

(19) 日本国特許庁(JP)

(12) 特許公報(B2)

(11) 特許番号

特許第6839303号
(P6839303)

(45) 発行日 令和3年3月3日(2021.3.3)

(24) 登録日 令和3年2月16日(2021.2.16)

(51) Int. Cl.

F I

C07D 235/02	(2006.01)	C07D 235/02	B
C08L 33/00	(2006.01)	C08L 33/00	
C08K 5/3447	(2006.01)	C08K 5/3447	
C08K 5/43	(2006.01)	C08K 5/43	
C09J 133/00	(2006.01)	C09J 133/00	

請求項の数 14 (全 25 頁) 最終頁に続く

(21) 出願番号 特願2019-555664 (P2019-555664)
 (86) (22) 出願日 平成30年4月10日 (2018.4.10)
 (65) 公表番号 特表2020-516635 (P2020-516635A)
 (43) 公表日 令和2年6月11日 (2020.6.11)
 (86) 国際出願番号 PCT/US2018/026847
 (87) 国際公開番号 W02018/191238
 (87) 国際公開日 平成30年10月18日 (2018.10.18)
 審査請求日 令和1年12月6日 (2019.12.6)
 (31) 優先権主張番号 62/484,211
 (32) 優先日 平成29年4月11日 (2017.4.11)
 (33) 優先権主張国・地域又は機関
 米国 (US)

(73) 特許権者 000003964
 日東電工株式会社
 大阪府茨木市下穂積1丁目1番2号
 (74) 代理人 110000729
 特許業務法人 ユニアス国際特許事務所
 (72) 発明者 ラシュウォル、スタニスラフ
 アメリカ合衆国 カリフォルニア州 92
 057、オーシャンサイド、ガーデニア
 ストリート 4877
 (72) 発明者 フー、ユイフェン
 アメリカ合衆国 カリフォルニア州 92
 130、サン ディエゴ、ピア キャング
 レージョ 3963

最終頁に続く

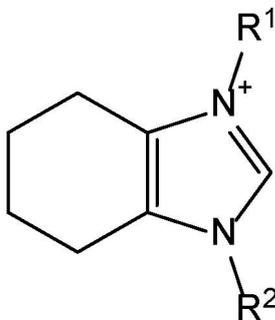
(54) 【発明の名称】 コーティングおよび接着剤に使用するための1, 3-ジアルキル-4, 5, 6, 7-テトラヒドロ-1H-ベンゾ [D] イミダゾール-3-イウムカチオンを含むイオン性組成物

(57) 【特許請求の範囲】

【請求項1】

以下の式によるカチオンを含むイオン性化合物：

【化1】

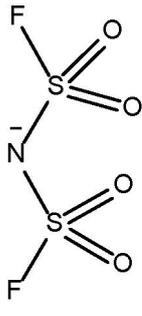


(式中、R¹ および R² は独立して、C₃アルキル、C₄アルキル、C₅アルキル、C₆アルキル、C₇アルキル、-(C₁₋₃アルキル)-O-(C₁₋₃アルキル)であり；ここで、カチオンは対称である)。

【請求項2】

以下の式によるアニオンをさらに含む、請求項1に記載のイオン性化合物：

【化2】



10

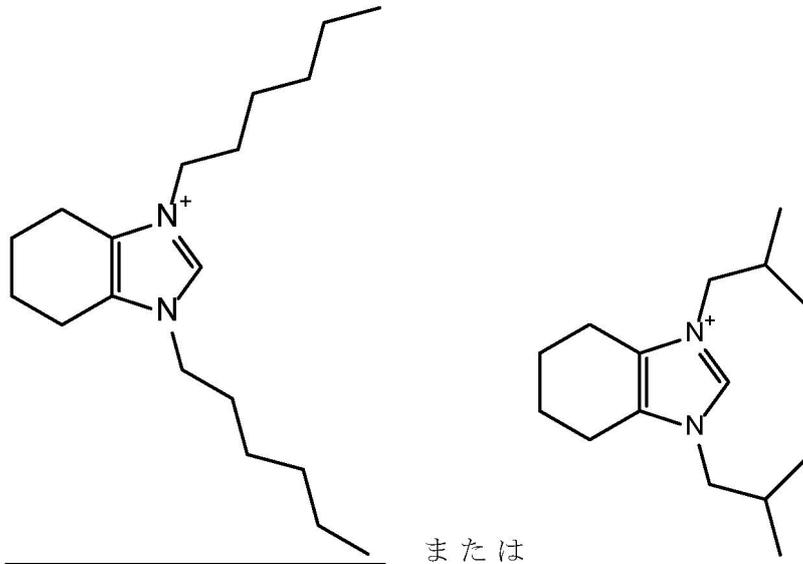
【請求項3】

R¹ および R² が、イソブチル、ネオペンチル、n - ヘキシル、または2 - エトキシエチルである、請求項1または2に記載のイオン性化合物。

【請求項4】

以下を含む、請求項1、2、または3に記載のイオン性化合物：

【化3】



20

30

【請求項5】

請求項1、2、3、または4に記載のイオン性化合物を含む組成物。

【請求項6】

複合層またはシートを形成するためにアクリルポリマーをさらに含む、請求項5に記載の組成物。

【請求項7】

前記層またはシートが5 μm ~ 150 μmの厚さを有する、請求項6に記載の組成物。

40

【請求項8】

前記層またはシートが導電性基材上に形成されている、請求項6または7に記載の組成物。

【請求項9】

前記導電性基材が、金属フィルム、金属化プラスチックフィルム、またはそれらの組み合わせである、請求項8に記載の組成物。

【請求項10】

前記組成物に10ボルトの電位差を印加すると低下する粘着強度を有する、請求項6、7、8、または9に記載の組成物。

50

【請求項 1 1】

前記組成物は、1 - エチル - 3 - メチル - イミダゾリウムビス (フルオロスルホニル) イミドよりも、前記組成物または1 - エチル - 3 - メチル - イミダゾリウムビス (フルオロスルホニル) イミドをアルミニウム箔に直接適用した後、温度 85、湿度 85 %で70 時間後の腐食を視覚的に観察するのに必要な接触時間の量によって決定される腐食性が低い、請求項6、7、8、9、または 10に記載の組成物。

【請求項 1 2】

0.5 ~ 1である分配比 (IL / DPM) を有する、請求項6、7、8、9、10、または 11に記載の組成物。

【請求項 1 3】

第 1 の導電性基材；

第 2 の導電性基材；および

請求項6、7、8、9、10、11、または 12に記載の組成物であり、前記第 1 の導電性基材と前記第 2 の導電性基材との間に配置され、前記第 1 の導電性基材を前記第 2 の導電性基材に結合させる組成物

を含むデバイスであって、

前記組成物は、前記第 1 の導電性基材と前記第 2 の導電性基材との間に 10 ボルトの電位差を印加すると、前記組成物の粘着性が低下する特性を有する、デバイス。

【請求項 1 4】

請求項6、7、8、9、10、11、または 12に記載の組成物を第 1 の導電性基材と第 2 の導電性基材との間に適用して、前記第 1 の導電性基材を前記第 2 の導電性基材に粘着させること、および、

前記第 1 の導電性基材と前記第 2 の導電性基材との間に電流を印加して、前記組成物から前記第 1 の導電性基材または前記第 2 の導電性基材または両方の導電性基材を分離することを含む、方法。

【発明の詳細な説明】

【技術分野】

【0001】

(関連出願の相互参照)

この出願は、2017年4月11日に提出された米国仮出願 62 / 484 , 211 号の利益を主張し、その内容は全体が参照により組み込まれる。

【0002】

(技術分野)

本開示は、化合物または材料に起電力を加えることにより、それらが適用される表面から分離または除去できるコーティングおよび接着剤として使用するためのイオン液体に関する。

【背景技術】

【0003】

電力貯蔵デバイスに使用される市販の 1 - エチル - 3 - メチル - イミダゾリウムビス (フルオロスルホニル) イミド、スルホニルイミド、官能化イオン液体、またはイミダゾリウム類似体を含む組成物等、接着コーティングとして使用できる特定の電気剥離組成物が知られている。しかしながら、コーティング材料として 1-エチル-3-メチル-イミダゾリウムおよび/またはビス (フルオロスルホニル) イミドを含む組成物は、アルミニウム表面に対して比較的腐食性でありうる。

【0004】

加えて、多くのイオン液体は、強い親水性と吸湿性を有している。それらは水によく溶け、周囲の大気から容易に水を吸収する。乾燥した環境が必要な用途において、そのようなイオン液体は使用に適していない。

