含む有機基としては、特に制限されないが、例えば、各ビスフェノール骨格の水酸基にポリオキシアルキレン基が付加した基が挙げられる。

[0077] これらのなかでも、式(1)又は(2)における R_4 で表される有機基は、アルキル基、アルケニル基、アラルキル基が好ましく、アルキル基、アルケ

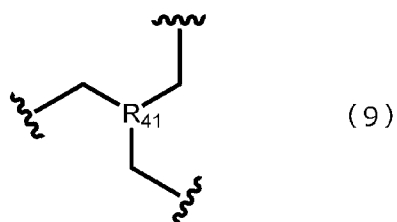
ニル基がより好ましく、分岐状アルキル基及び分岐状アルケニル基がさらに好ましい。なお、これら好ましい基は置換基を有してもよい。このような基を有することにより、上記粘度を充足する液状のアミンイミド化合物が得られやすく、またアミンイミド化合物の硬化性能がより向上する傾向にある。また、アミンイミド化合物を用いて得られる硬化物のT_gがより向上する傾向にある。

[0078] R₄が表す有機基の炭素数は、上述したように1～30であり、好ましくは1～20であり、より好ましくは1～15であり、さらに好ましくは1～8である。R₄が表す有機基の炭素数が前記範囲内であることにより、前記粘度を充足する液状のアミンイミド化合物が得られやすく、またアミンイミド化合物の硬化性能がより向上する傾向にある。また、アミンイミド化合物を用いて得られる硬化物のT_gがより向上し、さらに、R₄が表す有機基の炭素数が上記範囲内であることにより、原料の入手容易性がより向上する。

[0079] 上記の中でも、式(1)又は(2)におけるR₄は、直鎖状若しくは分岐状の炭素数3～12のアルキル基、又は、直鎖状若しくは分岐状の炭素数3～6のアルケニル基が好ましい。このような基を有することにより、上記粘度を充足する液状のアミンイミド化合物が得られやすく、またアミンイミド化合物の硬化性能がより向上する傾向にある。

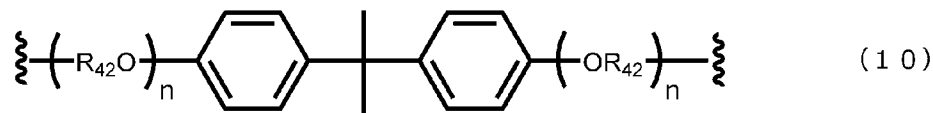
[0080] また、式(3)におけるR₄は、下記式(9)又は(10)で表される基であることが好ましい。このような基を有することにより、上記粘度を充足する液状のアミンイミド化合物が得られやすく、またアミンイミド化合物の硬化性能がより向上する傾向にある。

[0081] [化21]



[0082]

[化22]



[0083] (式(9)、(10)中、 R_{41} 及び R_{42} は、各々独立して、炭素数1～5のアルキル基、アリール基、又は、アラルキル基を表し、 n は、各々独立して、0～10の整数を示す。)

[0084] 本実施形態のアミンイミド化合物は、前記式(2)又は(3)で表され、式(2)又は(3)中の n が2又は3であることが好ましく、 n が2であることがより好ましい。これにより、硬化性の向上の効果が得られる。

[0085] [アミンイミド組成物]

本実施形態のアミンイミド組成物は、前記式(1)、(2)又は(3)で表されるアミンイミド化合物を複数含む。アミンイミド組成物は、硬化温度制御又は粘度制御の観点から、特性の向上効果が得られるため、本実施形態のアミンイミド化合物を複数含むものとする。なお、同じ式で表されるが構造が異なるアミンイミド化合物を複数含んでもよい。

[0086] 特に粘度制御の観点からは、前記式(1)及び式(3)で表されるアミンイミド化合物を含むアミンイミド組成物であることが好ましい。

アミンイミド化合物を複数含む場合、その含有割合に関しては、前記式(1)で表されるアミンイミド化合物を0.1質量%～99.5質量%含むものとすることにより粘度制御が容易になる傾向にある。

[0087] アミンイミド化合物を複数含むアミンイミド組成物とする場合、複数のアミンイミド化合物を混合することにより得てもよく、後述するアミンイミド化合物の製造方法において、複数のアミンイミド化合物を同時に製造することによって得ることもできる。

[0088] [アミンイミド化合物及びアミンイミド組成物の製造方法]

本実施形態のアミンイミド化合物の製造方法は、上記構造を有するアミンイミド化合物を得られる方法であれば特に制限されない。

本実施形態のアミンイミド組成物の製造方法は、後述する方法により得た

複数のアミンイミド化合物を混合する方法、複数種のアミンイミド化合物を同時に製造し、混合体を得る方法がある。

本実施形態のアミンイミド化合物の製造方法としては、例えば、カルボン酸エステル化合物（A）、ヒドラジン化合物（B）、及びグリシジルエーテル化合物（C）、を反応させる反応工程を有する方法が挙げられる。

以下、当該製造方法について説明する。

[0089] カルボン酸エステル化合物（A）としては、特に限定されないが、例えば、モノカルボン酸エステル化合物やジカルボン酸エステル化合物が挙げられる。

モノカルボン酸エステル化合物の具体例としては、乳酸メチル、乳酸エチル、マンデル酸メチル、酢酸メチル、プロピオン酸メチル、酪酸メチル、イソ酪酸メチル、吉草酸メチル、イソ吉草メチル、ピバル酸メチル、ヘプタン酸メチル、オクタン酸メチル、アクリル酸メチル、メタクリル酸メチル、クロトン酸メチル、イソクロトン酸メチル、ベンゾイルギ酸メチル、2-メトキシベンゾイルメチル、3-メトキシベンゾイルメチル、4-メトキシベンゾイルメチル、2-エトキシベンゾイルメチル、4-tert-ブトキシベンゾイルメチル等が挙げられる。また、これらに替えて、エチルエステル類、プロピルエステル類等を用いてもよい。ジカルボン酸エステル化合物の具体例としては、しゅう酸ジメチル、マロン酸ジメチル、こはく酸ジメチル、酒石酸ジメチル、グルタル酸ジメチル、アジピン酸ジメチル、ピメリン酸ジメチル、スベリン酸ジメチル、アゼライン酸ジメチル、セバシン酸ジメチル、マレイン酸ジメチル、フマル酸ジメチル、イタコン酸ジメチル、フタル酸ジメチル、イソフタル酸ジメチル、テレフタル酸ジメチル、1,3-アセトンジカルボン酸ジメチル、及び1,3-アセトンジカルボン酸ジエチル等が挙げられる。また、これらに替えて、ジエチルエステル類、ジプロピルエステル類等を用いてもよい。

[0090] これらの中でも、硬化性と液状化の観点から、乳酸エチル、マンデル酸メチル、酢酸メチル、プロピオン酸メチル、酪酸メチル、イソ酪酸メチル、吉

草酸メチル、イソ吉草メチル、ピバル酸メチルアクリル酸メチル、メタクリル酸メチル、クロトン酸メチル、イソクロトン酸メチル、ベンゾイルギ酸メチル、しゅう酸ジメチル、マロン酸ジメチル、こはく酸ジメチル、酒石酸ジメチル、グルタル酸ジメチル、アジピン酸ジメチル、ピメリン酸ジメチル、スベリン酸ジメチル、アゼライン酸ジメチル、マレイン酸ジメチル、フマル酸ジメチル、フタル酸ジメチル、イソフタル酸ジメチル、テレフタル酸ジメチル、1, 3-アセトンジカルボン酸ジメチル、及び1, 3-アセトンジカルボン酸ジエチルが好ましい。

[0091] さらにこれらの中でも、入手容易性の観点から、乳酸エチル、マンデル酸メチル、ベンゾイルギ酸メチル、しゅう酸ジメチル、マロン酸ジメチル、こはく酸ジメチル、グルタル酸ジメチル、アジピン酸ジメチル、及び1, 3-アセトンジカルボン酸ジエチルがより好ましい。カルボン酸エステル化合物(A)は、1種単独で用いても、2種以上を併用してもよい。

[0092] ヒドラジン化合物(B)としては、特に限定されないが、例えば、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、1-アミノピペリジン、N-アミノホモピペリジン、1-アミノ-2, 6-ジメチルピペリジン、1-アミノピロリジン、1-アミノ-2-メチルピロリジン、1-アミノ-2-フェニルピロリジン、及び1-アミノモルホリン等が挙げられる。

[0093] これらの中でも、硬化性と液状化の観点から、ジメチルヒドラジン、ジベンジルヒドラジン、1-アミノピペリジン、1-アミノピロリジン、及び1

ーアミノモルホリンが好ましい。さらにこれらの中でも、入手容易性と安全性から、ジベンジルヒドラジン、及び1ーアミノピペリジンがより好ましい。ヒドラジン化合物（B）は、1種単独で用いても、2種以上を併用してもよい。

[0094] グリシジルエーテル化合物（C）としては、特に限定されないが、例えば、単官能のモノグリシジルエーテル化合物や2官能以上のポリグリシジルエーテル化合物を用いることができる。モノグリシジルエーテル化合物の具体例としては、メチルグリシジルエーテル、エチルグリシジルエーテル、nーブチルグリシジルエーテル、tーブチルグリシジルエーテル、2ーエチルヘキシルグリシジルエーテル、ドデシルグリシジルエーテル高級アルコー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、クレジルグリシジルエーテル、オルソフェニルフェノールグリシジルエーテル、ベンジルグリシジルエーテル、ビフェニルグリシジルエーテル、4ーtーブチルフェニルグリシジルエーテル、tーブチルジメチルシリルグリシジルエーテル、3ー[ジエトキシ（メチル）シリル]プロピルグリシジルエーテル等が挙げられる。ポリグリシジルエーテル化合物の具体例としては、エチレングリコールジグリシジルエーテル、ジエチレングリコールジグリシジルエーテル、トリエチレングリコールジグリシジルエーテル、ポリエチレングリコールジグリシジルエーテル、プロピレングリコールジグリシジルエーテル、ジプロピレングリコールジグリシジルエーテル、トリプロピレングリコールジグリシジルエーテル、ポリプロピレングリコールジグリシジルエーテル、ネオペンチルグリコールジグリシジルエーテル、ブタンジオールグリシジルエーテル、ヘキサジオールグリシジルエーテル、トリメチロールプロパンポリグリシジルエーテル、グリセリンポリグリシジルエーテル、ジグリセリンポリグリシジルエーテル、ポリグリセリンポリグリシジルエーテル、ソルビトールポリグリシジルエーテル等の脂肪族系ポリグリシジルエーテル、ビスフェノールA型ジグリシジルエーテル、ビスフェノールF型ジグリシジルエーテル、ビスフェノールS型ジグリシジルエーテル、エチレ

ンオキサイド付加型ビスフェノールA型ジグリシジルエーテル、プロピレンオキサイド付加型ビスフェノールA型ジグリシジルエーテル、及びこれらの縮合物の水素化物等の脂環族系ポリグリシジルエーテル化合物、レゾルシノールジグリシジルエーテル等の芳香族系ポリグリシジルエーテル化合物などが挙げられる。

[0095] これらの中でも、硬化性と液状化の観点から、メチルグリシジルエーテル、エチルグリシジルエーテル、*n*-ブチルグリシジルエーテル、*t*-ブチルグリシジルエーテル、2-エチルヘキシ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、*t*-ブチルジメチルシリルグリシジルエーテル、エチレングリコールジグリシジルエーテル、ジエチレングリコールジグリシジルエーテル、ネオペンチルグリコールジグリシジルエーテル、ブタンジオールグリシジルエーテル、ヘキサジオールグリシジルエーテル、トリメチロールプロパンポリグリシジルエーテル、ビスフェノールA型ジグリシジルエーテル、ビスフェノールF型ジグリシジルエーテル、エチレンオキサイド付加型ビスフェノールA型ジグリシジルエーテル、プロピレンオキサイド付加型ビスフェノールA型ジグリシジルエーテルが好ましい。

[0096] さらにこれらの中でも、入手容易性と硬化物のT_gの観点から、*n*-ブチルグリシジルエーテル、*t*-ブチルグリシジルエーテル、2-エチルヘキシルグリシジルエーテル、アリルグリシジルエーテル、トリメチロールプロパンポリグリシジルエーテル、エチレンオキサイド付加型ビスフェノールA型ジグリシジルエーテル、ブタンジオールグリシジルエーテル、ヘキサジオールグリシジルエーテル、及びプロピレンオキサイド付加型ビスフェノールA型ジグリシジルエーテルがより好ましい。グリシジルエーテル化合物（C）は、1種単独で用いても、2種以上を併用してもよい。

[0097] 反応系に対するカルボン酸エステル化合物（A）、ヒドラジン化合物（B）、及びグリシジルエーテル化合物（C）の添加量は、官能基のモル比で表すことができる。カルボン酸エステル化合物（A）のカルボン酸エステル基

は、ヒドラジン化合物（B）の1級アミン1モルに対し、好ましくは0.8～3.0モルであり、より好ましくは0.9～2.8モルであり、さらに好ましくは0.95～2.5モルである。また、グリシジルエーテル化合物（C）のグリシジル基は、ヒドラジン化合物（B）の1級アミン1モルに対し、好ましくは0.8～2.0モルであり、より好ましくは0.9～1.5モルであり、さらに好ましくは0.95～1.4モルである。

グリシジルエーテル化合物（C）のグリシジル基の、ヒドラジン化合物（B）の1級アミン1モルに対する添加量を制御することで、式（1）及び式（3）で表されるアミンイミド化合物を含むアミンイミド組成物を同時に製造することができる。具体的にはグリシジルエーテル化合物（C）のグリシジル基は、ヒドラジン化合物（B）の1級アミン1モルに対し、好ましくは0.1～3.0モルであり、より好ましくは0.3～2.0モルであり、さらに好ましくは0.5～1.0モルである。

[0098] 本実施形態のアミンイミド化合物、アミンイミド組成物の製造方法においては、前記（A）～（C）成分の反応は、溶媒を用いなくても反応が進行するが、反応を均一に進行させる観点から、溶媒を用いることが好ましい。

[0099] 溶媒は、（A）～（C）成分と反応しないものであれば、特に限定されないが、例えば、メタノール、エタノール、1-プロパノール、2-プロパノール、ブタノール、*t*-ブチルアルコール等のアルコール類；テトラヒドロフラン、ジエチルエーテル等のエーテル類などが挙げられる。

[0100] 反応温度は、好ましくは10～70℃であり、より好ましくは20～60℃である。反応温度が10℃以上であることにより、反応の進行が速くなり、得られるアミンイミド化合物の純度がより向上する傾向にある。また、反応温度が60℃以下であることにより、グリシジルエーテル化合物（C）同士の高分子化反応を効率よく抑制できるため、アミンイミド化合物の純度がより向上する傾向にある。

[0101] 反応時間としては、好ましくは、1～7日であり、より好ましくは1～6日であり、さらに好ましくは1～4日である。

[0102] 反応終了後、得られた反応物は、洗浄、抽出、再結晶、カラムクロマトグラフィー等の公知の精製方法により、精製することができる。例えば、有機溶剤に溶解させた反応液を水により洗浄した後に、有機層を常圧或いは減圧下で加熱することによって、未反応の原料や有機溶剤を反応液から除去し、アミンイミド化合物を回収することができる。さらには、得られた反応物を、カラムクロマトグラフィーで精製し、アミンイミド化合物を回収することができる。

洗浄に用いる溶媒は、原料の残留物が溶解できれば特に限定はされないが、収率、純度、除去容易性の観点から、ヘキサン、ペンタン、シクロヘキサンが好ましい。

[0103] 抽出に用いる有機溶剤は、目的のアミンイミド化合物が溶解できれば特に限定されないが、収率、純度、除去容易性の観点から、酢酸エチル、ジクロロメタン、クロロホルム、四塩化炭素、トルエン、ジエチルエーテル、メチルイソブチルケトンが好ましく、酢酸エチル、クロロホルム、トルエン、メチルイソブチルケトンがより好ましい。

[0104] カラムクロマトグラフィーに用いる充填剤は、アルミナ、シリカゲル等の公知のものをを用いることができ、また、展開溶媒は、酢酸エチル、ジクロロメタン、クロロホルム、四塩化炭素、テトラヒドロフラン、ジエチルエーテル、アセトン、メチルイソブチルケトン、アセトニトリル、メタノール、エタノール、イソプロパノール等の公知のものを単独又は混合して用いることができる。

[0105] [硬化剤]

本実施形態の硬化剤は、上述した本実施形態のアミンイミド化合物、又はアミンイミド組成物を含有する。

本実施形態の硬化剤は、アミンイミド化合物、又はアミンイミド組成物以外の、その他の成分を含んでもよい。

その他の成分としては、例えば、無機充填剤、難燃剤、コアシェルゴム粒子、シランカップリング剤、離型剤、顔料等の他の配合剤が挙げられる。本

実施形態のアミンイミド化合物、又はアミンイミド組成物以外のその他の成分を含む場合、その含有量は、90質量%以下であることが好ましい。

[0106] 本実施形態のアミンイミド化合物は、常温で液状であることが好ましい形態であり、かかる場合、特にエポキシ樹脂との相溶性に優れ、その他の成分を添加したエポキシ樹脂組成物としても、好適に用いることができる。以下、エポキシ樹脂組成物について説明する。