【0005】

このように、コーティングされた金属基材に腐食性を与えることなく表面から剥離でき

10

20

30

40

50

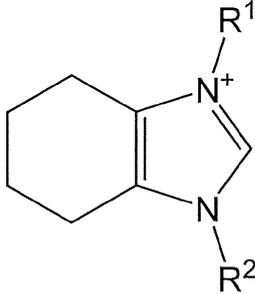
る新しい疎水性イオン化合物または組成物が必要とされる。

【発明の概要】

【0006】

本開示は、式2の化合物などの4, 5, 6, 7-テトラヒドロ-ベンゾイミダゾリウムカチオンを含むイオン化合物に関する。

【化1】



10

(式2)、

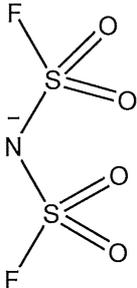
式中、 R^1 および R^2 は、独立して、任意に置換された C_{2-7} アルキルまたは任意に置換された $-(C_{1-3}$ アルキル) $-O-$ $(C_{1-3}$ アルキル) である。

【0007】

いくつかの実施形態は、4, 5, 6, 7-テトラヒドロ-ベンゾイミダゾリウムカチオンを含むイオン化合物を含む組成物を含む。いくつかの実施形態は、4, 5, 6, 7-テトラヒドロ-ベンゾイミダゾリウムカチオンを含むイオン化合物を含む組成物を含み、式2によるアニオンをさらに含む。

20

【化2】



(式2)

30

【0008】

いくつかの実施形態は、疎水性特性を有し、金属基材への適用時に腐食が低減されたイオン組成物を含む。いくつかの実施形態は、起電力の印加時にその表面に損傷を与えることなく、それが適用される表面から剥離または除去されうる、基材上に置かれたコーティングまたは接着剤として使用できる本明細書に記載のイオン組成物を含む。そのようなイオン性組成物は、アクリルポリマーをさらに含み、導電性基材などの基材上にコーティングまたは堆積した層またはシートの形態でありうる電気剥離可能な接着複合体を形成する。

40

【0009】

いくつかの実施形態は、以下を含むデバイスを含む：第1の導電性基板；第2の導電性基板；および、第1導電性基材と第2導電性基材との間に配置され、第1導電性基材は第2導電性基材に結合している、ここに開示された組成物またはイオン性化合物。いくつかの実施形態では、デバイスで使用される組成物またはイオン化合物は、第1の導電性基板と第2の導電性基板との間に10ボルトの電位差を加えると、選択的に接着材料の接着力が低下する特性を有する。

【0010】

いくつかの実施形態は、第1導電性基材と第2導電性基材との間に本明細書に記載の組成物またはイオン化合物を適用して、第1導電性基材を第2導電性基材に接着することを

50

含む方法を含む。

【図面の簡単な説明】

【0011】

【図1】本明細書に記載のイオン化合物または組成物の使用の実施形態を組み込んだデバイスの概略図である。

【図2】図2は、本明細書に記載のイオン化合物または組成物の使用の実施形態を組み込んだデバイスの概略図である。

【図3】図3は、本明細書に記載のイオン化合物の接着特性を試験する際に使用される装置の概略図である。

【図4】図4は、図3に示す装置で試験した本明細書に記載のイオン性化合物または組成物の剥離強度密度対時間のプロットである。

10

【発明の詳細な説明】

【0012】

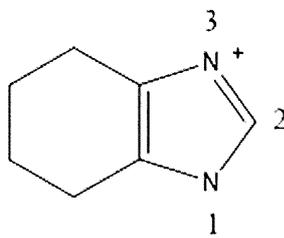
本明細書で使用するとき、化合物または化学構造が「任意に置換されている」と述べられる場合、置換基を持たない（すなわち非置換）特徴、または、1つ以上の置換基を有することを意味する「置換された」特徴を含む。「置換基」という用語は広範であり、通常、親化合物または構造的特徴に結合した1つまたは複数の水素原子が占める位置を占める部分を含む。15 - 50 g/mol、15 - 100 g/mol、または15 - 200 g/molの分子量を持つ置換基、およびC、H、N、O、S、F、Cl、Br、および/またはIなどの原子で構成される置換基を含む、任意の適切な置換基が用いられうる。いくつかの実施形態では、置換基は、独立して、任意に置換されたアルキル、アルケニル、アルコキシ（例えば、-OCH₃、-OC₂H₅、-OC₃H₇、-OC₄H₉など）、アルキルスルホン（例えば、-SCH₃、-SC₂H₅、-SC₃H₇、-SC₄H₉など）、-NR'R''、-OH、-SH、-CN、-NO₂、またはハロゲン（ここで、R'およびR''は、独立してHであるか、任意に置換されるアルキル）。

20

【0013】

本明細書で使用される「4, 5, 6, 7-テトラヒドロ-ベンゾイミダゾリウムカチオン」という用語は、以下の構造を有する環系を指す：

【化3】



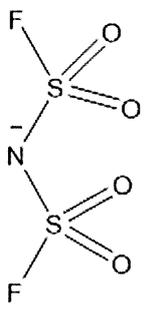
30

【0014】

本明細書で使用される「ビス(スルホニル)イミドおよび/または「スルホニルイミド」という用語は、例えば、次の構造を有するヘテロ原子部分を指す：

40

【化4】



50

【0015】

本明細書で使用される場合、「親水性および/または親水性」という用語は、有機溶媒よりも水中にとどまるイオン液体（IL）の指向をいう。相対的な疎水性または親水性を決定するための1つの有用なテストは、有機溶媒中のジフェニルメタン（DPM）などの内部参照標準の疎水性化合物に対するテスト化合物の分配比（またはIL/DPM）を測定することである。分配比（またはIL/DPM）は、内部参照標準としてのジフェニルメタンと比較して、水よりも酢酸エチルに留まるイオン液体の指向を測定することによって得られる。典型的には、約0.5未満の分配比（IL/DPM）を持つ化合物は、親水性とみなされる。

【0016】

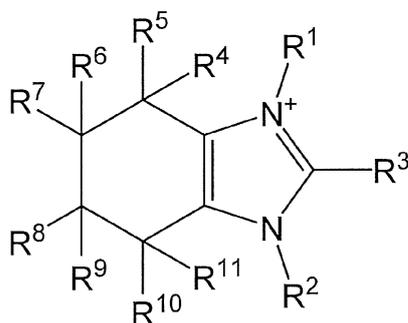
10

本明細書で使用する場合、「疎水性および/または疎水性」という用語は、水よりも有機相にとどまることを指向するイオン性液体の特徴をいう。典型的には、約0.5より大きい分配比（またはIL/DPM）を持つ化合物は疎水性である。

【0017】

いくつかの実施形態は、式1による任意に置換された4, 5, 6, 7-テトラヒドロ-ベンゾイミダゾリウムカチオンを含むイオン液体化合物を含む。

【化5】



20

(式1)。

【0018】

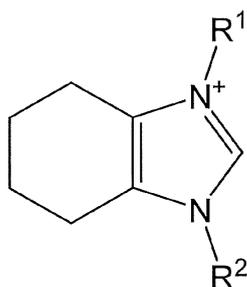
R¹ および R² は、独立して、任意に置換された C₂ - 8 アルキル、または任意に置換された - (C₁ - 6 アルキル) - O - (C₁ - 6 アルキル) であり； R³ は、H または C₁ - 3 アルキルなどの置換基であり；そして、R⁴、R⁵、R⁶、R⁷、R⁸、R⁹、R¹⁰、または R¹¹ は、独立して、以下に記載される置換基などの任意の置換基である。

30

【0019】

式1に関して、いくつかの実施形態では、R³、R⁴、R⁵、R⁶、R⁷、R⁸、R⁹、R¹⁰ および R¹¹ はすべて H であり、イオン性液体化合物は式2による4, 5, 6, 7-テトラヒドロ-ベンゾイミダゾリウムカチオンを含む：

【化6】



40

(式2)。

式中、R¹ および R² は独立して、任意に置換された C₂ - 7 アルキル、または任意に置換された C₁ - 7 アルコキシアルキルである。

【0020】

50

式1または式2等の任意の関連する構造表現に関して、いくつかの実施形態では、 R^1 は：任意に置換された C_2 アルキル（例えば、エチル）、 C_3 アルキル（例えば、プロピル）、 C_4 （例えば、ブチル）、 C_5 アルキル（例えば、ペンチル）、 C_6 アルキル（例えば、ヘキシル）、または C_7 アルキル（例えば、ヘプチル）などの、任意に置換された C_{2-7} アルキルである。一部の実施形態において、 R^1 は、例えば、 $-(C_2\text{アルキル})-O-(C_{1-3}\text{アルキル})$ または $-(C_2\text{アルキル})-O-(C_{1-3}\text{アルキル})$ といった $(C_{1-7}\text{アルキル})?O?(C_{1-7}\text{アルキル})$ などの、任意に置換された C_{1-7} アルコキシアルキルである。いくつかの実施形態では、 R^1 はエチルである。いくつかの実施形態では、 R^1 はイソブチルである。いくつかの実施形態では、 R^1 はネオペンチルである。いくつかの実施形態では、 R^1 は n -ヘキシルである。いくつかの実施形態では、 R^1 は2-エトキシエチルである。

10

【0021】

式1または式2等の任意の関連する構造表現に関して、いくつかの実施形態では、 R_2 は：任意に置換された C_2 アルキル（例えば、エチル）、 C_3 アルキル（例えば、プロピル）、 C_4 アルキル（例えば、ブチル）、 C_5 アルキル（例えば、ペンチル）、 C_6 アルキル（例えば、ヘキシル）、または C_7 アルキル（例えば、ヘプチル）などの、任意に置換された C_{2-7} アルキルである。一部の実施形態において、 R^2 は、例えば、 $-(C_2\text{アルキル})-O-(C_{1-3}\text{アルキル})$ または $-(C_2\text{アルキル})-O-(C_{1-3}\text{アルキル})$ といった $(C_{1-7}\text{アルキル})?O?(C_{1-7}\text{アルキル})$ などの任意に置換された C_{1-7} アルコキシアルキルである。いくつかの実施形態では、 R^2 はエチルである。いくつかの実施形態では、 R^2 はイソブチルである。いくつかの実施形態では、 R^2 はネオペンチルである。いくつかの実施形態では、 R^2 は n -ヘキシルである。いくつかの実施形態では、 R^2 は2-エトキシエチルである。

20

【0022】

式1または式2に関して、いくつかの実施形態では、 R^1 および R^2 の両方がエチルである。いくつかの実施形態では、 R^1 と R^2 の両方が n -ヘキシルである。いくつかの実施形態では、 R^1 と R^2 の両方がイソブチルである。いくつかの実施形態では、 R^1 はネオペンチルであり、 R^2 は n -ヘキシルである。いくつかの実施形態では、 R^1 は2-エトキシエチルであり、 R^2 は n -ヘキシルである。

30

【0023】

いくつかの実施形態では、式1または2の R^1 、 R^2 、または R^1 と R^2 の両方は親水性官能基でありうる。一部の実施形態では、 R^1 および R^2 の少なくとも一方は親水性官能基でありうる。いくつかの実施形態では、親水性官能基は酸素を含むことができる。いくつかの実施形態では、親水性官能基は、エーテル、ヒドロキシル、アルコキシル、またはエステル基でありうる。

【0024】

いくつかの実施形態では、式1または2の R^1 、 R^2 、または R^1 と R^2 の両方が疎水性官能基でありうる。一部の実施形態では、 R^1 および R^2 の少なくとも一方は疎水性官能基でありうる。一部の実施形態では、疎水性官能基は、任意に置換されたアルキル基を含むことができる。いくつかの実施形態では、任意に置換されたアルキル基は、メチル、エチル、プロピル、ブチル、ペンチル、ヘキシル、またはヘパチル (hepatyl) 基を含むことができる。

40

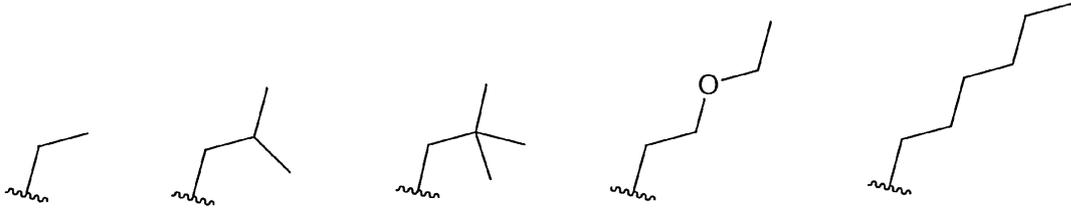
【0025】

いくつかの実施形態は、対称である4, 5, 6, 7-テトラヒドロ-ベンゾイミダゾリウムカチオンを含む式1または2のイオン性化合物を含む。いくつかの実施形態では、本明細書に記載のイオンカチオンは非対称である。

【0026】

いくつかの実施形態では、式1または2の R^1 および R^2 は独立して：

【化7】



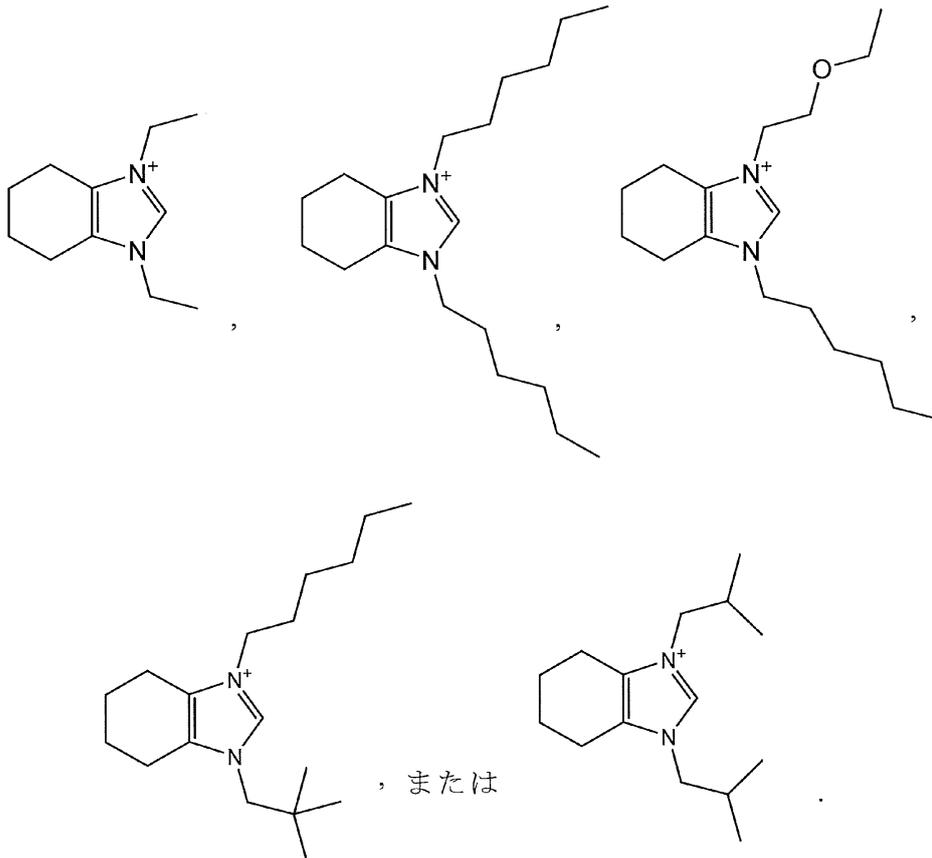
エチル , イソブチル , ネオペンチル , 2-エトキシエチル , または ヘキシル .

【0027】

10

いくつかの実施形態では、式1または2の4, 5, 6, 7-テトラヒドロ-ベンゾイミダゾリウムカチオンは:

【化8】



20

30

【0028】

式1などの任意の関連する構造表現に関して、いくつかの実施形態では、 R^3 は、H、 CH_3 、 C_2H_5 、 C_3H_7 である。いくつかの実施形態では、 R^3 はHである。

40

【0029】

式1などの任意の関連する構造表現に関して、いくつかの実施形態では、 R^4 は、H、 CH_3 、 C_2H_5 、 C_3H_7 、 CH_3O (例えば、 $-OCH_3$ または $-CH_2OH$)、 C_2H_5O 、または C_3H_7O である。いくつかの実施形態では、 R^4 はHである。

【0030】

式1などの任意の関連する構造表現に関して、いくつかの実施形態では、 R^5 は、4Hである。

【0031】

式1などの任意の関連する構造表現に関して、いくつかの実施形態では、 R^6 は、H、 CH_3 、 C_2H_5 、 C_3H_7 、 CH_3O (例えば、 $-OCH_3$ または $-CH_2OH$)、 C_2

50

H₅O、またはC₃H₇Oである。いくつかの実施形態では、R⁶はHである。

【0032】

式1などの任意の関連する構造表現に関して、いくつかの実施形態では、R⁷は、Hである。

【0033】

式1などの任意の関連する構造表現に関して、いくつかの実施形態では、R⁸は、H、CH₃、C₂H₅、C₃H₇、CH₃O（例えば、-OCH₃または-CH₂OH）、C₂H₅O、またはC₃H₇Oである。いくつかの実施形態では、R⁸はHである。