[0107] [エポキシ樹脂組成物]

本実施形態のエポキシ樹脂組成物は、エポキシ樹脂 (α) と、上述の本実施形態の硬化剤 (β) と、を含む。本実施形態のエポキシ樹脂組成物は、必要に応じて、上述の本実施形態のアミンイミド化合物及びアミンイミド組成物以外の他の硬化剤や、各種用途のエポキシ樹脂組成物において用いることが一般に知られている任意成分を更に含有してもよい。

[0108] エポキシ樹脂 (α) としては、特に限定されないが、例えば、ビスフェノールA型エポキシ樹脂、ビスフェノールF型エポキシ樹脂、ビスフェノールAD型エポキシ樹脂、ビスフェノールM型エポキシ樹脂、ビスフェノールP型エポキシ樹脂、テトラブロモビスフェノールA型エポキシ樹脂、ビスフェニル型エポキシ樹脂、テトラメチルビスフェニル型エポキシ樹脂、テトラブロモビスフェニル型エポキシ樹脂、ジフェニルエーテル型エポキシ樹脂、ベンゾフェノン型エポキシ樹脂、フェニルベンゾエート型エポキシ樹脂、ジフェニルスルフィド型エポキシ樹脂、ジフェニルスルホキシド型エポキシ樹脂、ジフェニルスルホン型エポキシ樹脂、ジフェニルジスルフィド型エポキシ樹脂、ナフタレン型エポキシ樹脂、アントラセン型エポキシ樹脂、ヒドロキノン型エポキシ樹脂、メチルヒドロキノン型エポキシ樹脂、ジブチルヒドロキノン型エポキシ樹脂、レゾルシン型エポキシ樹脂、メチルレゾルシン型エポキシ樹脂、カテコール型エポキシ樹脂、N, N-ジグリシジルアニリン型エポキシ樹脂、エチレンオキサイド付加型ビスフェノールA型エポキシ樹脂、プロピレンオキサイド付加型ビスフェノールA型エポキシ樹脂、エチレンオキサイド付加型ビスフェノールF型エポキシ樹脂、プロピレンオキサイド付加型

ビスフェノールF型エポキシ樹脂等の2官能型エポキシ樹脂類；トリスフェノール型エポキシ樹脂、N，N－ジグリシジルアミノベンゼン型エポキシ樹脂、o－（N，N－ジグリシジルアミノ）トルエン型エポキシ樹脂、トリアジン型エポキシ樹脂、エチレンオキサイド付加型トリスフェノール型エポキシ樹脂、プロピレンオキサイド付加型トリスフェノール型エポキシ樹脂等の3官能型エポキシ樹脂類；テトラグリシジルジアミノジフェニルメタン型エポキシ樹脂、ジアミノベンゼン型エポキシ樹脂等の4官能型エポキシ樹脂類；フェノールノボラック型エポキシ樹脂、クレゾールノボラック型エポキシ樹脂、トリフェニルメタン型エポキシ樹脂、テトラフェニルエタン型エポキシ樹脂、ジシクロペンタジエン型エポキシ樹脂、ナフトールアラルキル型エポキシ樹脂、ブromo化フェノールノボラック型エポキシ樹脂等の多官能型エポキシ樹脂類；及び脂環式エポキシ樹脂類が挙げられる。これらは1種単独で用いてもよく、2種以上併用してもよい。さらに、これらをイソシアネート等で変性したエポキシ樹脂等も併用することができる。

[0109] 本実施形態のエポキシ樹脂組成物は、上述の硬化剤（ β ）以外の他の硬化剤を併用してもよい。他の硬化剤としては、特に限定されないが、例えば、イミダゾール類、ジアミノジフェニルメタン、ジアミノジフェニルスルホン、ジエチレントリアミン、トリエチレントトラミン、イソホロンジアミン、ポリアルキレングリコールポリアミン、リノレン酸の2量体とエチレンジアミンとより合成されるポリアミド樹脂等のアミン系硬化剤；ジシアンジアミド等のアミド系硬化剤；無水フタル酸、無水トリメリット酸、無水ピロメリット酸、無水マレイン酸、テトラヒドロ無水フタル酸、メチルテトラヒドロ無水フタル酸、無水メチルナジック酸、ヘキサヒドロ無水フタル酸、メチルヘキサヒドロ無水フタル酸等の酸無水物系硬化剤；フェノールノボラック樹脂、クレゾールノボラック樹脂、フェノールアラルキル樹脂、クレゾールアラルキル樹脂、ナフトールアラルキル樹脂、ビフェニル変性フェノール樹脂、ビフェニル変性フェノールアラルキル樹脂、ジシクロペンタジエン変性フェノール樹脂、アミノトリアジン変性フェノール樹脂、ナフトールノボラッ

ク樹脂、ナフトールフェノール共縮合ノボラック樹脂、ナフトールクレゾール共縮合ノボラック樹脂等の多価フェノール化合物類及びこれらの変性物等のフェノール系硬化剤； BF_3 -アミン錯体、グアニジン誘導体等が挙げられる。これらの硬化剤は1種単独で使用してもよいし、2種以上を併用してもよい。

[0110] 前記硬化剤（ β ）以外の他の硬化剤の中でも、浸透性を重視する場合は、酸無水物系硬化剤（ γ ）を、さらに含むことが好ましい。

[0111] 本実施形態のエポキシ樹脂組成物において、硬化剤として用いる場合の硬化剤（ β ）の含有量は、エポキシ樹脂（ α ）の総量100質量部に対して、好ましくは1～50質量部であり、より好ましくは1～30質量部であり、さらに好ましくは2～20質量部である。硬化剤（ β ）の含有量を前記範囲とすることにより、硬化反応が十分に促進するとともに、一層良好な硬化物性が得られる傾向にある。

[0112] 本実施形態のエポキシ樹脂組成物において、硬化剤（ β ）以外の他の硬化剤を含有するものとした場合であって、硬化剤（ β ）を硬化促進剤として用いる場合には、硬化剤（ β ）の含有量は、エポキシ樹脂（ α ）の総量100質量部に対して、好ましくは0.1～30質量部であり、より好ましくは0.5～20質量部であり、さらに好ましくは1～15質量部である。硬化促進剤としての硬化剤（ β ）の含有量を上記範囲とすることにより、他の硬化剤の硬化触媒として機能し、硬化反応が十分に促進するとともに、一層良好な硬化物性が得られる傾向にある。

[0113] 本実施形態のアミンイミド化合物を含む硬化剤（ β ）を硬化促進剤として用い、上述した酸無水物系硬化剤（ γ ）を硬化剤として用いるエポキシ樹脂組成物においては、エポキシ樹脂（ α ）のエポキシ基に対する、酸無水物系硬化剤（ γ ）の酸無水物基の当量比（酸無水物基／エポキシ基）は、好ましくは0.80～1.20であり、より好ましくは0.85～1.15であり、さらに好ましくは0.90～1.10である。

エポキシ樹脂（ α ）と酸無水物系硬化剤（ γ ）の使用量を上記範囲とする

ことにより、硬化反応が十分に促進するとともに、一層良好な硬化物性が得られる傾向にある。

[0114] 本実施形態のエポキシ樹脂組成物は、必要に応じて無機充填剤を更に含有してもよい。無機充填剤としては、特に限定されないが、例えば、溶融シリカ、結晶シリカ、アルミナ、タルク、窒化ケイ素、窒化アルミ等が挙げられる。

[0115] 本実施形態のエポキシ樹脂組成物において、無機充填剤の含有量は、本実施形態の効果が得られる範囲であれば特に限定されない。本実施形態のエポキシ樹脂組成物において、無機充填剤の含有量は、通常、90質量%以下であることが好ましい。無機充填剤の含有量を上記範囲とすることにより、エポキシ樹脂組成物の粘度が十分低く、取扱性に優れる傾向にある。

[0116] 本実施形態のエポキシ樹脂組成物は、必要に応じて、難燃剤、シランカップリング剤、離型剤、顔料等の他の配合剤を更に含有してもよい。これらは、本実施形態の効果が得られる範囲であれば、適宜好適なものを選択することができる。難燃剤としては、特に限定されないが、例えば、ハロゲン化合物、リン原子含有化合物、窒素原子含有化合物、無機系難燃化合物等が挙げられる。

[0117] 〔硬化物〕

本実施形態のエポキシ樹脂組成物を硬化することにより、硬化物が得られる。本実施形態のエポキシ樹脂組成物の硬化物は、エポキシ樹脂組成物を、例えば、従来公知の方法等により熱硬化させることで得られる。例えば、まず、上記のエポキシ樹脂と、硬化剤と、更に必要に応じて硬化促進剤、無機充填剤、及び／又は配合剤等とを、押出機、ニーダ、ロール等を用いて均一になるまで十分に混合してエポキシ樹脂組成物を得る。その後、エポキシ樹脂組成物を注型あるいはトランスファー成形機、コンプレッション成形機、射出成形機等を用いて成形し、80～200℃程度で2～10時間程度の条件で更に加熱することにより、硬化物を得ることができる。

[0118] また、例えば、以下の方法により硬化物を得ることができる。まず、本実

施形態のエポキシ樹脂組成物を、トルエン、キシレン、アセトン、メチルエチルケトン、メチルイソブチルケトン等の溶剤に溶解させ、溶液を得る。得られた溶液を、ガラス繊維、カーボン繊維、ポリエステル繊維、ポリアミド繊維、アルミナ繊維、紙等の基材に含浸させ加熱乾燥してプリプレグを得る。次に、得られたプリプレグを熱プレス成形することにより、硬化物を得ることができる。

[0119] 〔用途〕

本実施形態のエポキシ樹脂組成物及びその硬化物は、エポキシ樹脂が材料として用いられている種々の用途に使用できる。特に、封止材、半導体用封止材、接着剤、プリント基板材、塗料、複合材料等の用途として特に有用である。

これらの中でも、アンダーフィルやモールドイング等の半導体封止材、異方性導電フィルム（ACF）等の導電性接着剤、ソルダーレジストやカバーレイフィルム等のプリント配線基板、エポキシ樹脂組成物をガラス繊維やカーボン繊維などに含浸させてなるプリプレグ等の複合材料に好適に用いられる。

[0120] （接着剤）

本実施形態の接着剤は、上述した本実施形態のエポキシ樹脂組成物を含み、前記硬化剤（ β ）が、前記式（3）で表されるアミンイミド化合物を含むことが好ましい。これにより、浸透性を向上させる効果が得られる。

[0121] （電子部材）

本実施形態のエポキシ樹脂組成物の硬化物は、各種電子部材に用いることができる。例えば、アンダーフィルやモールドイング等の半導体封止材、ACF等の導電性接着剤、ソルダーレジストやカバーレイフィルム等のプリント配線基板、ガラス繊維やカーボン繊維などに含浸させてなるプリプレグ等の複合材料が挙げられるが、これらに限定されない。

実施例

[0122] 次に、本発明を、合成例、比較合成例、実施例、及び比較例により更に具

体的に説明するが、本発明はこれらにより何ら限定されるものではない。

なお、以下において「部」及び「%」は、特に断りがない限り質量基準である。

[0123] 後述する合成例において、アミンイミド化合物及びアミンイミド組成物を合成した。アミンイミド化合物及びアミンイミド組成物の物性として、25℃における粘度、融点、赤外吸収スペクトルをそれぞれ測定した。

[0124] [25℃における粘度の測定方法]

アミンイミド化合物の25℃での粘度(Pa・s)は、アミンイミド化合物及びアミンイミド組成物(約0.3mL)を測定カップに滴下し、試料温度が25℃になってから15分後にE型粘度計(東機産業株式会社製「TVE-35H」)で測定した。

なお、表1中、「性状」は、25℃における状態を示す。

[0125] [融点の測定方法]

常温(25℃)で固形のもののみ融点を測定した。アミンイミド化合物及びアミンイミド組成物の融点は、以下の条件における吸熱ピークの頂点温度とした。

- ・装置：示差熱重量同時測定装置(株式会社日立ハイテクサイエンス製「TG/DTA7220」)
- ・試料質量：約10mg
- ・試料容器：オープン型アルミニウムパン
- ・測定温度：40℃～240℃
- ・昇温速度：5℃/分
- ・雰囲気ガス：窒素
- ・ガス流量：40mL/分

[0126] [N-N結合分解温度の測定方法]

アミンイミド化合物及びアミンイミド組成物のN-N結合分解頂点温度は、以下の測定条件における発熱ピークの頂点温度(T_{peak})とした。N-N結合分解開始温度は、発熱ピークの立ち上がり温度(T_{onset})とした。なお、立

ち上がり温度 (T_{onset}) は、発熱ピークの立ち上がり部分の最大傾斜の接線と、基線（ベースライン）の外挿線との交点より求めた。これらより ($T_{\text{peak}} - T_{\text{onset}}$) を算出した。

<測定条件>

- ・装置：示差熱重量同時測定装置（株式会社日立ハイテクサイエンス製「TG/DTA7220」）
- ・試料質量：約 10 mg
- ・試料容器：オープン型アルミニウムパン
- ・測定温度：40℃～240℃
- ・昇温速度：5℃/分
- ・雰囲気ガス：窒素
- ・ガス流量：40 mL/分

[0127] [赤外吸収スペクトルの測定方法]

赤外線吸収スペクトルの測定は、フーリエ変換赤外分光光度計（日本分光株式会社製「FT/IR-410」）を用いた。測定サンプルの作製方法は、試料が液状の場合は液膜法を用い、試料が固体の場合は錠剤法を用いた。

液膜法は、赤外線を透過する岩塩板に試料を挟み、膜状の測定サンプルを作製する方法である。

錠剤法は、乳鉢等を用いて臭化カリウム粉末に試料を均一に分散させた後に、プレスして錠剤状の測定サンプルを作製する方法である。

1570 cm^{-1} ～1620 cm^{-1} に見られるアミンイミド基由来の特異的な赤外吸収スペクトルの有無を確認した。

[0128] [質量分析の測定方法]

質量分析の測定は、質量分析(MS)検出器として、Waters社QDa検出器を用いて行った。

測定サンプルは、アセトニトリルを用いて濃度約0.25質量%に調整した。

送液条件は、初期 90 : 10 = メタノール : 水からスタートし、3 分後に 50 : 50 = メタノール : 水とした。約 0.1 ~ 0.5 分にピークが観察されるので、そのピークについて解析を行った。

W a t e r s 社 Q D a 検出器の質量分析条件は、M a s s (m / z) E S + で 50 - 1250、キャピラリー電圧は 0.8 V、C o n e 電圧は 25 V、プローブ温度 600 °C であるものとした。

各化合物は H⁺ が付加した 1 価の m / z で観測された。

5 m M 酢酸アンモニウム / メタノール溶液を 0.45 m L / m i n で送液し、イオン化を促進した。

[0129] 下記において、アミンイミド化合物、及びアミンイミド組成物を調製した。

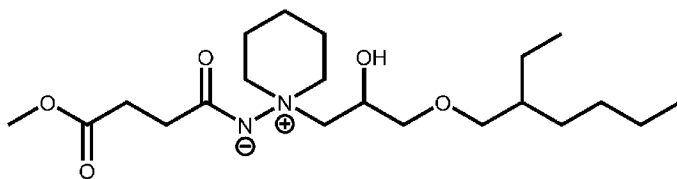
なお、下記合成例は、本発明に係るアミンイミド化合物及びアミンイミド組成物の具体例である。

[合成例 1]

こはく酸ジメチル 17.68 g (0.12 モル)、1-アミノピペリジン 12.02 g (0.12 モル)、2-エチルヘキシルグリシジルエーテル 22.54 g (0.12 モル)、t-ブチルアルコール 26.12 g (0.35 モル) を混合し、溶液を得た。。この溶液を 55 °C で 4 日間攪拌しながら反応させ、反応液を得た。得られた反応液を 55 °C で減圧濃縮することにより、t-ブチルアルコール、副生したアルコール、未反応の原料を留去し、液状の生成物を得た。この生成物を、酢酸エチルに溶解させ、分液ロートで水洗を繰り返すことで、未反応の原料残渣を除去し、有機層を得た。この有機層を 55 °C で再度減圧濃縮することにより薄黄色の液状アミンイミド化合物 A (化合物 A) : 44.37 g (収率 92.3 %) を得た。前記赤外線吸収スペクトルの測定方法より、I R (n e a t) : 1573 c m⁻¹ の測定値を得た。質量分析では、m / z = 401.5 のピークが観測された。これにより、下記式に示すアミンイミド化合物 A が得られたことが分かった。

[0130]

[化23]