【0034】

式1などの任意の関連する構造表現に関して、いくつかの実施形態では、R⁹は、Hである。

10

【0035】

式1などの任意の関連する構造表現に関して、いくつかの実施形態では、R¹⁰は、H、CH₃、C₂H₅、C₃H₇、CH₃O（例えば、-OCH₃または-CH₂OH）、C₂H₅O、またはC₃H₇Oである。いくつかの実施形態では、R¹⁰はHである。

【0036】

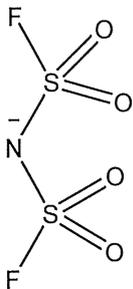
式1などの任意の関連する構造表現に関して、いくつかの実施形態では、R¹¹は、Hである。

【0037】

いくつかの実施形態では、イオン組成物は、式3に示される構造を有するアニオンなどのビス(スルホニル)イミドアニオンをさらに含むことができる：

20

【化9】



30

(式3)。

【0038】

いくつかの実施形態は、本明細書に記載のイオン組成物を含む選択的な接着材料を含む。上述のイオン性組成物を含む選択的な接着材料は、第1の導電性表面と第2の導電性表面と一緒に結合することができ、導電性表面への起電力の印加は接着材料の接着性を低下させる。選択的に接着する接着剤組成物のいくつかは、上記の4, 5, 6, 7-テトラヒドロ-ベンゾイミダゾリウムカチオンを含む。いくつかの実施形態では、4, 5, 6, 7-テトラヒドロ-ベンゾイミダゾリウムカチオンを含む選択的な接着剤組成物は、上記のビス(フルオロスルホニル)イミドアニオンなどのスルホニルイミドアニオンをさらに含むことができる。

40

【0039】

本明細書に記載の選択的に接着する接着剤のいくつかは、複合接着剤を形成するポリマーをさらに含むことができる。ポリマーのガラス転移温度は約0°C未満である場合がありうる。いくつかの実施形態において、ポリマーは、JP2015-204998および/またはJP2015-204996に記載されているポリマーであってもよい。いくつかの実施形態では、ポリマーはアクリルポリマーでありうる。アクリルポリマーは、ブチル(メタ)アクリレートなどのアルキル(メタ)アクリレートエステルを含むC₁₋₁₄アルキル(またはアルコキシ)基に由来するモノマー単位を含むことができる。いくつかの実施形態では、モノマー単位はカルボキシル基を含む。

50

【0040】

いくつかの実施形態は、前述のイオン化合物または組成物のいずれかを含むデバイスを含む。そのような装置の好適な例は、JP 2015-204996 および / または JP 20204997 に記載されているものでありうる。

【0041】

図1および2は、第1の導電性表面と第2の導電性表面を一緒に結合および接続する本明細書に記載の組成物の200などのいくつかの可能な実施形態を示す。図1および2に示すように、本明細書に記載のイオン化合物または組成物を組み込む接着剤203は、第1の導電性基材206と第2の導電性基材207との間に配置される接着剤層またはコーティングでありうる。第1の導電性基材206と第2の導電性基材207は、それぞれ2つの非金属（非導電性）基板または層201および202上に配置することができる。第1および第2の導電性基板は、電源204、例えば直流電源と電氣的に連絡して、介在スイッチ205との閉電気回路を完成させることができる。スイッチ205が閉じられると、2つの非金属の接着物の一方または両方は、接着剤203を第1および第2の導電性基板のいずれかまたは両方から分離することができる（界面で金属およびコーティング/接着剤を分離する）。

10

【0042】

任意の適切な起電力は、組成物が接着される1つまたは2つの表面から組成物を分離するように、明細書に記載の組成物の接着力を低下させるために使われうる。

いくつかの実施形態では、DC電圧は、約3~100V、約3~5V、約5~10V、約10~20V、約20~30V、約30~50V、約50~70V、約60~80V、約80~100V、約10V、またはこれらの値のいずれかで区切られた範囲の任意のDC電圧でありうる。

20

【0043】

典型的には、組成物が1つ以上の表面から分離されることを意図する場合、組成物と表面との間の接着力を低下させる起電力は、組成物に加えられる実際の起電力より小さくなりうる。いくつかの実施形態では、約3~90V、約3~5V、約5~10V、約10~20V、約20~30V、約30~50V、約50~70V、約60~80V、約80~90V、約10VのDC電圧、またはこれらの値のいずれかで区切られた範囲の任意のDC電圧により、組成物と表面の間の接着力が低下しうる。

30

【0044】

いくつかの実施形態では、導電性基材は、導電性炭素質材料を含むことができる。いくつかの実施形態では、導電性基材は導電性金属を含むことができる。導電性金属層は、任意の導電性金属、例えば、アルミニウムを含むことができる。導電性金属層は、金属、混合金属、合金、金属酸化物、および / または複合金属などの従来の材料、または導電性ポリマーを含むことができる。適切な金属の例には、周期表のグループ1の金属、グループ4、5、6の金属、およびグループ8-10の遷移金属が含まれる。適切な金属の例には、ステンレス鋼、Al、Ag、Mg、Ca、Cu、Mg/Ag、LiF/Al、CsF、および / またはCsF/Al、および / またはそれらの合金が含まれる。いくつかの実施形態では、導電層は、約1nmから約1000μmの厚さを有することができる。いくつかの実施形態では、導電層は、約20nm~約200μm、約20~200nm、約20~50nm、約50~100nm、約100~200nm、約200~500nm、約500~1000nm、約1~100μm、約100~200μm、約200~500μm、約500~100μm、約40~60nm、または約50nm、またはこれらの値のいずれかで区切られた範囲の任意の厚さを有する。

40

【0045】

いくつかの実施形態では、本明細書に記載のイオン性液体化合物を含む選択的な接着剤は、上記接着剤でコーティングされた導電層に対する腐食効果を低減させることができる。いくつかの実施形態では、本明細書に記載のイオン化合物を含む選択的な接着剤を使用して、導電層をコーティングし、導電層にすぐ隣接する環境の酸性度を低下させることが

50

できる。導電性材料にコーティングまたは堆積された接着剤の腐食効果を評価する好適な方法として、ASTM G 69 - 12 (アルミニウム合金の腐食電位の測定のための標準試験方法) に記載されている方法でありうる。

【0046】

いくつかの実施形態において、本明細書に記載のイオン性化合物を含む選択的な接着性接着剤組成物は、基材上にコーティングまたは堆積するために使用することができる。接着剤組成物は、層またはシートの形態でありうる。層またはシートの厚さは、約5 μm ~ 約100 μm、5 μm ~ 約150 μm、約5 μm ~ 約50 μm、約5 μm ~ 約10 μmでありうる。約10 μmから約50 μm、約50 μmから約100 μm、または約100 μmから約150 μm、またはこれらの値のいずれかで区切られた範囲の任意の厚さでありうる。

10

【0047】

いくつかの実施形態では、本明細書に記載のイオン性化合物を含む選択的な接着剤組成物は、基材上にコーティングまたは堆積して複合組成物を形成するために使用できるアクリルポリマーをさらに含むことができる。この複合組成物は、層またはシートの形態でありうる。複合組成物を含む層またはシートの厚さは、約50 μm ~ 約100 μm、50 μm ~ 約150 μm、約50 μm ~ 約200 μm、約50 μm ~ 約100 μm、または約100 μm ~ 約100 μmでありうる。約150 μm、またはこれらの値のいずれかで区切られた範囲の任意の厚さでありうる。

【0048】

いくつかの実施形態では、本明細書に記載のイオン化合物を含む選択的な接着剤は、導電性電極または導電性材料上で化学的に安定でありうる。いくつかの実施形態では、導電性電極は、アルミニウム、ステンレス鋼、および/またはそれらの組み合わせまたは混合物を含むことができる。いくつかの実施形態において、化学的安定性は、金属アノードと選択的に接着する接着剤との間の望ましくない反応の欠如(またはその存在が最小)として定義される。望ましくない反応には、例えば、金属電極の腐食劣化、選択的な接着性接着剤中の金属の溶解、および/または金属電極の孔食が含まれうる。いくつかの実施形態では、導電性金属電極上に、または導電性金属電極と接触して堆積した上述のイオン組成物は、上述の腐食性劣化の低減または欠如をもたらしうる。いくつかの実施形態では、導電性金属電極上の純イオン化合物の直接接触は、少なくとも約(またはそれを越える)約15分、少なくとも約30分、少なくとも約1時間、少なくとも約3時間、少なくとも約5時間、少なくとも約7時間、少なくとも約24時間、少なくとも約50時間、少なくとも約70時間、少なくとも約100時間、少なくとも約125時間、少なくとも約200時間、少なくとも約300時間、または少なくとも約450時間、またはこれらの値のいずれかで区切られた範囲内の任意の期間にわたって上記の腐食劣化を示しうる。いくつかの実施形態では、導電性電極上の純イオン組成物の直接接触は、上述の期間、腐食劣化を最小化および/または防止しうる。いくつかの実施形態では、導電性電極上の純イオン組成物の直接接触は、85 °Cの高温および85%の高い相対湿度下であっても、上記の期間の腐食劣化を最小限に抑えるおよび/または防止することができる。いくつかの実施形態では、上述の時間枠および/または環境条件で導電性の50 nm厚のアルミニウム箔シートの完全な浸透がないように、腐食性劣化は観察されない。

20

30

40

【0049】

いくつかの実施形態において、本明細書に記載の選択的な接着剤組成物は、長期間にわたって高湿度および高温の条件下で、上記の組成物でコーティングされた上記導電性基材の腐食を最小限に抑えるように策定できる。特に、接着剤組成物は、85%および85%の相対湿度に上記の期間さらされている間およびその後、2つのそのような導電性基材を互いに固定した関係に維持することができる。

【0050】

いくつかの実施形態において、本明細書に記載されるイオン性材料の疎水性は、水相と有機相との間のイオン性材料の分配を測定することにより決定されうる。水/酢酸エチル

50

を利用した好適なシステムを使用して、イオン液体の親水性 - 疎水性挙動を測定できる。ジフェニルメタン (DPM) は、内部標準として疎水性化合物として使用できる (100% 疎水性と仮定)。したがって、酢酸エチル (100 mL) 中のイオン液体 (0.5 mmol) とジフェニルメタン (0.5 mmol) の溶液を水 (100 mL) で振とうすることができる。相分離後、有機相中の酢酸エチルを減圧下で蒸発させることにより除去し、イオン液体とDPMの混合物を残すことができる。これら2つの化学物質のモル比は、核磁気共鳴 (NMR) 分光法で測定できる。このテストで得られた値、または比：(イオン液体のモル数 / ジフェニルメタンのモル数) は、本明細書では「分配比」または「IL / DPM」という。IL / DMP が 0.5 を超える場合、イオン液体水相よりも酢酸エチル相に留まることを指向することを示唆し、イオン液体は疎水性とみなされる。同様に、イオン液体が酢酸エチル相よりも水相に留まることを指向する場合 (IL / DMP < 0.5)、イオン液体は親水性とみなされる。いくつかの実施形態では、IL / DMP は約 0.77 でありえ、これはイオン性液体が中程度の疎水性であることを示す。いくつかの実施形態では、IL / DMP は 1.0 という値に高くすることができ、これは強い疎水性と考えられる。一部のイオン性化合物は疎水性であり、IL / DMP は 0.5 より大きく 1.0 までである。

10

【0051】

いくつかの実施形態において、材料の疎水性は、水接触角 (WCA) を測定することにより決定することができる。より大きな水接触角は、疎水性の増加を示す。言い換えると、WCA が大きいほど、水滴が表面に広がるのが少なくなる。水接触角の増加は、表面の濡れが少なく、したがって疎水性が高いことを示している。しかしながら、溶液の疎水性は、ポリマー (PMMA など) などの油適合性の基板に滴下することでも測定できる。この場合、関係は逆になり、低いソリューション接触角 (SCA) は、より高い疎水性を示す可能性がある。いくつかの実施形態において、本明細書に記載の化合物は、約 35° 未満、約 30 ~ 35°、約 25 ~ 30°、約 20 ~ 25°、約 15 ~ 20°、約 10 ~ 15°、約 10 ~ 20 度、約 30 度、約 25 度、約 20 度、約 18 度、または約 16 度の SCA を有することができる。

20

【0052】

いくつかの実施形態において、イオン性材料の疎水性は、水に不溶性であるが、水混和性有機溶媒には可溶性であると観察されうる。

30

【0053】

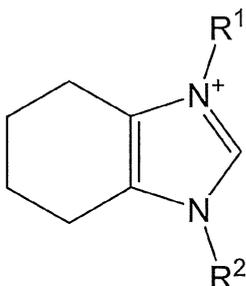
以下の実施形態が特に考えられる：

実施形態：

(実施形態 1)

以下の式によるカチオンを含むイオン性化合物：

【化 10】



40

(式中、R¹ および R² は、独立して、C₂ - 7 アルキルまたは - (C₁ - 3 アルキル) - O - (C₁ - 3 アルキル) である)。

(実施形態 2)

R¹ が、C₂ アルキル、C₃ アルキル、C₄ アルキル、C₅ アルキル、C₆ アルキル、または C₇ アルキルである、実施形態 1 に記載のイオン性化合物。

50

(実施形態 3)

R¹ が、エチルである、実施形態 1 に記載のイオン性化合物。

(実施形態 4)

R¹ が、イソブチルである、実施形態 1 に記載のイオン性化合物。

(実施形態 5)

R¹ が、ネオペンチルである、実施形態 1 に記載のイオン性化合物。

(実施形態 6)

R¹ が、n - ヘキシルである、実施形態 1 に記載のイオン性化合物。

(実施形態 7)

R¹ が、 - (C₂ アルキル) - O - (C_{1 - 3} アルキル) または - (C₂ アルキル) - O - (C_{1 - 3} アルキル) である、実施形態 1 に記載のイオン性化合物。 10

(実施形態 8)

R¹ が、2 - エトキシエチルである、実施形態 1 に記載のイオン性化合物。

(実施形態 9)

R² が、C₂ アルキル、C₃ アルキル、C₄ アルキル、C₅ アルキル、C₆ アルキル、または C₇ アルキルである、実施形態 1、2、3、4、5、6、7 または 8 に記載のイオン性化合物。

(実施形態 10)

R² が、エチルである、実施形態 1、2、3、4、5、6、7、または 8 に記載のイオン性化合物。 20

(実施形態 11)

R² が、イソブチルである、実施形態 1、2、3、4、5、6、7 または 8 に記載のイオン性化合物。

(実施形態 12)

R² が、ネオペンチルである、実施形態 1、2、3、4、5、6、7、または 8 に記載のイオン性化合物。

(実施形態 13)

R² が、n - ヘキシルである、実施形態 1、2、3、4、5、6、7、または 8 に記載のイオン性化合物。

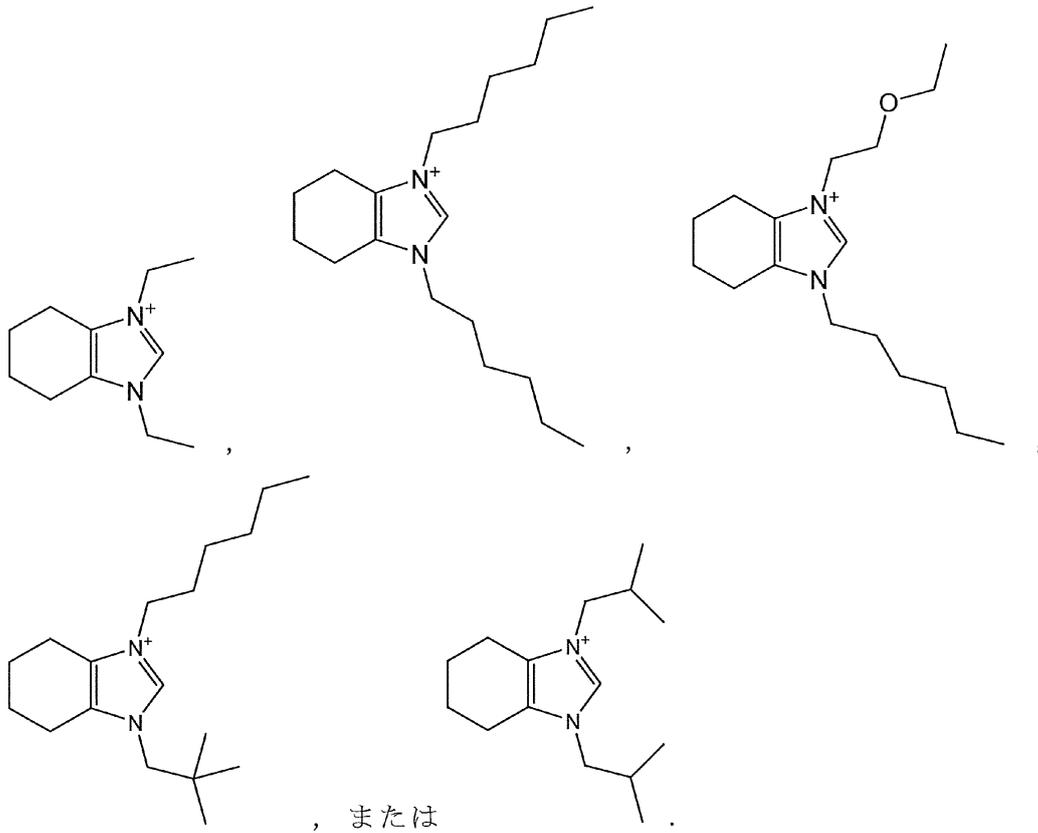
(実施形態 14)

r² が、2 - エトキシエチルである、実施形態 1、2、3、4、5、6、7、または 8 に記載のイオン性化合物。 30

(実施形態 15)