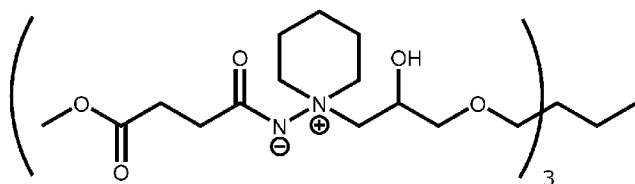


アミンイミド化合物 A

[0131] [合成例 2]

こはく酸ジメチル 17.68 g (0.12 モル)、1-アミノピペリジン 12.02 g (0.12 モル)、トリメチロールプロパンポリグリシジルエーテル 12.09 g (0.04 モル)、t-ブチルアルコール 20.90 g (0.28 モル) を混合し、溶液を得た。この溶液を 55℃ で 3 日間攪拌しながら反応させ、反応液を得た。得られた反応液を 55℃ で減圧濃縮することにより、t-ブチルアルコール、副生したアルコール、未反応の原料を留去し、液状の生成物を得た。この生成物を、酢酸エチルに溶解させ、分液ロートで水洗を繰り返すことで、未反応の原料残渣を除去し、有機層を得た。この有機層を 55℃ で再度減圧濃縮することにより薄黄色の粘稠状アミンイミド化合物 B (化合物 B) : 33.46 g (収率 88.5%) を得た。前記赤外線吸収スペクトルの測定方法により、IR (neat) : 1576 cm⁻¹ の測定値を得た。質量分析では、m/z = 946.8 のピークが観測された。これにより、下記式に示すアミンイミド化合物 B が得られたことが分かった。

[0132] [化24]

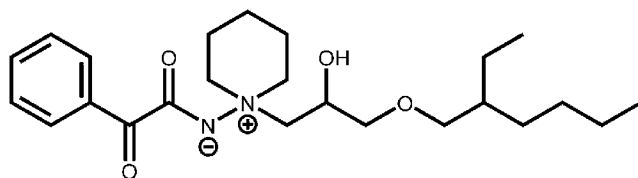


アミンイミド化合物 B

[0133] [合成例 3]

ベンゾイルギ酸メチル 19.70 g (0.12 モル)、1-アミノピペリジン 12.02 g (0.12 モル)、2-エチルヘキシルグリシジルエーテル 22.54 g (0.12 モル)、*t*-ブチルアルコール 27.13 g (0.37 モル) を混合し、溶液を得た。この溶液を 55℃ で 4 日間攪拌しながら反応させ、反応液を得た。得られた反応液を 55℃ で減圧濃縮することにより、*t*-ブチルアルコール、副生したアルコール、未反応の原料を留去し、液状の生成物を得た。この生成物を、酢酸エチルに溶解させ、分液ロートで水洗を繰り返すことで、未反応の原料残渣を除去し、有機層を得た。この有機層を 55℃ で再度減圧濃縮することにより薄茶色の液状アミンイミド化合物 C (化合物 C) : 47.67 g (収率 94.9%) を得た。前記赤外線吸収スペクトルの測定方法により、IR (neat) : 1595 cm⁻¹ の測定値を得た。質量分析では、*m/z* = 419.5 のピークが観測された。これにより、下記式に示すアミンイミド化合物 C が得られたことが分かった。

[0134] [化25]



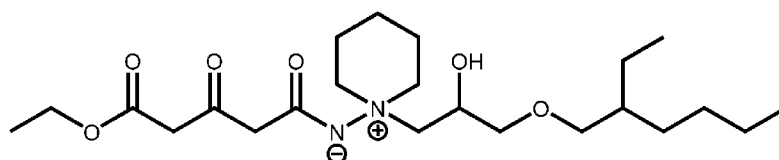
アミンイミド化合物 C

[0135] [合成例 4]

1,3-アセトンジカルボン酸ジエチル 24.27 g (0.12 モル)、1-アミノピペリジン 12.02 g (0.12 モル)、2-エチルヘキシルグリシジルエーテル 22.54 g (0.12 モル)、*t*-ブチルアルコール 29.42 g (0.40 モル) を混合し、溶液を得た。この溶液を 55℃ で 4 日間攪拌しながら反応させ、反応液を得た。得られた反応液を 55℃ で減圧濃縮することにより、*t*-ブチルアルコール、副生したアルコール、未反応の原料を留去することで、液状の生成物を得た。この生成物を、酢酸エチルに溶解させ、分液ロートで水洗を繰り返すことで、未反応の原料残渣を除去し、有機層を得た。この有機層を 55℃ で再度減圧濃縮することにより濃

茶色の液状アミンイミド化合物D（化合物D）：44.93 g（収率84.6%）を得た。前記赤外線吸収スペクトルの測定方法により、IR（neat）：1609 cm^{-1} の測定値を得た。質量分析では、 $m/z = 443.4$ のピークが観測された。これにより、下記式に示すアミンイミド化合物Dが得られたことが分かった。

[0136] [化26]



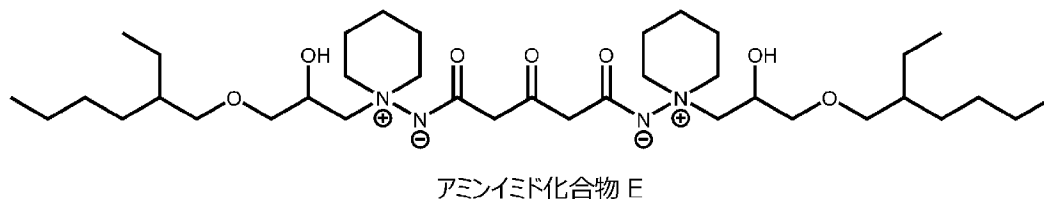
アミンイミド化合物D

[0137] [合成例5]

1, 3-アセトンジカルボン酸ジエチル 12.13 g（0.06モル）、1-アミノピペリジン 12.02 g（0.12モル）、2-エチルヘキシルグリシジルエーテル 22.54 g（0.12モル）、t-ブチルアルコール 23.35 g（0.32モル）を混合し、溶液を得た。この溶液を55℃で3日間攪拌しながら反応させ、反応液を得た。得られた反応液を55℃で減圧濃縮することにより、t-ブチルアルコール、副生したアルコール、未反応の原料を留去することで、液状の生成物を得た。この生成物を、酢酸エチルに溶解させ、分液ロートで水洗を繰り返すことで、未反応の原料残渣を除去し、有機層を得た。この有機層を55℃で再度減圧濃縮することにより濃茶色の液状アミンイミド化合物E（化合物E）：33.40 g（収率81.5%）を得た。前記赤外線吸収スペクトルの測定方法により、IR（neat）：1586 cm^{-1} の測定値を得た。質量分析では、 $m/z = 683.9$ のピークが観測された。これにより、下記式に示すアミンイミド化合物Eが得られたことが分かった。

[0138]

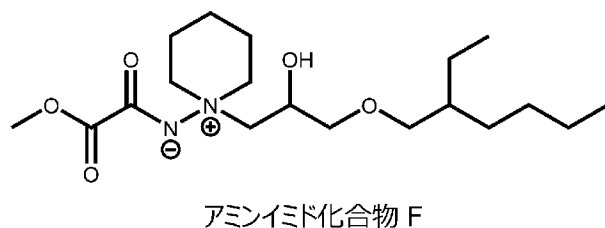
[化27]



[0139] [合成例 6]

しゅう酸ジメチル 14.17 g (0.12 モル)、1-アミノピペリジン 12.02 g (0.12 モル)、2-エチルヘキシルグリシジルエーテル 22.54 g (0.12 モル)、t-ブチルアルコール 24.37 g (0.33 モル) を混合し、溶液を得た。この溶液を 55℃ で 3 日間攪拌しながら反応させ、反応液を得た。得られた反応液を 55℃ で減圧濃縮することにより、t-ブチルアルコール、副生したアルコール、未反応の原料を留去することで、液状の生成物を得た。この生成物を、酢酸エチルに溶解させ、分液ロートで水洗を繰り返すことで、未反応の原料残渣を除去し、有機層を得た。この有機層を 55℃ で再度減圧濃縮することにより薄黄色の液状アミンイミド化合物 F (化合物 F) : 42.51 g (収率 95.1%) を得た。前記赤外線吸収スペクトルの測定方法により、IR (neat) : 1612 cm⁻¹ の測定値を得た。質量分析では、m/z = 372.5 のピークが観測された。これにより、下記式に示すアミンイミド化合物 F が得られたことが分かった。

[0140] [化28]

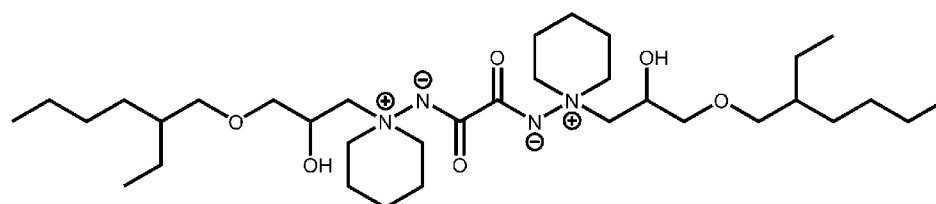


[0141] [合成例 7]

しゅう酸ジメチル 7.09 g (0.06 モル)、1-アミノピペリジン 12.02 g (0.12 モル)、2-エチルヘキシルグリシジルエーテル 22

、54 g (0.12 mol)、*t*-ブチルアルコール20.83 g (0.28 mol)を混合し、溶液を得た。この溶液を55℃で4日間攪拌しながら反応させ、反応液を得た。得られた反応液を55℃で減圧濃縮することにより、*t*-ブチルアルコール、副生したアルコール、未反応の原料を留去することで、液状の生成物を得た。この生成物を、酢酸エチルに溶解させ、分液ロートで水洗を繰り返すことで、未反応の原料残渣を除去し、有機層を得た。この有機層を55℃で再度減圧濃縮することにより薄黄色の粘稠状アミンイミド化合物G (化合物G) : 33.70 g (収率89.6%)を得た。前記赤外線吸収スペクトルの測定方法により、IR (neat) : 1617 cm^{-1} の測定値を得た。質量分析では、 $m/z = 627.8$ のピークが観測された。これにより、下記式に示すアミンイミド化合物Gが得られたことが分かった。

[0142] [化29]



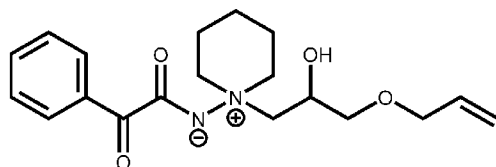
アミンイミド化合物 G

[0143] [合成例8]

ベンゾイルギ酸メチル19.70 g (0.12 mol)、1-アミノピペリジン12.02 g (0.12 mol)、アリルグリシジルエーテル13.70 g (0.12 mol)、*t*-ブチルアルコール22.71 g (0.31 mol)を混合し、溶液を得た。この溶液を55℃で4日間攪拌しながら反応させ、反応液を得た。得られた反応液を55℃で減圧濃縮することにより、*t*-ブチルアルコール、副生したアルコール、未反応の原料を留去することで、液状の生成物を得た。この生成物を、酢酸エチルに溶解させ、分液ロートで水洗を繰り返すことで、未反応の原料残渣を除去し、有機層を得た。この有機層を55℃で再度減圧濃縮することにより茶色の液状アミンイミド化合物H

(化合物H) : 37.54 g (収率90.3%)を得た。前記赤外線吸収スペクトルの測定方法により、IR (neat) : 1588 cm^{-1} の測定値を得た。質量分析では、 $m/z = 347.4$ のピークが観測された。これにより、下記式に示すアミンイミド化合物Hが得られたことが分かった。

[0144] [化30]

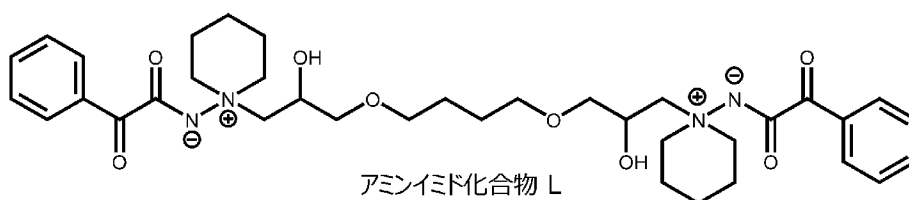


アミンイミド化合物 H

[0145] [合成例9]

ベンゾイルギ酸メチル7.46 g (0.045モル)、1-アミノピペリジン5.01 g (0.05モル)、1,4-ブタンジオールジグリシジルエーテル5.06 g (0.025モル)、エタノール5.5 g (0.12モル)を混合し、溶液を得た。この溶液を55℃で1日間攪拌しながら反応させ、反応液を得た。得られた反応液を55℃で減圧濃縮することにより、エタノール、副生したアルコール、未反応の原料を留去することで、液状の生成物を得た。この生成物を、酢酸エチルに溶解させ、分液ロートで水洗を繰り返すことで、未反応の原料残渣を除去し、有機層を得た。この有機層を55℃で再度減圧濃縮することにより黄色の液状アミンイミド化合物L (化合物L) : 16.21 g (収率89.5%)を得た。前記赤外線吸収スペクトルの測定方法により、IR (neat) : 1595 cm^{-1} の測定値を得た。質量分析では、 $m/z = 667.6$ のピークが観測された。これにより、下記式に示すアミンイミド化合物Lが得られたことが分かった。

[0146] [化31]

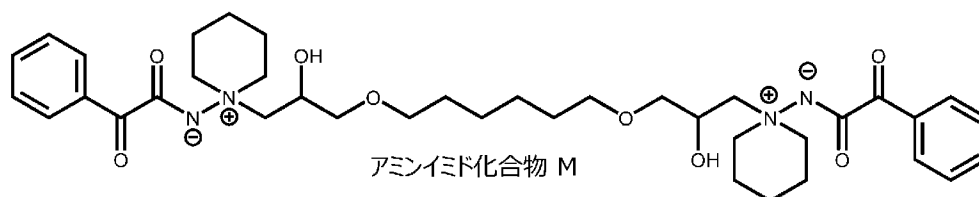


アミンイミド化合物 L

[0147] [合成例 10]

ベンゾイルギ酸メチル 7.46 g (0.045 モル)、1-アミノピペリジン 5.14 g (0.05 モル)、1,6-ヘキサンジオールジグリシジルエーテル 5.76 g (0.025 モル)、エタノール 5.5 g (0.12 モル) を混合し、溶液を得た。この溶液を 55℃ で 1 日間攪拌しながら反応させ、反応液を得た。得られた反応液を 55℃ で減圧濃縮することにより、エタノール、副生したアルコール、未反応の原料を留去することで、液状の生成物を得た。この生成物を、ヘキサンで洗浄を繰り返すことで、未反応の原料残渣を除去し、有機層を得た。この有機層を 55℃ で再度減圧濃縮することにより赤茶色の液状アミンイミド化合物 M (化合物 M) : 17.07 g (収率 88.1%) を得た。前記赤外線吸収スペクトルの測定方法により、IR (neat) : 1596 cm^{-1} の測定値を得た。質量分析では、 $m/z = 695.6$ のピークが観測された。これにより、下記式に示すアミンイミド化合物 M が得られたことが分かった。

[0148] [化32]



[0149] [合成例 11]

乳酸エチル 7.86 g (0.065 モル)、1-アミノピペリジン 7.01 g (0.07 モル)、2-エチルヘキシルグリシジルエーテル 13.04 g (0.07 モル)、エタノール 7.7 g (0.17 モル) を混合し、溶液を得た。この溶液を 55℃ で 1 日間攪拌しながら反応させ、反応液を得た。得られた反応液を 55℃ で減圧濃縮することにより、エタノール、副生したアルコール、未反応の原料を留去することで、液状の生成物を得た。この生成物を、ヘキサンで洗浄を繰り返すことで、未反応の原料残渣を除去し、有機層を得た。この有機層を 55℃ で再度減圧濃縮することにより薄黄色の液

状アミンイミド化合物N（化合物N）：19.55 g（収率83.9％）を得た。前記赤外線吸収スペクトルの測定方法により、IR（neat）：1592 cm^{-1} の測定値を得た。質量分析では、 $m/z = 359.5$ のピークが観測された。これにより、下記式に示すアミンイミド化合物Nが得られたことが分かった。

[0150] [化33]

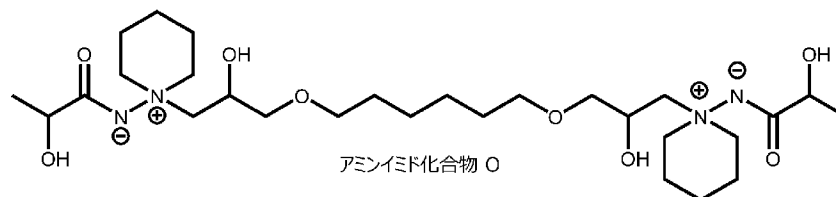


[0151] [合成例12]

乳酸エチル4.68 g（0.040モル）、1-アミノピペリジン4.41 g（0.044モル）、1,6-ヘキサジオールジグリシジルエーテル5.06 g（0.022モル）、エタノール5.5 g（0.12モル）を混合し、溶液を得た。この溶液を55℃で2日間攪拌しながら反応させ、反応液を得た。得られた反応液を55℃で減圧濃縮することにより、エタノール、副生したアルコール、未反応の原料を留去することで、液状の生成物を得た。この生成物を、ヘキサンで洗浄を繰り返すことで、未反応の原料残渣を除去し、有機層を得た。この有機層を55℃で再度減圧濃縮することにより薄黄色の液状アミンイミド化合物O（化合物O）：12.22 g（収率85.7％）を得た。前記赤外線吸収スペクトルの測定方法により、IR（neat）：1592 cm^{-1} の測定値を得た。質量分析では、 $m/z = 574.8$ のピークが観測された。これにより、下記式に示すアミンイミド化合物Oが得られたことが分かった。

[0152]

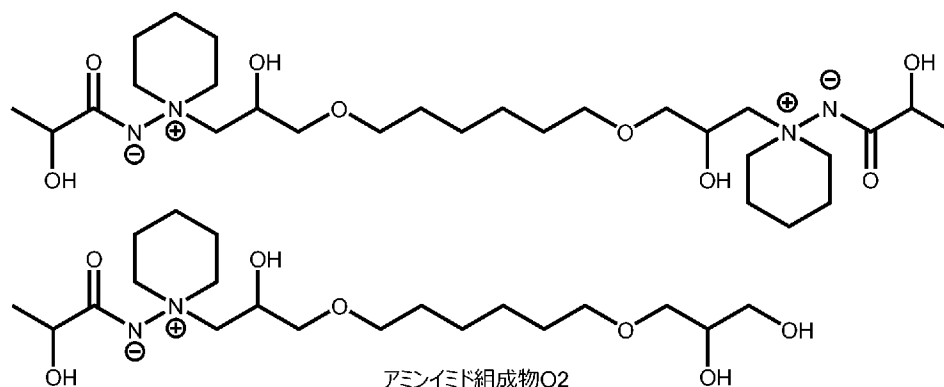
[化34]



[0153] [合成例 1 3]

乳酸エチル 3.54 g (0.030 モル)、1-アミノピペリジン 3.01 g (0.030 モル)、1,6-ヘキサジオールジグリシジルエーテル 6.91 g (0.030 モル)、エタノール 8.0 g (0.17 モル) を混合し、溶液を得た。この溶液を 55℃ で 2 日間攪拌しながら反応させ、反応液を得た。この生成物を、ヘキサンで洗浄を繰り返すことで、未反応の原料残渣を除去し、有機層を得た。この有機層を 55℃ で再度減圧濃縮することにより、下記式に示す 2 種のアミンイミド化合物の混合物である黄色の液状アミンイミド組成物 O2 (化合物 O2) : 12.01 g を得た。前記赤外線吸収スペクトルの測定方法により、IR (neat) : 1593 cm⁻¹ の測定値を得た。質量分析では、m/z = 575.6 及び 421.4 のピークが観測された。m/z = 575.6 はアミンイミド化合物 0 と同様の構造であり、m/z = 421.4 は片側がジオール末端の構造を持つ化合物である。これにより、下記式に示すアミンイミド組成物 O2 が得られたことが分かった。

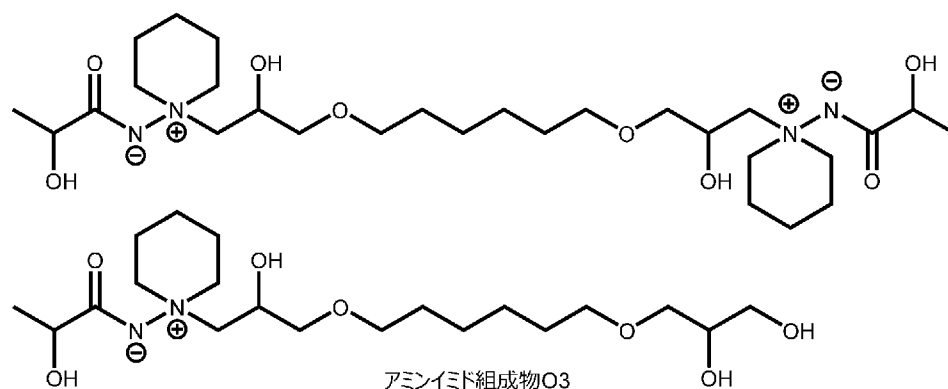
[0154] [化35]



[0155] [合成例 1 4]

乳酸エチル 5.32 g (0.045 モル)、1-アミノピペリジン 4.51 g (0.045 モル)、1,6-ヘキサジオールジグリシジルエーテル 6.91 g (0.030 モル)、エタノール 8.0 g (0.17 モル) を混合し、溶液を得た。この溶液を 55℃ で 2 日間攪拌しながら反応させ、反応液を得た。この生成物を、ヘキサンで洗浄を繰り返すことで、未反応の原料残渣を除去し、有機層を得た。この有機層を 55℃ で再度減圧濃縮することにより、下記式に示す 2 種のアミンイミド化合物の混合物である黄色の液状アミンイミド組成物 O3 (化合物 O3) : 14.56 g を得た。前記赤外線吸収スペクトルの測定方法により、IR (neat) : 1592 cm^{-1} の測定値を得た。質量分析では、 $m/z = 575.6$ 及び 421.4 のピークが観測された。 $m/z = 575.6$ はアミンイミド化合物 O と同様の構造であり、 $m/z = 421.4$ は片側がジオール末端の構造を持つ化合物である。これにより、下記式に示すアミンイミド組成物 O3 が得られたことが分かった。

[0156] [化36]



[0157] [合成例 15]

D, L-マンデル酸メチル 3.64 g (0.022 モル)、1-アミノピペリジン 2.34 g (0.023 モル)、2-エチルヘキシルグリシジルエーテル 4.35 g (0.023 モル)、エタノール 3.0 g (0.07 モル) を混合し、溶液を得た。この溶液を 55℃ で 1 日間攪拌しながら反応させ、反応液を得た。得られた反応液を 55℃ で減圧濃縮することにより、エタ

ノール、副生したアルコール、未反応の原料を留去することで、液状の生成物を得た。この生成物を、ヘキサンで洗浄を繰り返すことで、未反応の原料残渣を除去し、有機層を得た。この有機層を55℃で再度減圧濃縮することにより薄黄色の液状アミンイミド化合物P（化合物P）：8.41g（収率90.5%）を得た。前記赤外線吸収スペクトルの測定方法により、IR（neat）：1603 cm⁻¹の測定値を得た。質量分析では、m/z = 421.5のピークが観測された。これにより、下記式に示すアミンイミド化合物Pが得られたことが分かった。

[0158] [化37]

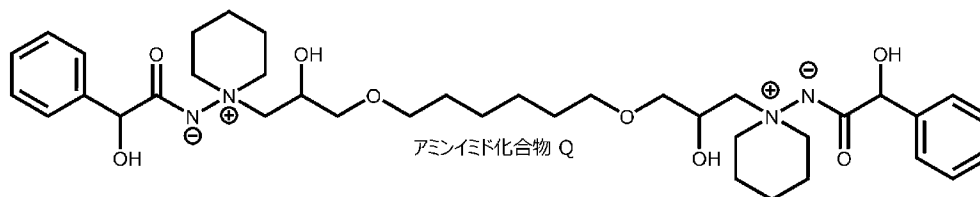


[0159] [合成例16]

D, L-マンデル酸メチル9.97g（0.060モル）、1-アミノピペリジン6.01g（0.06モル）、1,6-ヘキサジオールジグリシジルエーテル6.91g（0.03モル）、エタノール8.0g（0.17モル）を混合し、溶液を得た。この溶液を55℃で2日間攪拌しながら反応させ、反応液を得た。この生成物を、ヘキサンで洗浄を繰り返すことで、未反応の原料残渣を除去し、有機層を得た。この有機層を55℃で再度減圧濃縮することにより薄黄色の液状アミンイミド化合物Q（化合物Q）：22.76g（収率87.3%）を得た。前記赤外線吸収スペクトルの測定方法により、IR（neat）：1603 cm⁻¹の測定値を得た。質量分析では、m/z = 699.7のピークが観測された。これにより、下記式に示すアミンイミド化合物Qが得られたことが分かった。

[0160]

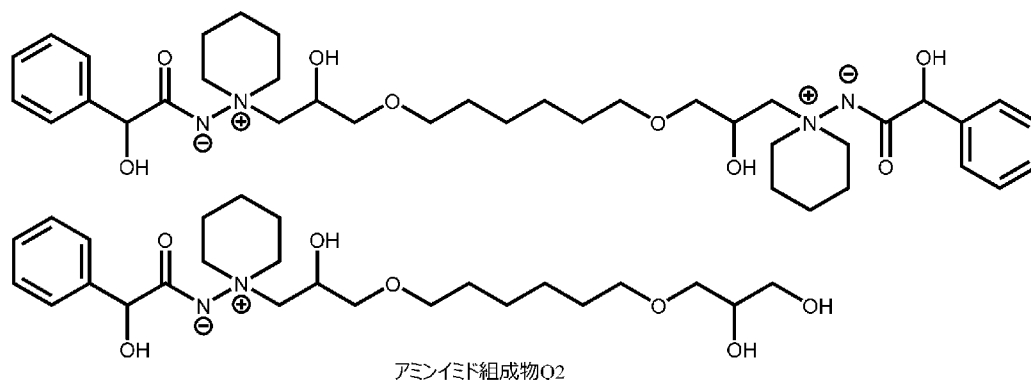
[化38]



[0161] [合成例 17]

D, L-マンデル酸メチル 2.52 g (0.015 モル)、1-アミノピペリジン 1.5 g (0.015 モル)、1,6-ヘキサンジオールジグリシジルエーテル 2.30 g (0.01 モル)、エタノール 3.0 g (0.7 モル) を混合し、溶液を得た。この溶液を 55℃ で 1 日間攪拌しながら反応させ、反応液を得た。この生成物を、ヘキサンで洗浄を繰り返すことで、未反応の原料残渣を除去し、有機層を得た。この有機層を 55℃ で再度減圧濃縮することにより、下記式に示す 2 種のアミンイミド化合物の混合物である薄黄色の液状アミンイミド組成物 Q2 (化合物 Q2) : 4.91 g を得た。前記赤外線吸収スペクトルの測定方法により、IR (neat) : 1600 cm^{-1} の測定値を得た。質量分析では、 $m/z = 699.7$ 及び 483.4 のピークが観測された。 $m/z = 699.7$ はアミンイミド化合物 Q と同様の構造であり、 $m/z = 483.4$ は片側がジオール末端の構造を持つ化合物である。これにより、下記式に示すアミンイミド組成物 Q2 が得られたことが分かった。

[0162] [化39]



[0163] [合成例 18]

こはく酸ジメチル2.92 g (0.02 mol)、1-アミノピペリジン2.01 g (0.02 mol)、2-エチルヘキシルグリシジルエーテル3.73 g (0.02 mol)、エタノール4.0 g (0.09 mol)を混合し、溶液を得た。この溶液を55℃で1日間攪拌しながら反応させ、反応液を得た。得られた反応液を55℃で減圧濃縮することにより、エタノール、副生したアルコール、未反応の原料を留去することで、液状の生成物を得た。この生成物を、ヘキサンで洗浄を繰り返すことで、未反応の原料残渣を除去し、有機層を得た。この有機層を55℃で再度減圧濃縮することにより薄黄色の液状アミンイミド化合物R（化合物R）：4.87 g（収率60.7%）を得た。前記赤外線吸収スペクトルの測定方法により、IR（neat）：1578 cm⁻¹の測定値を得た。質量分析では、m/z = 401.5のピークが観測された。これにより、下記式に示すアミンイミド化合物Rが得られたことが分かった。

[0164] [化40]

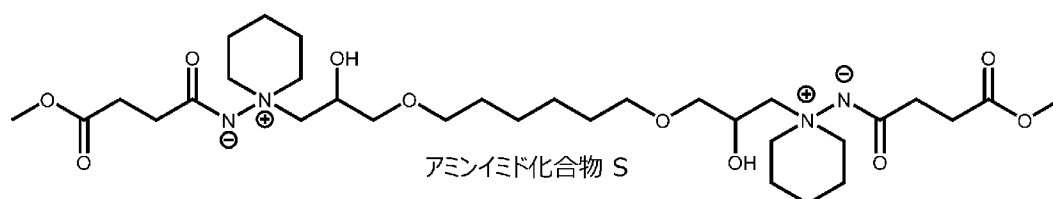
アミンイミド化合物 R

[0165] [合成例 19]

こはく酸ジメチル4.38 g (0.03モル)、1-アミノピペリジン3.00 g (0.03モル)、1,6-ヘキサンジオールジグリシジルエーテル3.45 g (0.015モル)、エタノール4.0 g (0.09モル)を混合し、溶液を得た。この溶液を55℃で1日間攪拌しながら反応させ、生成物を得た。この生成物を、ヘキサンで洗浄を繰り返すことで、未反応の原料残渣を除去し、有機層を得た。この有機層を55℃で再度減圧濃縮することにより薄黄色の液状アミンイミド化合物S（化合物S）：10.06 g（収率81.3%）を得た。前記赤外線吸収スペクトルの測定方法により、1

R (n e a t) : 1578 cm^{-1} の測定値を得た。質量分析では、 $m/z = 659.7$ のピークが観測された。これにより、下記式に示すアミンイミド化合物 S が得られたことが分かった。

[0166] [化41]

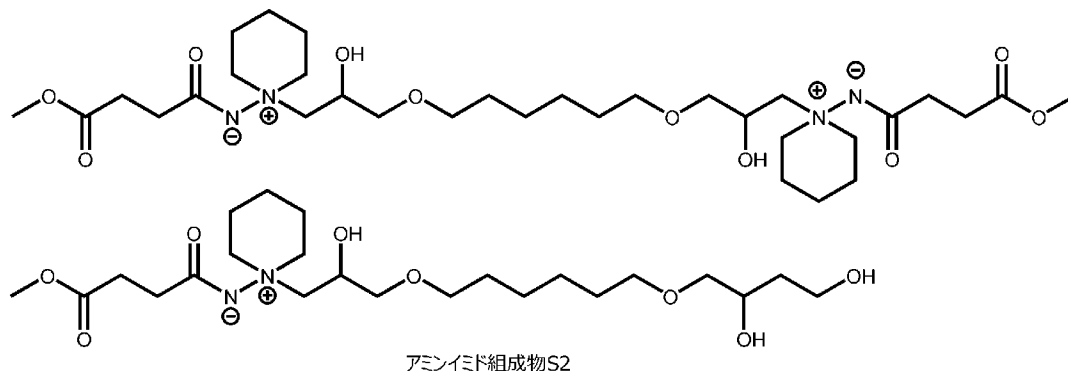


[0167] [合成例 20]

こはく酸ジメチル 3.28 g (0.023 モル)、1-アミノピペリジン 2.25 g (0.023 モル)、1,6-ヘキサンジオールジグリシジルエーテル 3.45 g (0.015 モル)、エタノール 4.0 g (0.09 モル) を混合し、溶液を得た。この溶液を 55°C で 1 日間攪拌しながら反応させ、生成物を得た。この生成物を、ヘキサンで洗浄を繰り返すことで、未反応の原料残渣を除去し、有機層を得た。この有機層を 55°C で再度減圧濃縮することにより、下記式に示す 2 種のアミンイミド化合物の混合物である薄黄色の液状アミンイミド組成物 S 2 (化合物 S 2) : 8.31 g を得た。前記赤外線吸収スペクトルの測定方法により、IR (n e a t) : 1578 cm^{-1} の測定値を得た。質量分析では、 $m/z = 659.6$ 及び 477.5 のピークが観測された。 $m/z = 659.6$ はアミンイミド化合物 O と同様の構造であり、 $m/z = 477.5$ は片側がジオール末端の構造を持つ化合物である。これにより、下記式に示すアミンイミド組成物 S 2 が得られたことが分かった。

[0168]

[化42]

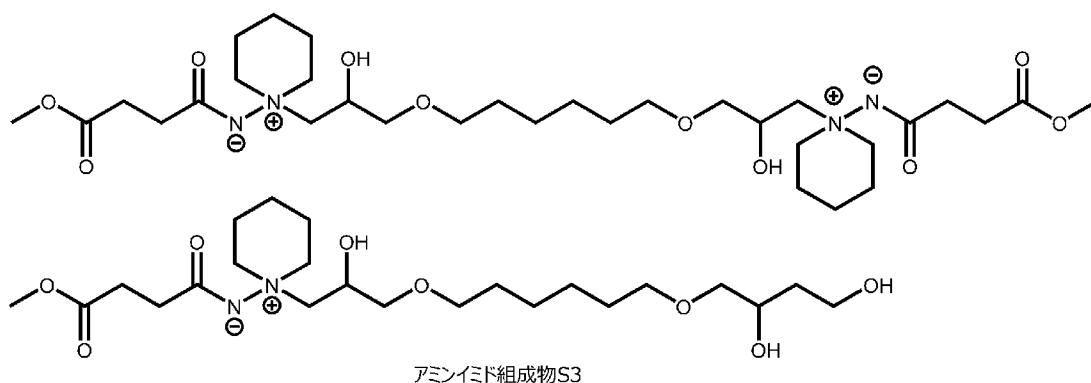


[0169] [合成例 2 1]