以下を含む、実施形態 1 に記載のイオン性化合物：

【化 1 1】



10

20

(実施形態 1 6)

約 0.5 ~ 約 1 である分配比 (IL / DPM) を有する、実施形態 1、2、3、4、5、6、7、8、9、10、11、12、13、14、または 15 に記載のイオン性化合物。

(実施形態 1 7)

約 0.7 ~ 約 0.9 である分配比 (IL / DPM) を有する、実施形態 1、2、3、4、5、6、7、8、9、10、11、12、13、14、または 15 に記載のイオン性化合物。

30

(実施形態 1 8)

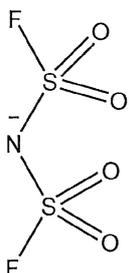
約 0.9 ~ 約 1.0 である分配比 (IL / DPM) を有する、実施形態 1、2、3、4、5、6、7、8、9、10、11、12、13、14、または 15 に記載のイオン性化合物。

(実施形態 1 9)

以下の式によるアニオンをさらに含む、実施形態 1、2、3、4、5、6、7、8、9、10、11、12、13、14、15、16、17、18、または 19 に記載のイオン性化合物：

40

【化 1 2】



(実施形態 2 0)

50

実施形態 1、2、3、4、5、6、7、8、9、10、11、12、13、14、15、16、17、18、または 19 に記載のイオン性化合物を含む組成物。

(実施形態 21)

コーティングまたは粘着剤の形態である、実施形態 20 に記載の組成物。

(実施形態 22)

前記組成物に 10 ボルトの電位差を印加すると低下する粘着強度を有する、実施形態 21 に記載の組成物。

(実施形態 23)

前記組成物または 1 - エチル - 3 - メチル - イミダゾリウムビス(フルオロスルホニル)イミドをアルミニウム箔に直接適用した後、腐食を視覚的に観察するのに必要な接触時間の量によって決定される 1 - エチル - 3 - メチル - イミダゾリウムビス(フルオロスルホニル)イミドよりも腐食性が低い、実施形態 20、21、または 22 に記載の組成物。

10

(実施形態 24)

温度 85 および湿度 85 % にて、前記組成物とアルミニウム箔の表面との間の界面で少なくとも約 70 時間の接触時間の間、コーティングされたアルミニウム箔の腐食が視覚的に観察されない特性を有する、実施形態 20、21、22、または 23 に記載の組成物。

(実施形態 25)

複合層またはシートを形成するためにアクリルポリマーをさらに含む、実施形態 20、21、22、23、または 24 に記載の組成物。

20

(実施形態 26)

基材上の層またはシートの形態である、実施形態 21、22、23、24、または 25 に記載の組成物。

(実施形態 27)

前記層またはシートが約 5 μm ~ 約 150 μm の厚さを有する、実施形態 26 に記載の組成物。

(実施形態 28)

前記複合層またはシートが約 150 μm の厚さを有する、実施形態 25 に記載の組成物。

(実施形態 29)

前記基材が導電性基材である、実施形態 26、27、または 28 に記載の組成物。

30

(実施形態 30)

前記導電性基材が、金属フィルム、金属化プラスチックフィルム、またはそれらの組み合わせである、実施形態 29 に記載の組成物。

(実施形態 31)

前記金属フィルムがアルミニウム箔であり、前記金属化プラスチックフィルムが PET である、実施形態 30 に記載の組成物。

(実施形態 32)

第 1 の導電性基材；

第 2 の導電性基材；および

40

実施形態 20、21、22、23、24、25、26、27、28、29、30、または 31 に記載の組成物であり、前記第 1 の導電性基材と前記第 2 の導電性基材との間に配置され、前記第 1 の導電性基材を前記第 2 の導電性基材に結合させる組成物

を含むデバイスであって、

前記組成物は、前記第 1 の導電性基材と前記第 2 の導電性基材との間に 10 ボルトの電位差を印加すると、前記組成物の粘着性が低下する特性を有する、デバイス。

(実施形態 33)

実施形態 20、21、22、23、24、25、26、27、28、29、30、または 31 に記載の組成物を第 1 の導電性基材と第 2 の導電性基材との間に適用して、前記第 1 の導電性基材を前記第 2 の導電性基材に粘着させることを含む、方法。

50

(実施形態 3 4)

前記第 1 の導電性基材と前記第 2 の導電性基材との間に電流を印加して、前記組成物から前記第 1 の導電性基材または前記第 2 の導電性基材または両方の導電性基材を分離することをさらに含む、実施形態 3 3 に記載の方法。

【実施例】

【0054】

本明細書に記載される導電性金属層の劣化および/または腐食を低減できるイオン性組成物および要素が、本明細書に記載される。これらの利点は、以下の実施例によってさらに示され、これは本開示の実施形態を例示することを意図しているが、決して範囲または基礎となる原理を限定することを意図しない。

10

【0055】

以下の実施例で使用される化合物または溶媒の一部の略語を以下に説明する。

KOH：水酸化カリウム

DCM：ジクロロメタン

DMSO：ジメチルスルホキシド

KFSI：フルオロケイ酸カリウム

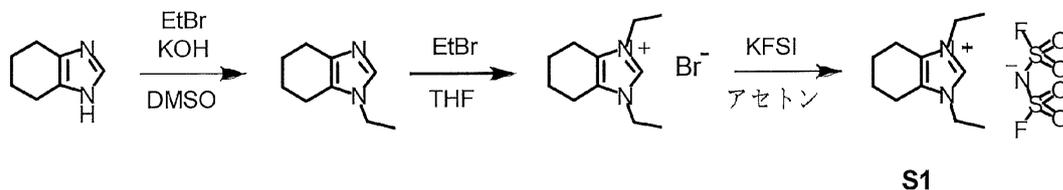
THF：テトラヒドロフラン

【0056】

実施例 1：1, 3 - ジエチル - 4, 5, 6, 7 - テトラヒドロ - 1H - ベンゾ [d] イミダゾール - 3 - イウムビス (フルオロスルホニル) アミド (S1)

20

【化 1 3】



【0057】

4, 5, 6, 7 - テトラヒドロ - 1H - ベンゾ [d] イミダゾール (3.60 g、28.5 mmol)、90% KOH (2.49 g、40 mmol) および DMSO (60 mL) の混合物をアルゴン下、室温で 16 時間攪拌した。反応混合物を外部から冷却してその温度を 15 ~ 20 の範囲に保持しながら、臭化エチル (2.6 mL、35 mmol) を滴下した。次いで、室温での攪拌を 6 時間続けた。反応混合物を氷 / 水 (500 mL) に注ぎ、5 N の NaOH (100 mL) で処理し、DCM (2 x 200 mL) で抽出した。抽出物を水 (200 mL) で洗浄し、Na₂CO₃ で乾燥し、溶媒を減圧下で除去して、1 - エチル - 4, 5, 6, 7 - テトラヒドロ - 1H - ベンゾ [d] イミダゾール (2.17 g、49% の収率) を得た。

30

【0058】

乾燥 THF (20 mL) 中の 1 - エチル - 4, 5, 6, 7 - テトラヒドロ - 1H - ベンゾ [d] イミダゾール (2.00 g、13.3 mmol) および臭化エチル (1.00 mL) の溶液をアルゴン下で攪拌し、60 で 30 時間加熱した。二層が形成された。室温で一晩放置すると、底層が固化した。固体を分離し、ドライアイスで冷却しながらアセトンから再結晶化して、1, 3 - ジエチル - 4, 5, 6, 7 - テトラヒドロ - 1H - ベンゾ [d] イミダゾール - 3 - イウムプロミド (1.95 g、56% 収率) を得た。

40

【0059】

1, 3 - ジエチル - 4, 5, 6, 7 - テトラヒドロ - 1H - ベンゾ [d] イミダゾール - 3 - イウムプロミド (1.87 g、7.21 mmol)、ビス (フルオロスルホニル) イミドのカリウム塩 (KFSI) (1.58 g、7.21 mmol) およびアセトン (20 mL) の混合物をアルゴン下で攪拌し、50 で 3 時間加熱した。室温に冷却した後、固体を濾別し、溶媒を減圧下で除去した。無水 THF (50 mL) 中の残渣の溶液を室温