こはく酸ジメチル 2.93 g (0.020 モル)、1-アミノピペリジン 2.00 g (0.020 モル)、1,6-ヘキサジオールジグリシジルエーテル 4.61 g (0.020 モル)、エタノール 4.0 g (0.09 モル) を混合し、溶液を得た。この溶液を 55℃ で 1 日間攪拌しながら反応させ、生成物を得た。この生成物を、ヘキサンで洗浄を繰り返すことで、未反応の原料残渣を除去し、有機層を得た。この有機層を 55℃ で再度減圧濃縮することにより、下記式に示す 2 種のアミンイミド化合物の混合物である薄黄色の液状アミンイミド組成物 S3 (化合物 S3) : 7.31 g を得た。前記赤外線吸収スペクトルの測定方法により、IR (neat) : 1578 cm^{-1} の測定値を得た。質量分析では、 $m/z = 659.6$ 及び 477.5 のピークが観測された。 $m/z = 659.6$ はアミンイミド化合物 O と同様の構造であり、 $m/z = 477.5$ は片側がジオール末端の構造を持つ化合物である。これにより、下記式に示すアミンイミド組成物 S3 が得られたことが分かった。

[0170]

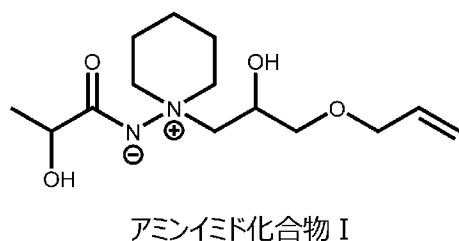
[化43]



[0171] [合成例 2 2]

乳酸エチル 14.18 g (0.12 モル)、1-アミノピペリジン 12.02 g (0.12 モル)、アリルグリシジルエーテル 13.70 g (0.12 モル)、t-ブチルアルコール 19.95 g (0.27 モル) を混合し、溶液を得た。この溶液を 55℃ で 3 日間攪拌しながら反応させ、反応液を得た。得られた反応液を 55℃ で減圧濃縮することにより、t-ブチルアルコール、副生したアルコール、未反応の原料を留去することで、固体の生成物を得た。この生成物を、酢酸エチルに溶解させ、分液ロートで水洗を繰り返すことで、未反応の原料残渣を除去し、有機層を得た。この有機層を 55℃ で再度減圧濃縮することにより薄黄色の結晶性固体アミンイミド化合物 I (化合物 I) : 29.14 g (収率 84.8%) を得た。前記赤外線吸収スペクトルの測定方法により、IR (KBr) : 1592 cm^{-1} の測定値を得た。質量分析では、 $m/z = 287.4$ のピークが観測された。これにより、下記式に示すアミンイミド化合物 I が得られたことが分かった。

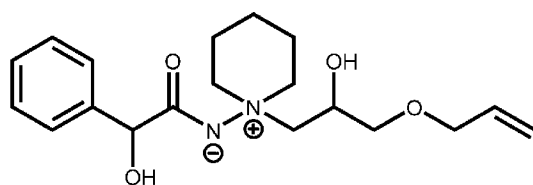
[0172] [化44]



[0173] [合成例 2 3]

D L－マンデル酸メチル 19.94 g (0.12 モル)、1－アミノピペリジン 12.02 g (0.12 モル)、アリルグリシジルエーテル 13.70 g (0.12 モル)、t－ブチルアルコール 22.83 g (0.31 モル) を混合し、溶液を得た。この溶液を 55℃で4日間攪拌しながら反応させ、反応液を得た。得られた反応液を 55℃で減圧濃縮することにより、t－ブチルアルコール、副生したアルコール、未反応の原料を留去することで、固体の生成物を得た。この生成物を、酢酸エチルを用いて再結晶させることにより白色の結晶性固体アミンイミド化合物 J (化合物 J) : 30.11 g (収率 72.0%) を得た。前記赤外線吸収スペクトルの測定方法により、IR (KBr) : 1594 cm^{-1} の測定値を得た。質量分析では、 $m/z = 349.3$ のピークが観測された。これにより、下記式に示すアミンイミド化合物 J が得られたことが分かった。

[0174] [化45]



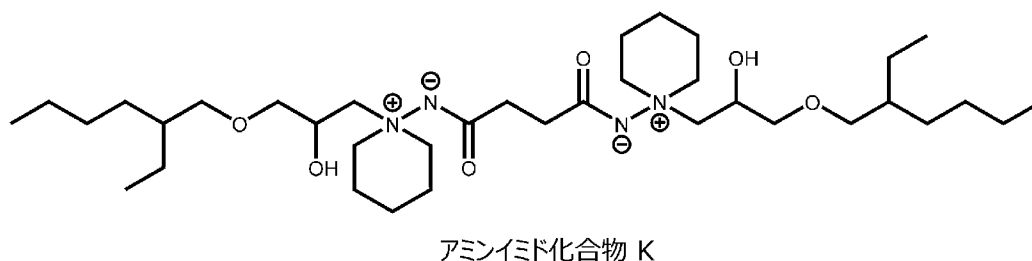
アミンイミド化合物 J

[0175] [合成例 2 4]

こはく酸ジメチル 8.77 g (0.06 モル)、1－アミノピペリジン 12.02 g (0.12 モル)、2－エチルヘキシルグリシジルエーテル 22.54 g (0.12 モル)、t－ブチルアルコール 21.67 g (0.29 モル) を混合し、溶液を得た。この溶液を 55℃で4日間攪拌しながら反応させ、反応液を得た。得られた反応液を 55℃で減圧濃縮することにより、t－ブチルアルコール、副生したアルコール、未反応の原料を留去することで、固体の生成物を得た。この生成物を、酢酸エチルに溶解させ、分液ロートで水洗を繰り返すことで、未反応の原料残渣を除去した。この有機層を 5

5℃で再度減圧濃縮することにより白色の非結晶性固体アミンイミド化合物 K（化合物 K）：33.05 g（収率84.1%）を得た。前記赤外線吸収スペクトルの測定方法により、IR（KBr）：1570 cm⁻¹の測定値を得た。質量分析では、m/z = 655.8のピークが観測された。これにより、下記式に示すアミンイミド化合物 K が得られたことが分かった。

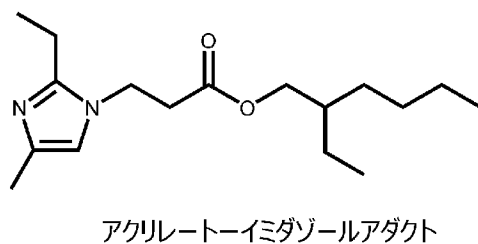
[0176] [化46]



[0177] [比較合成例 1]

2-エチル-4-メチルイミダゾール 13.22 g（0.12モル）、アクリル酸 2-エチルヘキシル 22.11 g（0.12モル）を混合し、溶液を得た。この溶液を 120℃で4時間攪拌しながら反応させることで、液状の生成物を得た。この生成物を、酢酸エチルに溶解させ、分液ロートで水洗を繰り返すことで、未反応の原料を除去し、有機層を得た。この有機層を 55℃で減圧濃縮することにより、下記式に示す、黄色の液状アクリレート-イミダゾールアダクト：33.46 g（収率33.46%）を得た。質量分析では、m/z = 294.4のピークが観測された。

[0178] [化47]



[0179] 合成例 1～24、比較合成例 1 の評価結果を、下記表 1 に示す。

[0180]

[表1]

合成例	化合物	性状	粘度 (@25℃)	融点	N-N結合分解温度		
					頂点温度 (T _{peak})	開始温度 (T _{onset})	T _{peak} -T _{onset}
			Pa·s	℃	℃	℃	℃
合成例 1	アミンイミド化合物 A	液状	4.0	—	205.0	177.2	27.8
合成例 2	アミンイミド化合物 B	液状	844.0	—	211.7	184.5	27.2
合成例 3	アミンイミド化合物 C	液状	10.3	—	119.0	97.3	21.7
合成例 4	アミンイミド化合物 D	液状	0.2	—	181.5	146.0	35.5
合成例 5	アミンイミド化合物 E	液状	29.6	—	176.0	139.9	36.1
合成例 6	アミンイミド化合物 F	液状	0.8	—	179.3	150.7	28.6
合成例 7	アミンイミド化合物 G	液状	62.9	—	147.1	121.9	25.2
合成例 8	アミンイミド化合物 H	液状	83.0	—	123.3	100.6	22.7
合成例 9	アミンイミド化合物 L	液状	207.1	—	127.3	109.2	18.1
合成例 10	アミンイミド化合物 M	液状	132.2	—	128.3	107.8	20.5
合成例 11	アミンイミド化合物 N	液状	3.1	—	162.9	136.7	26.2
合成例 12	アミンイミド化合物 O	液状	306.4	—	168.4	131.6	36.8
合成例 13	アミンイミド組成物 O2	液状	17.4	—	166.9	134.7	32.2
合成例 14	アミンイミド組成物 O3	液状	205.3	—	166.5	138.4	28.1
合成例 15	アミンイミド化合物 P	液状	18.1	—	159.7	123.5	36.2
合成例 16	アミンイミド化合物 Q	液状	1180.0	—	163.5	132.1	31.4
合成例 17	アミンイミド組成物 Q2	液状	219.6	—	162.7	130.1	32.6
合成例 18	アミンイミド化合物 R	液状	11.3	—	205.9	158.3	47.6
合成例 19	アミンイミド化合物 S	液状	46.9	—	211.7	171.7	40.0
合成例 20	アミンイミド組成物 S2	液状	79.1	—	210.1	172.5	37.6
合成例 21	アミンイミド組成物 S3	液状	12.0	—	209.4	173.1	36.3
合成例 22	アミンイミド化合物 I	固体	—	68.7	160.5	134.9	25.6
合成例 23	アミンイミド化合物 J	固体	—	110.3	158.0	141.2	16.8
合成例 24	アミンイミド化合物 K	固体	—	75.6	182.3	154.9	27.4
比較合成例 1	アクリレートーイミダゾールアダクト	液状	0.1	—	—	—	—

[0181] 次に、[合成例 1 ～ 24]のアミンイミド化合物、アミンイミド組成物、[比較合成例 1]のアクリレートーイミダゾールアダクトを、硬化剤として含むエポキシ樹脂組成物を調製した。

このエポキシ樹脂組成物の諸特性である、硬化性、室温（25℃）での保存安定性をそれぞれ測定した。

[0182] [エポキシ樹脂組成物の調製（1）]

以下の各実施例および比較例で調製したエポキシ樹脂組成物は、下記のエポキシ樹脂を原料として使用した。

エポキシ樹脂：Chang Chun Plastics Co., Ltd 「BE-186EL」

[0183] 各原料を混合するにあたり、エポキシ樹脂100質量部に対し、アミンイミド化合物、アミンイミド組成物、又はアクリレートイミダゾールアダクトが2～20質量部となるように添加した。エポキシ樹脂と、アミンイミド化合物、アミンイミド組成物、又はアクリレートイミダゾールアダクトとをプラスチック製の攪拌容器に入れ、これを自転・公転ミキサー（株式会社シンキー製「ARE-310」）で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。

[0184] [硬化性の評価方法（1）]

硬化性の評価方法（1）としては、調製したエポキシ樹脂組成物を、示差走査熱量計（SII社製「DSC220C」）のアルミニウム容器に10mgを量り取り、200℃のオーブンで3時間加熱した後に急冷し、加熱前後のDSC発熱量の変化から反応率を算出し、この反応率により硬化性を評価した。

反応率が95%以上の場合を「◎」、95%未満90%以上の場合を「○」、90%未満80%以上の場合を「△」、80%未満の場合を「×」と判定した。

[0185] [保存安定性の評価方法（1）]

保存安定性の評価方法（1）としては、作製直後のエポキシ樹脂組成物の25℃における粘度を「 η_1 」とし、25℃の恒温槽に3日間保存したエポキシ樹脂組成物の25℃における粘度を「 η_2 」とした場合、 η_2/η_1 で算出した値を粘度上昇倍率として求め、この粘度上昇倍率により、室温での保存安定性を評価した。

粘度上昇倍率が1.5倍未満である場合を「◎」、1.5倍以上2.0倍未満の場合を「○」、2.0倍以上3.0倍未満の場合を「△」、3.0倍

以上の場合を「×」と判定した。

[0186] [実施例 1]

エポキシ樹脂 (Chang Chun Plastics Co., Ltd 製 「BE-186EL」) 20g とアミンイミド化合物 A 1.6g を、プラスチック製の攪拌容器に入れ、これを自転・公転ミキサー (株式会社シンキー製 「ARE-310」) で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。上記硬化性の評価方法 (1) により硬化性を評価し、上記保存安定性の評価方法 (1) により室温での保存安定性を評価した。

[0187] [実施例 2]

アミンイミド化合物 A の添加量を 6.0g に変更した以外は、実施例 1 と同様にエポキシ樹脂組成物を調製し、硬化性、室温での保存安定性を評価した。

[0188] [実施例 3]

アミンイミド化合物 A をアミンイミド化合物 B に変更し、アミンイミド化合物 B の添加量を 2.0g に変更した以外は、実施例 1 と同様にエポキシ樹脂組成物を調製し、硬化性、室温での保存安定性を評価した。

[0189] [実施例 4]

アミンイミド化合物 A をアミンイミド化合物 C に変更し、アミンイミド化合物 C の添加量を 6.0g に変更した以外は、実施例 1 と同様にエポキシ樹脂組成物を調製し、硬化性、室温での保存安定性を評価した。

[0190] [実施例 5]

アミンイミド化合物 A をアミンイミド化合物 C に変更し、アミンイミド化合物 C の添加量を 0.4g に変更した以外は、実施例 1 と同様にエポキシ樹脂組成物を調製し、硬化性、室温での保存安定性を評価した。

[0191] [実施例 6]

アミンイミド化合物 A をアミンイミド化合物 C に変更した以外は、実施例 1 と同様にエポキシ樹脂組成物を調製し、硬化性、室温での保存安定性を評価した。

[0192] [実施例 7]

アミンイミド化合物 A をアミンイミド化合物 D に変更した以外は、実施例 1 と同様にエポキシ樹脂組成物を調製し、硬化性、室温での保存安定性を評価した。

[0193] [実施例 8]

アミンイミド化合物 A をアミンイミド化合物 E に変更した以外は、実施例 1 と同様にエポキシ樹脂組成物を調製し、硬化性、室温での保存安定性を評価した。

[0194] [実施例 9]

アミンイミド化合物 A をアミンイミド化合物 F に変更した以外は、実施例 1 と同様にエポキシ樹脂組成物を調製し、硬化性、室温での保存安定性を評価した。

[0195] [実施例 10]

アミンイミド化合物 A をアミンイミド化合物 G に変更した以外は、実施例 1 と同様にエポキシ樹脂組成物を調製し、硬化性、室温での保存安定性を評価した。

[0196] [実施例 11]

アミンイミド化合物 C をアミンイミド化合物 H に変更した以外は、実施例 5 と同様にエポキシ樹脂組成物を調製し、硬化性、室温での保存安定性を評価した。

[0197] [実施例 12]

アミンイミド化合物 A をアミンイミド化合物 H に変更した以外は、実施例 1 と同様にエポキシ樹脂組成物を調製し、硬化性、室温での保存安定性を評価した。

[0198] [実施例 13]

アミンイミド化合物 A をアミンイミド化合物 L に変更した以外は、実施例 1 と同様にエポキシ樹脂組成物を調製し、硬化性、室温での保存安定性を評価した。

[0199] [実施例 1 4]

アミンイミド化合物 A をアミンイミド化合物 M に変更した以外は、実施例 1 と同様にエポキシ樹脂組成物を調製し、硬化性、室温での保存安定性を評価した。

[0200] [実施例 1 5]

アミンイミド化合物 A をアミンイミド化合物 N に変更した以外は、実施例 1 と同様にエポキシ樹脂組成物を調製し、硬化性、室温での保存安定性を評価した。

[0201] [実施例 1 6]

アミンイミド化合物 A をアミンイミド化合物 N に変更した以外は、実施例 2 と同様にエポキシ樹脂組成物を調製し、硬化性、室温での保存安定性を評価した。

[0202] [実施例 1 7]

アミンイミド化合物 A をアミンイミド化合物 O に変更した以外は、実施例 1 と同様にエポキシ樹脂組成物を調製し、硬化性、室温での保存安定性を評価した。

[0203] [実施例 1 8]

アミンイミド化合物 A をアミンイミド化合物 O に変更した以外は、実施例 2 と同様にエポキシ樹脂組成物を調製し、硬化性、室温での保存安定性を評価した。

[0204] [実施例 1 9]

アミンイミド化合物 A をアミンイミド組成物 O 2 に変更した以外は、実施例 1 と同様にエポキシ樹脂組成物を調製し、硬化性、室温での保存安定性を評価した。

[0205] [実施例 2 0]

アミンイミド化合物 A をアミンイミド組成物 O 3 に変更した以外は、実施例 1 と同様にエポキシ樹脂組成物を調製し、硬化性、室温での保存安定性を評価した。

[0206] [実施例 2 1]

アミンイミド化合物 A をアミンイミド組成物 O 3 に変更した以外は、実施例 2 と同様にエポキシ樹脂組成物を調製し、硬化性、室温での保存安定性を評価した。

[0207] [実施例 2 2]

アミンイミド化合物 A をアミンイミド化合物 P に変更した以外は、実施例 1 と同様にエポキシ樹脂組成物を調製し、硬化性、室温での保存安定性を評価した。

[0208] [実施例 2 3]

アミンイミド化合物 A をアミンイミド化合物 Q に変更した以外は、実施例 1 と同様にエポキシ樹脂組成物を調製し、硬化性、室温での保存安定性を評価した。

[0209] [実施例 2 4]

アミンイミド化合物 A をアミンイミド組成物 Q 2 に変更した以外は、実施例 1 と同様にエポキシ樹脂組成物を調製し、硬化性、室温での保存安定性を評価した。

[0210] [実施例 2 5]

アミンイミド化合物 A をアミンイミド化合物 R に変更した以外は、実施例 1 と同様にエポキシ樹脂組成物を調製し、硬化性、室温での保存安定性を評価した。

[0211] [実施例 2 6]

アミンイミド化合物 A をアミンイミド化合物 R に変更した以外は、実施例 2 と同様にエポキシ樹脂組成物を調製し、硬化性、室温での保存安定性を評価した。

[0212] [実施例 2 7]

アミンイミド化合物 A をアミンイミド化合物 S に変更した以外は、実施例 1 と同様にエポキシ樹脂組成物を調製し、硬化性、室温での保存安定性を評価した。

[0213] [実施例 28]

アミンイミド化合物 A をアミンイミド化合物 S に変更した以外は、実施例 2 と同様にエポキシ樹脂組成物を調製し、硬化性、室温での保存安定性を評価した。

[0214] [実施例 29]

アミンイミド化合物 A をアミンイミド組成物 S 2 に変更した以外は、実施例 1 と同様にエポキシ樹脂組成物を調製し、硬化性、室温での保存安定性を評価した。

[0215] [実施例 30]

アミンイミド化合物 A をアミンイミド組成物 S 2 に変更した以外は、実施例 2 と同様にエポキシ樹脂組成物を調製し、硬化性、室温での保存安定性を評価した。

[0216] [実施例 31]

アミンイミド化合物 A をアミンイミド組成物 S 3 に変更した以外は、実施例 2 と同様にエポキシ樹脂組成物を調製し、硬化性、室温での保存安定性を評価した。

[0217] [実施例 59]

アミンイミド化合物 A をアミンイミド化合物 I に変更した以外は、実施例 1 と同様にエポキシ樹脂組成物を調製し、硬化性、室温での保存安定性を評価した。

[0218] [実施例 60]

アミンイミド化合物 A をアミンイミド化合物 J に変更した以外は、実施例 1 と同様にエポキシ樹脂組成物を調製し、硬化性、室温での保存安定性を評価した。

[0219] [実施例 61]

アミンイミド化合物 A をアミンイミド化合物 K に変更した以外は、実施例 1 と同様にエポキシ樹脂組成物を調製し、硬化性、室温での保存安定性を評価した。

[0220] [比較例 1]

アミンイミド化合物 A を DBU（東京化成工業製「ジアザビスクロウンデセン」）に変更した以外は、実施例 1 と同様にエポキシ樹脂組成物を調製し、硬化性、室温での保存安定性を評価した。

[0221] [比較例 2]

アミンイミド化合物 A を DBU-フェノール塩（サンアプロ株式会社製「U-CAT SA1」）に変更した以外は、実施例 1 と同様にエポキシ樹脂組成物を調製し、硬化性、室温での保存安定性を評価した。

[0222] [比較例 3]

アミンイミド化合物 A をアクリレートイミダゾールアダクトに変更した以外は、実施例 1 と同様にエポキシ樹脂組成物を調製し、硬化性、室温での保存安定性を評価した。

[0223] 実施例 1 ～ 3 1、5 9 ～ 6 1、比較例 1 ～ 3 の評価結果を、表 2 ～ 表 6 に示す。

[0224]

[表2]

	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
エポキシ樹脂	BE-186EL	質量部	100	100	100	100	100	100	100	100
	アミンイミド化合物A	質量部	8							
	アミンイミド化合物B	質量部		30						
	アミンイミド化合物C	質量部			10	30				
	アミンイミド化合物D	質量部					2	8		
	アミンイミド化合物E	質量部							8	
	アミンイミド化合物F	質量部								8
	アミンイミド化合物G	質量部								
	アミンイミド化合物H	質量部								
	アミンイミド化合物I	質量部								
	アミンイミド化合物M	質量部								
	アミンイミド化合物N	質量部								
	アミンイミド化合物O	質量部								
	アミンイミド組成物 O2	質量部								
	アミンイミド組成物O3	質量部								
	アミンイミド化合物P	質量部								
	アミンイミド化合物Q	質量部								
	アミンイミド組成物Q2	質量部								
	アミンイミド化合物R	質量部								
	アミンイミド化合物S	質量部								
	アミンイミド組成物S2	質量部								
	アミンイミド組成物S3	質量部								
	アミンイミド化合物 I	質量部								
	アミンイミド化合物 J	質量部								
アミンイミド化合物 K	質量部									
DBU	質量部									
U-CAT SA1	質量部									
アクリレート-イミダゾールアダクト	質量部									
硬化剤	硬化性（１）	△	◎	○	◎	◎	◎	○	○	○
	保存安定性（１）	◎	○	◎	○	◎	◎	◎	◎	◎

[0225] [表3]

	単位	実施例 1 0	実施例 1 1	実施例 1 2	実施例 1 3	実施例 1 4	実施例 1 5	実施例 1 6
エポキシ樹脂	BE-186EL	100	100	100	100	100	100	100
	アミンイミド化合物A							
	アミンイミド化合物B							
	アミンイミド化合物C							
	アミンイミド化合物D							
	アミンイミド化合物E							
	アミンイミド化合物F							
	アミンイミド化合物G	8						
	アミンイミド化合物H		2	8				
	アミンイミド化合物L				8			
	アミンイミド化合物M					8		
	アミンイミド化合物N						8	30
	アミンイミド化合物O							
	アミンイミド組成物O2							
	アミンイミド組成物O3							
	アミンイミド化合物P							
	アミンイミド化合物Q							
	アミンイミド組成物Q2							
	アミンイミド化合物R							
	アミンイミド化合物S							
硬化剤	アミンイミド組成物S2							
	アミンイミド組成物S3							
	アミンイミド化合物I							
	アミンイミド化合物J							
	アミンイミド化合物K							
	DBU							
	U-CAT SA1							
	アクリレート-イミダゾールアダクト							
	硬化性 (1)	◎	○	◎	◎	◎	◎	◎
	保存安定性 (1)	◎	◎	◎	◎	◎	◎	◎

[0226]

[表4]

	単位	実施例 17	実施例18	実施例 19	実施例 2 0	実施例 2 1	実施例 2 2	実施例 2 3	実施例 2 4	実施例 2 5
エポキシ樹脂	BE-186EL	100	100	100	100	100	100	100	100	100
	アミノイド化合物A									
	アミノイド化合物B									
	アミノイド化合物C									
	アミノイド化合物D									
	アミノイド化合物E									
硬化剤	アミノイド化合物F									
	アミノイド化合物G									
	アミノイド化合物H									
	アミノイド化合物I									
	アミノイド化合物M									
	アミノイド化合物N									
	アミノイド化合物O	8	30							
	アミノイミ組成物O2			8						
	アミノイミ組成物O3				8	30				
	アミノイミド化合物P						8			
	アミノイミド化合物Q							8		
	アミノイミド組成物Q2								8	
	アミノイミド化合物R									
	アミノイミド化合物S									
	アミノイミド組成物S2									
	アミノイミド組成物S3									
	アミノイミド化合物 I									
	アミノイミド化合物 J									
	アミノイミド化合物 K									
	DBU									
	U-CAT SA1									
	アクリレート-イミダゾールアダクト									
	硬化性（1）									
	保存安定性（1）									

[0227] [表5]

		単位	実施例26	実施例27	実施例28	実施例29	実施例30	実施例31
エポキシ樹脂	BE-186EL	質量部	100	100	100	100	100	100
	アミンイミド化合物A	質量部						
	アミンイミド化合物B	質量部						
	アミンイミド化合物C	質量部						
	アミンイミド化合物D	質量部						
	アミンイミド化合物E	質量部						
	アミンイミド化合物F	質量部						
	アミンイミド化合物G	質量部						
	アミンイミド化合物H	質量部						
	アミンイミド化合物L	質量部						
	アミンイミド化合物M	質量部						
	アミンイミド化合物N	質量部						
	アミンイミド化合物O	質量部						
	アミンイミド組成物O2	質量部						
	アミンイミド組成物O3	質量部						
	アミンイミド化合物P	質量部						
	アミンイミド化合物Q	質量部						
	アミンイミド組成物Q2	質量部						
	アミンイミド化合物R	質量部	30					
	アミンイミド化合物S	質量部		8	30			
硬化剤	アミンイミド組成物S2	質量部				8	30	
	アミンイミド組成物S3	質量部						30
	アミンイミド化合物I	質量部						
	アミンイミド化合物J	質量部						
	アミンイミド化合物K	質量部						
	DBU	質量部						
	U-CAT SA1	質量部						
	アクリレート-イミダゾールアダクト	質量部						
	硬化性 (1)		○	○	○	○	○	○
	保存安定性 (1)		◎	◎	◎	◎	◎	◎

[0228]

[表6]

エポキシ樹脂	単位	実施例 5 9	実施例 6 0	実施例 6 1	比較例 1	比較例 2	比較例 3
BE-186EL	質量部	100	100	100	100	100	100
アミンイミド化合物A	質量部						
アミンイミド化合物B	質量部						
アミンイミド化合物C	質量部						
アミンイミド化合物D	質量部						
アミンイミド化合物E	質量部						
アミンイミド化合物F	質量部						
アミンイミド化合物G	質量部						
アミンイミド化合物H	質量部						
アミンイミド化合物L	質量部						
アミンイミド化合物M	質量部						
アミンイミド化合物N	質量部						
アミンイミド化合物O	質量部						
アミンイミド組成物O2	質量部						
アミンイミド組成物O3	質量部						
アミンイミド化合物P	質量部						
アミンイミド化合物Q	質量部						
アミンイミド組成物Q2	質量部						
アミンイミド化合物R	質量部						
アミンイミド化合物S	質量部						
アミンイミド組成物S2	質量部						
アミンイミド組成物S3	質量部						
アミンイミド化合物I	質量部	8					
アミンイミド化合物J	質量部		8				
アミンイミド化合物K	質量部			8			
DBU	質量部			8			
U-CAT SA1	質量部					8	
アクリレートイミダゾールアダクト	質量部						8
硬化性 (1)		○	△	◎	◎	◎	◎
保存安定性 (1)		◎	△	◎	×	×	×

[0229] [エポキシ樹脂組成物の調製 (2)]

以下の各実施例及び比較例で調製したエポキシ樹脂組成物は、下記のエポ

キシ樹脂、酸無水物を原料として使用した。

エポキシ樹脂：Chang Chun Plastics Co.,
Ltd 「BE-186EL」

酸無水物：日立化成株式会社製 「HN-5500」

[0230] 各原料を混合するにあたり、エポキシ樹脂中のエポキシ基及び酸無水物中の酸無水物基の当量比が、酸無水物基／エポキシ基＝1.00となるように添加した。

また、エポキシ樹脂100質量部に対し、表7～表9に示す配合量に従って各原料を添加した。

エポキシ樹脂とアミンイミド化合物、アミンイミド組成物、DBU、UCAT SA1、又はアクリレートイミダゾールアダクト（以下、アミンイミド化合物等と記載する場合がある）とをプラスチック製の攪拌容器に入れ、これを自転・公転ミキサー（株式会社シンキー製 「ARE-310」）で攪拌混合することにより、エポキシ樹脂とアミンイミド化合物等をプレ混合した。次いで、所定量の酸無水物をプレ混合物に加え、さらに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。

[0231] [硬化性の評価方法（2）]

硬化性の評価方法（2）としては、調製したエポキシ樹脂組成物を、以下の条件で加熱し評価を行った。100Pa・sに到達した温度がDBUを硬化促進剤とした場合と比較して、+15℃未満である場合を「◎」、+15℃以上～+30℃未満である場合を「○」、+30℃以上～+45℃未満の場合を「△」、+45℃以上の場合を「×」と判定した。

<測定条件>

・装置：粘弾性測定装置（ThermoScientific社製 「HAKE MARS」）

・試料質量：約0.5mL

・プレート形状：平行

・測定モード：せん断速度一定（ $d\gamma/dt = 1.0\text{ s}^{-1}$ ）

・測定温度：40℃～240℃

・昇温速度：5℃／分

[0232] [保存安定性の評価方法（２）]

保存安定性の評価方法（２）としては、作製直後のエポキシ樹脂組成物の25℃における粘度を「 $\eta 1$ 」とし、25℃の恒温槽に3日間保存したエポキシ樹脂組成物の25℃における粘度を「 $\eta 2$ 」とした場合、 $\eta 2 / \eta 1$ で算出した値を粘度上昇倍率として求めた。粘度上昇倍率が3.0倍未満である場合を「◎」、3.0倍以上7.0倍未満の場合を「○」、7.0倍以上10.0倍未満の場合を「△」、10.0倍以上の場合を「×」と判定した。

[0233] [プリプレグ表面平滑性の評価方法]

調製したエポキシ樹脂組成物を、炭素繊維布（東レ株式会社製「トレカクロスC06343」）（目付198g／m²）に5分間含浸させ、170℃のオーブンで10分間加熱してプリプレグを作製した。そして、得られたプリプレグの表面状態の観察を行った。表面が平滑なものを「○」、表面にボイド等による凹凸が観察されたものを「×」と判定した。

[0234] [プリプレグタック性の評価方法]

調製したエポキシ樹脂組成物を、炭素繊維布（東レ株式会社製「トレカクロスC06343」）（目付198g／m²）に5分間含浸させ、170℃のオーブンで10分間加熱してプリプレグを作製した。そして、得られたプリプレグのタック性を確認した。タックがないものを「○」、タックがあるものを「×」と判定した。

[0235] [浸透性の評価方法]

加圧ろ過器にろ布として炭素繊維布（東レ株式会社製「トレカクロスC06343」）（目付198g／m²）を挟み込み、室温で、調製したエポキシ樹脂組成物を0.2L／分の窒素により加圧ろ過した。示差走査熱量計（SII社製「DSC220C」）のアルミニウム容器に、ろ液として得られたエポキシ樹脂組成物10mgを量り取り、180℃のオーブンで1.5

時間加熱した後に急冷し、ろ過前後のDSC発熱量の変化から反応率を算出した。反応率が95%以上の場合を「○」、95%未満の場合を「×」と判定した。

[0236] なお、当該評価において、アミンイミド化合物等を硬化促進剤として使用した際、当該硬化促進剤が浸透性に優れる場合には、加圧ろ過前後におけるエポキシ樹脂組成物中の硬化促進剤の量には相違なく、所望の反応性が得られることが確認された。一方で、硬化促進剤が浸透性に劣る場合には、炭素繊維布に硬化促進剤の少なくとも一部がトラップされ、加圧ろ過後におけるエポキシ樹脂組成物中の硬化促進剤が減少し、所望の反応性が得られない結果となることが確認された。

[0237] [実施例32]

エポキシ樹脂 (Chang Chun Plastics Co., Ltd 製 「BE-186EL」) 20g とアミンイミド化合物A 0.6g をプラスチック製の攪拌容器に入れ、これを自転・公転ミキサー (株式会社シンキー製 「ARE-310」) で攪拌混合した。次いで、酸無水物 (日立化成株式会社製 「HN-5500」) 17.9g を加え、さらに攪拌混合することによりエポキシ樹脂組成物を調製し、上記硬化性の評価方法 (2) により硬化性を評価し、上記保存安定性の評価方法 (2) により室温での保存安定性を評価し、また、プリプレグ表面平滑性、プリプレグタック性、浸透性についても評価した。

[0238] [実施例33]