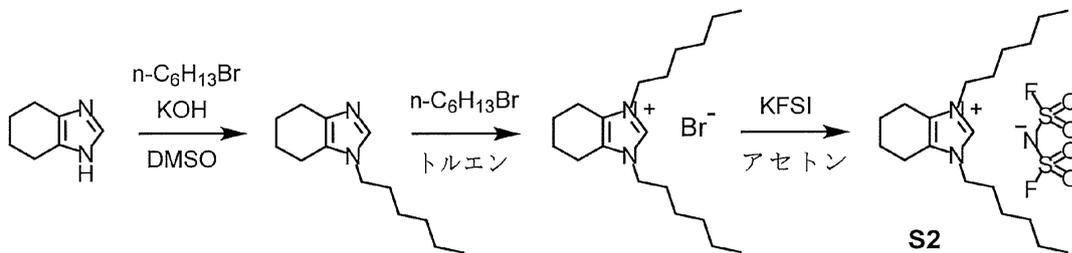
50

で一晩保持し、次いで濾過し、減圧下で濃縮して1,3-ジエチル-4,5,6,7-テトラヒドロ-1H-ベンゾ[d]イミダゾール-3-イウムビス(フルオロスルホニル)アミド、S1(2.50g、96%収率)を得た。¹H NMR(DMSO-d₆): 9.10(s, 1H), 4.10(q, J = 7.5 Hz, 4H), 2.62(bs, 4H), 1.79(bs, 4H), 1.39(t, J = 7.5 Hz, 6H)。

【0060】

実施例2: 1,3-ジヘキシル-4,5,6,7-テトラヒドロ-1H-ベンゾ[d]イミダゾール-3-イウムビス(フルオロスルホニル)アミド(S2)

【化14】



10

【0061】

4,5,6,7-テトラヒドロ-1H-ベンゾ[d]イミダゾール(5.00g、40.9mmol)、90% KOH(3.74g、60mmol)およびDMSO(70mL)の混合物をアルゴン下で攪拌し、40℃で2時間加熱した。10℃に冷却した後、1-ブロモヘキサン(6.3mL、45mmol)を一度に添加し、得られた混合物を攪拌し、40℃で4日間加熱した。反応混合物を氷/水(600mL)に注ぎ、5NのNaOH(100mL)で処理し、DCM(2×400mL)で抽出した。抽出物を水(300mL)で洗浄し、Na₂SO₄で乾燥し、溶媒を減圧下で除去して残渣を得た。残渣のカラムクロマトグラフィ(シリカゲル、酢酸エチル/メタノール、97:3)により、純粋な1-ヘキシル-4,5,6,7-テトラヒドロ-1H-ベンゾ[d]イミダゾール(6.54g、収率77%)を得た。

20

【0062】

乾燥トルエン(50mL)中の1-ヘキシル-4,5,6,7-テトラヒドロ-1H-ベンゾ[d]イミダゾール(3.45g、16.7mmol)および1-ブロモヘキサン(3.5mL、25.0mmol)の溶液を、アルゴン下で攪拌し、100℃で24時間加熱した。揮発物を減圧下で除去した。残渣をエチルエーテル(50mL)で粉砕した。油性底相を分離し、真空オーブンで乾燥させて、1,3-ジヘキシル-4,5,6,7-テトラヒドロ-1H-ベンゾ[d]イミダゾール-3-イウムブロミド(5.99g、収率96%)を得た。

30

【0063】

1,3-ジヘキシル-4,5,6,7-テトラヒドロ-1H-ベンゾ[d]イミダゾール-3-イウムブロミド(2.89g、7.78mmol)、KFSI(1.705g、7.78mmol)およびアセトン(50mL)の混合物をアルゴン下で攪拌し、50℃で2時間加熱した。室温に冷却した後、固体を濾別し、溶媒を減圧下で除去して残渣を得た。無水THF(100mL)中の残渣の溶液を室温で一晩維持し、次いで濾過し、減圧下で濃縮した。酢酸エチル(100mL)中の粗生成物の溶液を水(2×100mL)で洗浄し、Na₂SO₄で乾燥し、溶媒を減圧下で除去して、1,3-ジヘキシル-4,5,6,7-テトラヒドロ-1H-ベンゾ[d]イミダゾール-3-イウムビス(フルオロスルホニル)アミド、S2(3.50g、収率95%)を得た。¹H NMR(DMSO-d₆): 9.02(s, 1H), 4.05(t, J = 7.5 Hz, 4H), 2.61(bs, 4H), 1.80(bs, 4H), 1.74(quintet, J = 6.5 Hz, 4H), 1.28(bs, 12H), 0.87(t, J = 7.0 Hz, 6H) ppm。

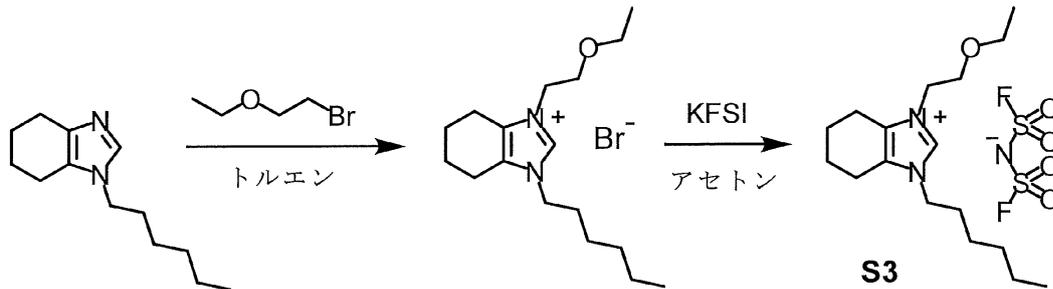
40

【0064】

50

実施例 3 : 3 - (2 - エトキシエチル) - 1 - ヘキシル - 4 , 5 , 6 , 7 - テトラヒドロ - 1 H - ベンゾ [d] イミダゾール - 3 - イウムビス (フルオロスルホニル) アミド (S 3)

【化 1 5】



10

【 0 0 6 5】

乾燥トルエン (5 0 m L) 中の 1 - ヘキシル - 4 , 5 , 6 , 7 - テトラヒドロ - 1 H - ベンゾ [d] イミダゾール (3 . 1 0 g 、 1 5 . 0 m m o l) および 2 - ブロモエチルエチルエーテル (2 . 8 m L 、 2 5 . 0 m m o l) の溶液をアルゴン下で撹拌し、100 で 2 4 時間加熱した。揮発物を減圧下で除去した。残渣をエチルエーテル (5 0 m L) で粉砕した。油性底相を分離し、真空オーブンで乾燥させて、3 - (2 - エトキシエチル) - 1 - ヘキシル - 4 , 5 , 6 , 7 - テトラヒドロ - 1 H - ベンゾ [d] イミダゾール - 3 - イウムプロミド (5 . 1 8 g 、 9 6 % 収率) を得た。

20

【 0 0 6 6】

3 - (2 - エトキシエチル) - 1 - ヘキシル - 4 , 5 , 6 , 7 - テトラヒドロ - 1 H - ベンゾ [d] イミダゾール - 3 - イウムプロミド (5 . 1 6 g 、 1 4 . 4 m m o l) 、 K F S I (3 . 1 5 g 、 1 4 . 4 m m o l) およびアセトン (5 0 m L) の混合物をアルゴン下で撹拌し、50 で 2 時間加熱した。室温に冷却した後、固体を濾別し、溶媒を減圧下で除去して残渣を得た。無水 T H F (1 0 0 m L) 中の残渣の溶液を室温で一晩維持し、次いで濾過し、減圧下で濃縮して粗生成物を得た。エチルエーテル / 酢酸エチル (5 0 m L / 5 0 m L) 中の粗生成物の溶液を水 (5 0 m L) で洗浄し、Na₂SO₄ で乾燥し、溶媒を減圧下で除去して 3 - (2 - エトキシエチル) - 1 - ヘキシル 4 , 5 , 6 , 7 - テトラヒドロ - 1 H - ベンゾ [d] イミダゾール - 3 - イウムビス (フルオロスルホニル) アミド、S 3 (5 . 3 7 g 、 8 1 % 収率) を得た。¹H NMR (DMSO - d₆) : 8 . 9 6 (s , 1 H) , 4 . 2 5 (t , J = 5 . 0 H z , 2 H) , 4 . 0 8 (t , J = 7 . 5 H z , 2 H) , 3 . 6 7 (t , J = 5 . 0 H z , 2 H) , 3 . 4 4 (q , J = 7 . 0 H z , 2 H) , 2 . 6 2 (b s , 4 H) , 1 . 7 9 (b s , 4 H) , 1 . 7 2 (q u i n t e t , J = 6 . 5 H z , 2 H) , 1 . 2 8 (b s , 6 H) , 1 . 0 7 (t , J = 7 . 0 H z , 3 H) , 0 . 8 7 (t , J = 7 . 0 H z , 3 H) p p m。