アミンイミド化合物Aの添加量を3.6gに変更した以外は、実施例32と同様にエポキシ樹脂組成物を調製し、硬化性、室温での保存安定性、プリプレグ表面平滑性、プリプレグタック性、浸透性を評価した。

[0239] [実施例34]

アミンイミド化合物Aをアミンイミド化合物Bに変更した以外は、実施例32と同様にエポキシ樹脂組成物を調製し、硬化性、室温での保存安定性、プリプレグ表面平滑性、プリプレグタック性、浸透性を評価した。

[0240] [実施例 3 5]

アミンイミド化合物 A をアミンイミド化合物 B に変更し、アミンイミド化合物 B の添加量を 3.6 g に変更した以外は、実施例 3 2 と同様にエポキシ樹脂組成物を調製し、硬化性、室温での保存安定性、プリプレグ表面平滑性、プリプレグタック性、浸透性を評価した。

[0241] [実施例 3 6]

アミンイミド化合物 A をアミンイミド化合物 B に変更し、アミンイミド化合物 B の添加量を 4.8 g に変更した以外は、実施例 3 2 と同様にエポキシ樹脂組成物を調製し、硬化性、室温での保存安定性、プリプレグ表面平滑性、プリプレグタック性、浸透性を評価した。

[0242] [実施例 3 7]

アミンイミド化合物 A をアミンイミド化合物 C に変更し、アミンイミド化合物 C の添加量を 0.2 g に変更した以外は、実施例 3 2 と同様にエポキシ樹脂組成物を調製し、硬化性、室温での保存安定性、プリプレグ表面平滑性、プリプレグタック性、浸透性を評価した。

[0243] [実施例 3 8]

アミンイミド化合物 A をアミンイミド化合物 C に変更した以外は、実施例 3 2 と同様にエポキシ樹脂組成物を調製し、硬化性、室温での保存安定性、プリプレグ表面平滑性、プリプレグタック性、浸透性を評価した。

[0244] [実施例 3 9]

アミンイミド化合物 A をアミンイミド化合物 D に変更した以外は、実施例 3 2 と同様にエポキシ樹脂組成物を調製し、硬化性、室温での保存安定性、プリプレグ表面平滑性、プリプレグタック性、浸透性を評価した。

[0245] [実施例 4 0]

アミンイミド化合物 A をアミンイミド化合物 E に変更した以外は、実施例 3 2 と同様にエポキシ樹脂組成物を調製し、硬化性、室温での保存安定性、プリプレグ表面平滑性、プリプレグタック性、浸透性を評価した。

[0246] [実施例 4 1]

アミンイミド化合物Aをアミンイミド化合物Fに変更した以外は、実施例32と同様にエポキシ樹脂組成物を調製し、硬化性、室温での保存安定性、プリプレグ表面平滑性、プリプレグタック性、浸透性を評価した。

[0247] [実施例42]

アミンイミド化合物Aをアミンイミド化合物Fに変更し、アミンイミド化合物Fの添加量を2.0gに変更した以外は、実施例32と同様にエポキシ樹脂組成物を調製し、硬化性、室温での保存安定性、プリプレグ表面平滑性、プリプレグタック性、浸透性を評価した。

[0248] [実施例43]

アミンイミド化合物Aをアミンイミド化合物Gに変更した以外は、実施例32と同様にエポキシ樹脂組成物を調製し、硬化性、室温での保存安定性、プリプレグ表面平滑性、プリプレグタック性、浸透性を評価した。

[0249] [実施例44]

アミンイミド化合物Aをアミンイミド化合物Hに変更し、アミンイミド化合物Hの添加量を0.2gに変更した以外は、実施例32と同様にエポキシ樹脂組成物を調製し、硬化性、室温での保存安定性、プリプレグ表面平滑性、プリプレグタック性、浸透性を評価した。

[0250] [実施例45]

アミンイミド化合物Aをアミンイミド化合物Hに変更した以外は、実施例32と同様にエポキシ樹脂組成物を調製し、硬化性、室温での保存安定性、プリプレグ表面平滑性、プリプレグタック性、浸透性を評価した。

[0251] [実施例46]

アミンイミド化合物Aをアミンイミド化合物Lに変更した以外は、実施例32と同様にエポキシ樹脂組成物を調製し、硬化性、室温での保存安定性、プリプレグ表面平滑性、プリプレグタック性、浸透性を評価した。

[0252] [実施例47]

アミンイミド化合物Aをアミンイミド化合物Mに変更した以外は、実施例32と同様にエポキシ樹脂組成物を調製し、硬化性、室温での保存安定性、

プリプレグ表面平滑性、プリプレグタック性、浸透性を評価した。

[0253] [実施例 4 8]

アミンイミド化合物 A をアミンイミド化合物 N に変更した以外は、実施例 3 2 と同様にエポキシ樹脂組成物を調製し、硬化性、室温での保存安定性、プリプレグ表面平滑性、プリプレグタック性、浸透性を評価した。

[0254] [実施例 4 9]

アミンイミド化合物 A をアミンイミド化合物 O に変更した以外は、実施例 3 2 と同様にエポキシ樹脂組成物を調製し、硬化性、室温での保存安定性、プリプレグ表面平滑性、プリプレグタック性、浸透性を評価した。

[0255] [実施例 5 0]

アミンイミド化合物 A をアミンイミド組成物 O 2 に変更した以外は、実施例 3 2 と同様にエポキシ樹脂組成物を調製し、硬化性、室温での保存安定性、プリプレグ表面平滑性、プリプレグタック性、浸透性を評価した。

[0256] [実施例 5 1]

アミンイミド化合物 A をアミンイミド組成物 O 3 に変更した以外は、実施例 3 2 と同様にエポキシ樹脂組成物を調製し、硬化性、室温での保存安定性、プリプレグ表面平滑性、プリプレグタック性、浸透性を評価した。

[0257] [実施例 5 2]

アミンイミド化合物 A をアミンイミド化合物 P に変更した以外は、実施例 3 2 と同様にエポキシ樹脂組成物を調製し、硬化性、室温での保存安定性、プリプレグ表面平滑性、プリプレグタック性、浸透性を評価した。

[0258] [実施例 5 3]

アミンイミド化合物 A をアミンイミド化合物 Q に変更した以外は、実施例 3 2 と同様にエポキシ樹脂組成物を調製し、硬化性、室温での保存安定性、プリプレグ表面平滑性、プリプレグタック性、浸透性を評価した。

[0259] [実施例 5 4]

アミンイミド化合物 A をアミンイミド組成物 Q 2 に変更した以外は、実施例 3 2 と同様にエポキシ樹脂組成物を調製し、硬化性、室温での保存安定性

、プリプレグ表面平滑性、プリプレグタック性、浸透性を評価した。

[0260] [実施例 5 5]

アミンイミド化合物 A をアミンイミド化合物 R に変更した以外は、実施例 3 2 と同様にエポキシ樹脂組成物を調製し、硬化性、室温での保存安定性、プリプレグ表面平滑性、プリプレグタック性、浸透性を評価した。

[0261] [実施例 5 6]

アミンイミド化合物 A をアミンイミド化合物 S に変更した以外は、実施例 3 2 と同様にエポキシ樹脂組成物を調製し、硬化性、室温での保存安定性、プリプレグ表面平滑性、プリプレグタック性、浸透性を評価した。

[0262] [実施例 5 7]

アミンイミド化合物 A をアミンイミド組成物 S 2 に変更した以外は、実施例 3 2 と同様にエポキシ樹脂組成物を調製し、硬化性、室温での保存安定性、プリプレグ表面平滑性、プリプレグタック性、浸透性を評価した。

[0263] [実施例 5 8]

アミンイミド化合物 A をアミンイミド組成物 S 3 に変更した以外は、実施例 3 2 と同様にエポキシ樹脂組成物を調製し、硬化性、室温での保存安定性、プリプレグ表面平滑性、プリプレグタック性、浸透性を評価した。

[0264] [実施例 6 2]

アミンイミド化合物 A をアミンイミド化合物 I に変更した以外は、実施例 3 2 と同様にエポキシ樹脂組成物を調製し、硬化性、室温での保存安定性、プリプレグ表面平滑性、プリプレグタック性、浸透性を評価した。

[0265] [実施例 6 3]

アミンイミド化合物 A をアミンイミド化合物 J に変更した以外は、実施例 3 2 と同様にエポキシ樹脂組成物を調製し、硬化性、室温での保存安定性、プリプレグ表面平滑性、プリプレグタック性、浸透性を評価した。

[0266] [実施例 6 4]

アミンイミド化合物 A をアミンイミド化合物 K に変更した以外は、実施例 3 2 と同様にエポキシ樹脂組成物を調製し、硬化性、室温での保存安定性、

プリプレグ表面平滑性、プリプレグタック性、浸透性を評価した。

[0267] [比較例 4]

アミンイミド化合物 A を DBU（東京化成工業製「ジアザビスクロウンデセン」）に変更した以外は、実施例 32 と同様にエポキシ樹脂組成物を調製し、硬化性、室温での保存安定性、プリプレグ表面平滑性、プリプレグタック性、浸透性を評価した。

[0268] [比較例 5]

アミンイミド化合物 A を DBU-フェノール塩（サンアプロ株式会社製「U-CAT SA1」）に変更した以外は、実施例 32 と同様にエポキシ樹脂組成物を調製し、硬化性、室温での保存安定性、プリプレグ表面平滑性、プリプレグタック性、浸透性を評価した。

[0269] [比較例 6]

アミンイミド化合物 A をアクリレートイミダゾールアダクト A に変更した以外は、実施例 32 と同様にエポキシ樹脂組成物を調製し、硬化性、室温での保存安定性、プリプレグ表面平滑性、プリプレグタック性、浸透性を評価した。

[0270] [比較例 7]

アミンイミド化合物 A を粉体アミン硬化剤（味の素ファインテクノ社製「アミキュア PN-23」）に変更した以外は、実施例 32 と同様にエポキシ樹脂組成物を調製し、硬化性、室温での保存安定性、プリプレグ表面平滑性、プリプレグタック性、浸透性を評価した。

[0271] 実施例 32～58、62～64、比較例 4～7 の評価結果を、表 7～表 9 に示す。

[0272]

[表7]

[illegible]

[0273]

[表8]

		単位	実施例 4 4	実施例 4 5	実施例 4 6	実施例 4 7	実施例 4 8	実施例 4 9	実施例 5 0	実施例 5 1	実施例 5 2	実施例 5 3	実施例 5 4	実施例 5 5
工ホキシ樹脂	BE-186EL	質量部	100	100	100	100	100	100	100	100	100	100	100	100
	酸無水物	質量部	89.5	89.5	89.5	89.5	89.5	89.5	89.5	89.5	89.5	89.5	89.5	89.5
硬化促進剤	アミンイミド化合物A	質量部												
	アミンイミド化合物B	質量部												
	アミンイミド化合物C	質量部												
	アミンイミド化合物D	質量部												
	アミンイミド化合物E	質量部												
	アミンイミド化合物F	質量部												
	アミンイミド化合物G	質量部												
	アミンイミド化合物H	質量部	1	3										
	アミンイミド化合物L	質量部			3									
	アミンイミド化合物M	質量部				3								
	アミンイミド化合物N	質量部					3							
	アミンイミド化合物O	質量部						3						
	アミンイミド組成物Q2	質量部							3					
	アミンイミド組成物O3	質量部								3				
	アミンイミド化合物P	質量部										3		
	アミンイミド化合物Q	質量部											3	
	アミンイミド組成物Q2	質量部												3
	アミンイミド化合物R	質量部												
	アミンイミド化合物S	質量部												
	アミンイミド組成物S2	質量部												
アミンイミド組成物S3	質量部													
アミンイミド化合物I	質量部													
アミンイミド化合物J	質量部													
アミンイミド化合物K	質量部													
DBU	質量部													
U-CAT SA1	質量部													
アクリレート-イミダゾールアダクト	質量部													
硬化性 (2)			○	◎	◎	◎	○	○	○	○	○	○	○	△
保存安定性 (2)			◎	◎	○	○	◎	◎	◎	◎	◎	◎	◎	◎
フリレグ表面平滑性			○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○
フリレグタック性			○	○	◎	◎	○	○	○	○	○	○	○	○
浸透性			○	○	○	○	○	○	○	○	○	△	○	○

[0274]

[表9]

[illegible]

[0275] 表 1 ～ 9 の結果から、合成例 1 ～ 24 で得られたアミンイミド化合物又はアミンイミド組成物 A ～ S 3 を用いた実施例 1 ～ 64 のエポキシ樹脂組成物は、硬化性と保存安定性に優れることが確認された。

[0276] また、表 7 ～ 9 の結果から、製造例 1 ～ 24 で得られたアミンイミド化合物又はアミンイミド組成物 A ～ S 3 を用いた実施例 32 ～ 64 のエポキシ樹脂組成物は、浸透性にも優れ、良好なプリプレグ特性を発現することが確認された。

[0277] 一方、比較例 1 ～ 7 のエポキシ樹脂組成物は、硬化性は優れているものの、室温での保存安定性に劣ることが確認された。

[0278] [せん断接着強度の測定方法]

J I S K 6 8 5 0 に準拠して、鋼板に対する引張せん断接着強度を測定した。

せん断接着評価は、下記のように調製した、実施例 65 ～ 68 のエポキシ樹脂組成物を用いて行った。

[0279] [実施例 65 ～ 76]

エポキシ樹脂組成物用のエポキシ樹脂として、ビスフェノール A 型エポキシ樹脂：Chang Chun Plastics Co., Ltd 「BE-186EL」、ビスフェノール F 型エポキシ樹脂：三菱ケミカル社製「JER806」、ビスフェノール F 型エポキシ樹脂：三菱ケミカル社製グリシジルアミン系エポキシ樹脂「JER630」、ナフタレン型エポキシ樹脂：DIC 社製「HP-4032D」を使用した。

総エポキシ樹脂 100 質量部に対し、下記表 10 に示す所定のアミンイミド化合物を 20 質量部となるように添加した。アクリレートイミダゾールは 10 質量部となるように添加した。エポキシ樹脂とアミンイミド化合物をプラスチック製の攪拌容器に入れ、これを自転・公転ミキサー（株式会社シンキー製「ARE-310」）で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。

上述のようにして調製したエポキシ樹脂組成物を、2 枚の鋼板試験片 (SPCC

-SB：株式会社スタンダードテストピース社製)の間に接着面積12.5mm×5mm塗布した後、加熱炉にて設定温度150℃で2時間加熱し、熱硬化接着し、試験片を得た。得られた試験片に対し、23℃、50%RHの恒温恒湿室において、AUTOGRAPH AGS-X 5kN（島津製作所株式会社製）を用いて、引張せん断接着強度を測定し、得られた値の中央値を鋼板基材への引張せん断接着強度とした。

[0280]

[表10]

		1分子内の N・N 数	実施例65	実施例66	実施例67	実施例68	実施例69	実施例70	実施例71	実施例72	実施例73	実施例74	実施例75	実施例76
硬化剤	アミンイミド化合物O	2	20	20					20	20				
	アミンイミド化合物N	1			20						20	20		
	アミンイミド化合物M	2				20	20							
	アミンイミド化合物C	1						20						
	アクリレートーイミダゾールアダクト	0											10	10
エポキシ 樹脂	BE-186EL	—	100		100	100		100						
	JER806	—		100			100		50	50	50	50	100	50
	JER630	—							50	25	50	25		50
	HP-4032D	—								25		25		
せん断接着強度		MPa	27.7	26.5	21.7	22.4	24.3	11.8	22.9	24.1	21.1	23.3	14.0	10.7

[0281] 表 10 に示す測定結果から、一分内に $-N^--N^+$ を複数有する構造(アミンイミド化合物 O、M 等)は、ほぼ同様の $-N-N-$ 分解温度(開始温度、頂点温度)を有する $-N^--N^+$ が一つのもものと比較して、同じ硬化条件において、せん断接着強度が高くなることが分かった。この理由については、1 分子内に $-N^--N^+$ を複数有する場合、硬化剤質量中における活性成分が多くなることに起因すると考えられる。

[0282] 本出願は、2020 年 7 月 15 日に日本国特許庁に出願された日本特許出願(特願 2020-121122)に基づくものであり、その内容はここに参照として取り込まれる。

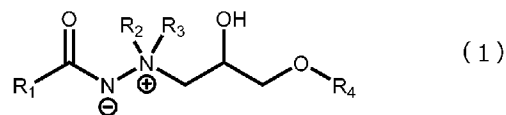
産業上の利用可能性

[0283] 本発明のアミンイミド化合物及びエポキシ樹脂組成物は、封止材、接着剤、プリント基板材、塗料、複合材料、アンダーフィルやモールドディング等の半導体封止材、ACF 等の導電性接着剤、ソルダーレジストやカバーレイフィルム等のプリント配線基板、ガラス繊維やカーボン繊維などに含浸させるなるプリプレグ等の複合材料等として、産業上の利用可能性を有している。

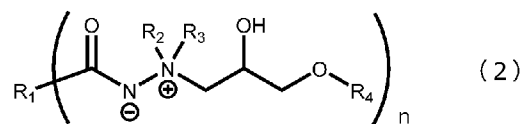
請求の範囲

[請求項1] 下記式（１）、（２）又は（３）で表される、アミンイミド化合物。
。

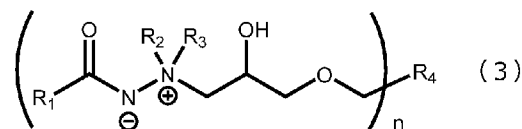
[化1]



[化2]



[化3]

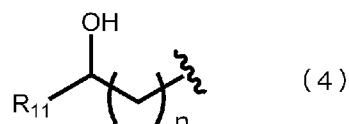


（式（１）～（３）中、 R_1 は、各々独立して、水素原子、又は、水酸基、カルボニル基、エステル結合、若しくはエーテル結合を有していてもよい、炭素数１～１５の、１価又は n 価の有機基を表し、 R_2 及び R_3 は、各々独立して、未置換又は置換基を有する、炭素数１～１２のアルキル基、アリール基、アラルキル基、又は R_2 及び R_3 が連結した炭素数７以下のヘテロ環を表し、 R_4 は、各々独立して、水素原子、又は、酸素原子を含んでもよい、炭素数１～３０の、１価又は n 価の有機基を表し、 n は１～３の整数を表す。）

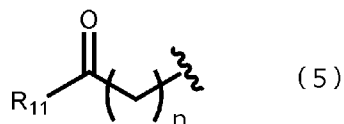
[請求項2] 前記式（１）又は（３）における前記 R_1 が、下記式（４）又は（５）、で表される基である、

請求項１に記載のアミンイミド化合物。

[化4]



[化5]



(式(4)、(5)中、 R_{11} は、各々独立して、炭素数1～5のアルキル基、炭素数1～5のアルコキシ基、アリール基、又は、炭素数7～9のアラルキル基を表し、 n は、各々独立して、0～6の整数を示す。)

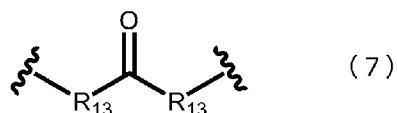
[請求項3] 前記式(2)における前記 R_1 が、下記式(6)又は(7)、で表される基である、

請求項1に記載のアミンイミド化合物。

[化6]



[化7]



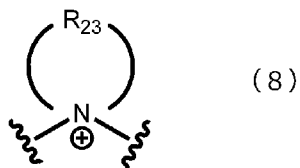
(式(6)、(7)中、 R_{12} 及び R_{13} は、各々独立して、単結合、炭素数1～5のアルキル基、アリール基、又は、炭素数7～9のアラルキル基を表す。)

[請求項4] R_2 及び R_3 の少なくとも一方が、アラルキル基を表す、
請求項1乃至3のいずれか一項に記載のアミンイミド化合物。

[請求項5] R_2 及び R_3 が連結した炭素数7以下のヘテロ環が、下記式(8)で表される、 R_{23} と式(1)、(2)又は(3)中の N^+ により形成されるヘテロ環である、

請求項1乃至3のいずれか一項に記載のアミンイミド化合物。

[化8]



(式(8)中、 R_{23} は、 N^+ とともに、ヘテロ環構造を形成する基を表す。)

[請求項6]

前記式(1)又は(2)における前記 R_4 が、直鎖状若しくは分岐状の炭素数3～12のアルキル基、又は、直鎖状若しくは分岐状の炭素数3～6のアルケニル基である、

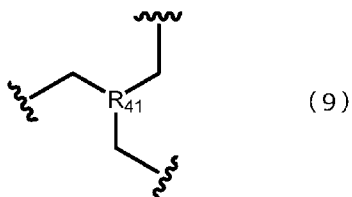
請求項1乃至5のいずれか一項に記載のアミンイミド化合物。

[請求項7]

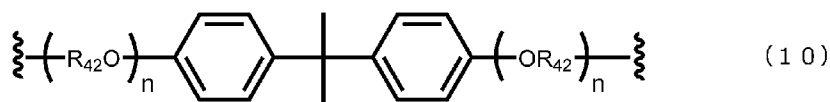
前記式(3)における前記 R_4 が、下記式(9)又は(10)、で表される基である、

請求項1乃至5のいずれか一項に記載のアミンイミド化合物。

[化9]



[化10]



(式(9)、(10)中、 R_{41} 及び R_{42} は、各々独立して、炭素数1～5のアルキル基、アリール基、又は、アラルキル基を表し、 n は、各々独立して、0～10の整数を示す。)

[請求項8]

前記アミンイミド化合物が、前記式(2)又は(3)で表され、 n は2又は3である、

請求項1乃至7のいずれか一項に記載のアミンイミド化合物。

[請求項9]

前記アミンイミド化合物が、前記式(2)又は(3)で表され、 n

は2である、

請求項1乃至7のいずれか一項に記載のアミンイミド化合物。

[請求項10] 25℃における粘度が1300Pa・s以下である、

請求項1乃至9のいずれか一項に記載のアミンイミド化合物。

[請求項11] 示差熱分析におけるN-N結合の分解に係る発熱ピークの頂点温度(T_{peak})と立ち上がり温度(T_{onset})との差($T_{peak} - T_{onset}$)が、45℃以下である、

請求項1乃至10のいずれか一項に記載のアミンイミド化合物。

[請求項12] 請求項1乃至11のいずれか一項に記載のアミンイミド化合物を複数含む、アミンイミド組成物。

[請求項13] 前記式(1)及び前記式(3)で表されるアミンイミド化合物を含む、請求項12に記載のアミンイミド組成物。

[請求項14] 請求項1乃至10のいずれか一項に記載のアミンイミド化合物、又は、請求項12若しくは13に記載のアミンイミド組成物を含む、硬化剤。

[請求項15] エポキシ樹脂(α)と、
請求項14に記載の硬化剤(β)と、
を、含む、
エポキシ樹脂組成物。

[請求項16] 前記硬化剤(β)の含有量が、前記エポキシ樹脂(α)100質量部に対して、1～50質量部である、
請求項15に記載のエポキシ樹脂組成物。

[請求項17] 酸無水物系硬化剤(γ)をさらに含む、
請求項15又は16に記載のエポキシ樹脂組成物。

[請求項18] 請求項1乃至11のいずれか一項に記載のアミンイミド化合物、又は請求項12若しくは13に記載のアミンイミド組成物中のアミンイミド化合物の製造方法であって、

カルボン酸エステル化合物(A)、ヒドラジン化合物(B)、及び

グリシジルエーテル化合物（C）を反応させる反応工程を有する、
アミンイミド化合物の製造方法。

[請求項19] 請求項 1 5 乃至 1 7 のいずれか一項に記載のエポキシ樹脂組成物の
硬化物である封止材。

[請求項20] 請求項 1 5 に記載のエポキシ樹脂組成物を含み、
前記硬化剤（ β ）が、前記式（3）で表されるアミンイミド化合物
を含む、接着剤。

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2021/026500

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

Int. Cl. C07D295/32 (2006.01)i, C08G59/50 (2006.01)i, C09J11/06 (2006.01)i, C09J161/30 (2006.01)i, C09K3/10 (2006.01)i, H01L23/29 (2006.01)i, H01L23/31 (2006.01)i
FI: C07D295/32 CSP, C08G59/50, C09J11/06, C09J161/30, C09K3/10 L, C09K3/10 Z, H01L23/30 R

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)

Int. Cl. C07D295/32, C08G59/50, C09J11/06, C09J161/30, C09K3/10, H01L23/29, H01L23/31

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Published examined utility model applications of Japan 1922-1996
Published unexamined utility model applications of Japan 1971-2021
Registered utility model specifications of Japan 1996-2021
Published registered utility model applications of Japan 1994-2021

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)

CAPLUS/REGISTRY (STN)

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X Y	JP 49-74799 A (PERMACHEM ASIA CO., LTD.) 18 July 1974 (1974-07-18), claim 1, examples, claim 1, examples	1-6, 8-20 7
X Y	JP 50-76199 A (MITSUBISHI PETROCHEMICAL CO., LTD.) 21 June 1975 (1975-06-21), claim 1, examples, claim 1, examples	1-6, 8-20 7
X Y	JP 61-231020 A (TATSUKI, Shigeo) 15 October 1986 (1986-10-15), examples, examples	1-6, 8-20 7



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
06.09.2021

Date of mailing of the international search report
14.09.2021

Name and mailing address of the ISA/
Japan Patent Office
3-4-3, Kasumigaseki, Chiyoda-ku,
Tokyo 100-8915, Japan

Authorized officer

Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2021/026500

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X Y	JP 1-242132 A (SANYO CHEMICAL INDUSTRIES, LTD.) 27 September 1989 (1989-09-27), claim 1, p. 184, lower right column to p. 185, upper left column, claim 1, p. 184, lower right column to p. 185, upper left column	1-6, 8-20 7
X Y	JP 2-145677 A (UNITIKA LTD.) 05 June 1990 (1990-06-05), p. 569, upper left column, p. 569, upper left column	1-6, 8-20 7
X Y	JP 2000-229927 A (THREE BOND CO., LTD.) 22 August 2000 (2000-08-22), paragraph [0008], paragraph [0008]	1-6, 8-20 7
X Y	JP 2003-055638 A (THREE BOND CO., LTD.) 26 February 2003 (2003-02-26), paragraph [0012], paragraph [0012]	1-6, 8-20 7
X Y	JP 2003-096061 A (OTSUKA CHEMICAL CO., LTD.) 03 April 2003 (2003-04-03), paragraphs [0006], [0007], paragraphs [0006], [0007]	1-6, 8-20 7
X Y	JP 2008-1857 A (THREE BOND CO., LTD.) 10 January 2008 (2008-01-10), claim 1, table 1, claim 1, table 1	1-6, 8-20 7
X Y	JP 2009-120683 A (THREE BOND CO., LTD.) 04 June 2009 (2009-06-04), claim 1, table 1, claim 1, table 1	1-6, 8-20 7
X Y	Journal of Fluorine Chemistry, 1991, 51, 419-431, tables I-III, tables I-III	1-6, 8-20 7
X Y	Journal of Applied Polymer Science, 1982, 27, 2361-2368, table I, table I	1-6, 8-20 7
X Y	REGISTRY(STN) [online], 2004, CAS Registry Number: 791721-38-5, CAS Registry Number: 791721-38-5, CAS Registry Number: 791721-38-5	1-6, 8-20 7
Y	JP 50-100020 A (IMPERIAL CHEMICAL INDUSTRIES LTD.) 08 August 1975 (1975-08-08), claim 1, examples	7

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

Information on patent family members

International application No.

PCT/JP2021/026500

Patent Documents referred to in the Report	Publication Date	Patent Family	Publication Date
JP 49-74799 A	18.07.1974	US 3888827 A claim 1, examples GB 1423270 A (Family: none)	
JP 50-76199 A	21.06.1975	(Family: none)	
JP 61-231020 A	15.10.1986	(Family: none)	
JP 1-242132 A	27.09.1989	(Family: none)	
JP 2-145677 A	05.06.1990	(Family: none)	
JP 2000-229927 A	22.08.2000	(Family: none)	
JP 2003-055638 A	26.02.2003	(Family: none)	
JP 2003-096061 A	03.04.2003	(Family: none)	
JP 2008-1857 A	10.01.2008	WO 2008/001637 A1 claim 1, table 1 KR 10-2009-0023642 A CN 101479310 A	
JP 2009-120683 A	04.06.2009	(Family: none)	
JP 50-100020 A	08.08.1975	(Family: none)	

A. 発明の属する分野の分類（国際特許分類（IPC）） C07D 295/32(2006.01)i; C08G 59/50(2006.01)i; C09J 11/06(2006.01)i; C09J 161/30(2006.01)i; C09K 3/10(2006.01)i; H01L 23/29(2006.01)i; H01L 23/31(2006.01)i FI: C07D295/32 CSP; C08G59/50; C09J11/06; C09J161/30; C09K3/10 L; C09K3/10 Z; H01L23/30 R		
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）） C07D295/32; C08G59/50; C09J11/06; C09J161/30; C09K3/10; H01L23/29; H01L23/31 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 1971-2021年 日本国実用新案登録公報 1996-2021年 日本国登録実用新案公報 1994-2021年 国際調査で利用した電子データベース（データベースの名称、調査に使用した用語） CAplus/REGISTRY (STN)		
C. 関連すると認められる文献		
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求項の番号
X	JP 49-74799 A (株式会社パーマケム・アジア) 18.07.1974 (1974-07-18)	1-6, 8-20
Y	請求項 1 および実施例など	7
X	JP 50-76199 A (三菱油化株式会社) 21.06.1975 (1975-06-21)	1-6, 8-20
Y	請求項 1 および実施例など	7
X	JP 61-231020 A (田附 重夫) 15.10.1986 (1986-10-15)	1-6, 8-20
Y	実施例など	7
X	JP 1-242132 A (三洋化成工業株式会社) 27.09.1989 (1989-09-27)	1-6, 8-20
Y	請求項 1 および 184 頁右下～185 頁左上欄など	7
	請求項 1 および 184 頁右下～185 頁左上欄など	
☒ 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、一般的な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抵触するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの “X” 特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの “Y” 特に関連のある文献であって、当該文献と他の 1 以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの “&” 同一パテントファミリー文献		
国際調査を完了した日 06.09.2021		国際調査報告の発送日 14.09.2021
名称及びあて先 日本国特許庁(ISA/JP) 〒100-8915 日本国 東京都千代田区霞が関三丁目 4 番 3 号		権限のある職員（特許庁審査官） 早川 裕之 4P 4500 電話番号 03-3581-1101 内線 3492

C. 関連すると認められる文献		
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求項の番号
X	JP 2-145677 A (ユニチカ株式会社) 05.06.1990 (1990 - 06 - 05) 5 6 9 頁左上欄など	1-6, 8-20
Y	5 6 9 頁左上欄など	7
X	JP 2000-229927 A (株式会社スリーポンド) 22.08.2000 (2000 - 08 - 22) 段落 [0 0 0 8] など	1-6, 8-20
Y	段落 [0 0 0 8] など	7
X	JP 2003-055638 A (株式会社スリーポンド) 26.02.2003 (2003 - 02 - 26) 段落 [0 0 1 2] など	1-6, 8-20
Y	段落 [0 0 1 2] など	7
X	JP 2003-096061 A (大塚化学株式会社) 03.04.2003 (2003 - 04 - 03) 段落 [0 0 0 6] ~ [0 0 0 7] など	1-6, 8-20
Y	段落 [0 0 0 6] ~ [0 0 0 7] など	7
X	JP 2008-1857 A (株式会社スリーポンド) 10.01.2008 (2008 - 01 - 10) 請求項 1 および表 1 など	1-6, 8-20
Y	請求項 1 および表 1 など	7
X	JP 2009-120683 A (株式会社スリーポンド) 04.06.2009 (2009 - 06 - 04) 請求項 1 および表 1 など	1-6, 8-20
Y	請求項 1 および表 1 など	7
X	Journal of Fluorine Chemistry, 1991, 51, 419-431 テーブル I ~ I I I など	1-6, 8-20
Y	テーブル I ~ I I I など	7
X	Journal of Applied Polymer Science, 1982, 27, 2361-2368 テーブル I など	1-6, 8-20
Y	テーブル I など	7
X	REGISTRY (STN) [online] , 2004, CAS 登録番号 : 791721-38-5 など多数 CAS 登録番号 : 791721-38-5 など多数	1-6, 8-20
Y	CAS 登録番号 : 791721-38-5 など多数	7
Y	JP 50-100020 A (インペリアル・ケミカル・インダストリーズ・リミテッド) 08.08.1975 (1975 - 08 - 08) 請求項 1 および実施例など	7

国際調査報告
 パテントファミリーに関する情報

国際出願番号

PCT/JP2021/026500

引用文献			公表日	パテントファミリー文献	公表日
JP	49-74799	A	18.07.1974	US 3888827 A 請求項 1 および実施例など GB 1423270 A	
JP	50-76199	A	21.06.1975	(ファミリーなし)	
JP	61-231020	A	15.10.1986	(ファミリーなし)	
JP	1-242132	A	27.09.1989	(ファミリーなし)	
JP	2-145677	A	05.06.1990	(ファミリーなし)	
JP	2000-229927	A	22.08.2000	(ファミリーなし)	
JP	2003-055638	A	26.02.2003	(ファミリーなし)	
JP	2003-096061	A	03.04.2003	(ファミリーなし)	
JP	2008-1857	A	10.01.2008	WO 2008/001637 A1 請求項 1 および表 1 など KR 10-2009-0023642 A CN 101479310 A	
JP	2009-120683	A	04.06.2009	(ファミリーなし)	
JP	50-100020	A	08.08.1975	(ファミリーなし)	