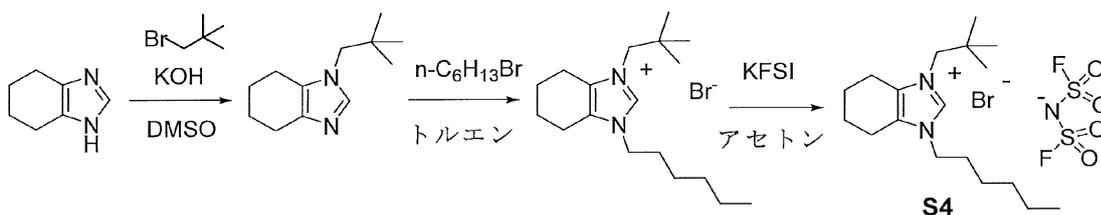
30

【 0 0 6 7】

実施例 4 : 1 - ヘキシル - 3 - ネオペンチル - 4 , 5 , 6 , 7 - テトラヒドロ - 1 H - ベンゾ [d] イミダゾール - 3 - イウムビス (フルオロスルホニル) アミド (S 4)

40

【化 1 6】



【 0 0 6 8】

4 , 5 , 6 , 7 - テトラヒドロ - 1 H - ベンゾ [d] イミダゾール (5 . 0 0 g 、 4 0

50

. 9 mmol)、90% KOH (3.74 g、60 mmol) および DMSO (70 mL) の混合物をアルゴン下で攪拌し、40 °C で2時間加熱した。10 °C に冷却した後、臭化ネオペンチル (5.5 mL、44 mmol) を一度に添加し、得られた混合物を攪拌し、40 °C で4日間加熱した。反応混合物を氷/水 (800 mL) に注ぎ、5 N の NaOH (200 mL) で処理し、DCM (2 × 400 mL) で抽出した。抽出物を水 (200 mL) で洗浄し、Na₂SO₄ で乾燥し、溶媒を減圧下で除去して残渣を得た。残渣のカラムクロマトグラフィ (シリカゲル、酢酸エチル/メタノール、95 : 5) により、純粋な 1 - ネオペンチル - 4, 5, 6, 7 - テトラヒドロ - 1 H - ベンゾ [d] イミダゾール (4.72 g、収率 60%) を得た。

【0069】

乾燥トルエン (75 mL) 中の 1 - ネオペンチル - 4, 5, 6, 7 - テトラヒドロ - 1 H - ベンゾ [d] イミダゾール (4.60 g、23.9 mmol) および 1 - ブロモヘキサン (8.0 mL、57.0 mmol) の溶液はアルゴン下で攪拌し、100 °C で24時間加熱した。揮発物を減圧下で除去した。残渣をエチルエーテル (50 mL) で粉砕し、デカンテーションにより分離した。その暗色を除去するために、生成物をメタノール (100 mL) に溶解し、活性炭で処理し、一晩攪拌した。セライトのパッドを使用して炭素を濾別し、溶媒を減圧下で除去して、純粋な 1 - ヘキシル - 3 - ネオペンチル - 4, 5, 6, 7 - テトラヒドロ - 1 H - ベンゾ [d] イミダゾール - 3 - イウムプロミド (5.00 g、収率 58%) を得た。

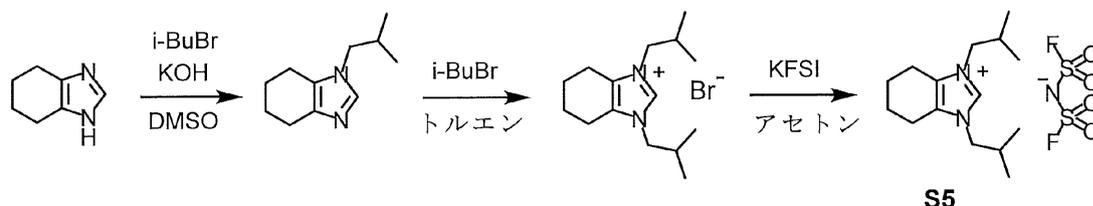
【0070】

1 - ヘキシル - 3 - ネオペンチル - 4, 5, 6, 7 - テトラヒドロ - 1 H - ベンゾ [d] イミダゾール - 3 - イウムプロミド (5.00 g、14.0 mmol)、KFSI (3.07 g、14.0 mmol) およびアセトン (60 mL) の混合物をアルゴン下で攪拌し、60 °C で2時間加熱した。室温に冷却した後、固体を濾別し、溶媒を減圧下で除去した。無水 THF (100 mL) 中の残渣の溶液を室温で一晩保持し、次いで濾過し、減圧下で濃縮して、1 - ヘキシル - 3 - ネオペンチル - 4, 5, 6, 7 - テトラヒドロ - 1 H - ベンゾ [d] イミダゾール - 3 - イウムビス (フルオロスルホニル) アミド、S4 (6.20 g、収率 97%) を得た。¹H NMR (DMSO - d₆): 8.99 (s, 1H), 4.10 (t, J = 7.0 Hz, 2H), 3.90 (s, 2H), 2.61 (m, 4H), 1.78 (m, 4H), 1.74 (m, 2H), 1.26 (bs, 6H), 0.95 (s, 9H), 0.86 (t, J = 7.0 Hz, 3H) ppm。

【0071】

実施例 5 : 1, 3 - ジイソブチル - 4, 5, 6, 7 - テトラヒドロ - 1 H - ベンゾ [d] イミダゾール - 3 - イウムビス (フルオロスルホニル) アミド (S5)

【化 17】



【0072】

4, 5, 6, 7 - テトラヒドロ - 1 H - ベンゾ [d] イミダゾール (6.00 g、49.1 mmol)、90% KOH (4.35 g、70 mmol) および DMSO (80 mL) の混合物をアルゴン下で攪拌し、50 °C で1時間加熱した。10 °C に冷却した後、温度を 10 ~ 15 °C の範囲に保ちながら、1時間以内に臭化イソブチル (5.7 mL、52 mmol) を少しずつ添加し、次いで得られた混合物を室温で40時間攪拌した。反応混合物を氷/水 (400 mL) に注ぎ、5 N の NaOH (100 mL) で処理し、DCM (2 × 200 mL) で抽出した。抽出物を水 (200 mL) で洗浄し、Na₂SO₄ で乾燥し

10

20

30

40

50

、溶媒を減圧下で除去して残渣を得た。残渣のカラムクロマトグラフィ（シリカゲル、酢酸エチル/メタノール、95：5）により、純粋な1-イソブチル-4,5,6,7-テトラヒドロ-1H-ベンゾ[d]イミダゾール（5.62g、収率64%）を得た。

【0073】

1-イソブチル-4,5,6,7-テトラヒドロ-1H-ベンゾ[d]イミダゾール（5.50g、30.8mmol）、臭化イソブチル（5.4mL、50mmol）およびトルエン（75mL）の混合物をアルゴン下で攪拌し、100℃で16時間加熱した。TLCは、出発材料の約半分のみが反応したことを示した。温度を120℃に上げ、さらに20時間反応を続けた。溶媒を減圧下で除去した。残渣をエチルエーテルで完全に洗浄し、80℃の真空オーブンで乾燥させて、1,3-ジイソブチル-4,5,6,7-テトラヒドロ-1H-ベンゾ[d]イミダゾール-3-イウムブロミド（5.50g、57%収率）を得た。

10

【0074】

1,3-ジイソブチル-4,5,6,7-テトラヒドロ-1H-ベンゾ[d]イミダゾール-3-イウムブロミド（4.80g、15.2mmol）、KF/SI（3.29g、15.0mmol）およびアセトン（50mL）の混合物をアルゴン下で攪拌し、50℃で2時間加熱した。室温に冷却した後、固体を濾別し、溶媒を減圧下で除去した。酢酸エチル（150mL）中の残渣の溶液を水（100mL）で洗浄し、飽和重炭酸ナトリウムで水層のpHを8.0に調整し、無水硫酸ナトリウムで乾燥し、減圧下で濃縮して残渣を得た。残渣をエチルエーテル/ヘキサンの混合物（1：1、100mL）で粉碎して、結晶性1,3-ジイソブチル-4,5,6,7-テトラヒドロ-1H-ベンゾ[d]イミダゾール-3-イウムビス（フルオロスルホニル）アミド、S5（4.79g、収率76%）を得た。¹H NMR（DMSO-d₆）：9.02（s, 1H）, 3.92（d, J = 7.5 Hz, 4H）, 2.61（bs, 4H）, 2.02（m, 2H）, 1.80（bs, 4H）, 0.89（d, J = 6.5 Hz, 12H）ppm。

20

【0075】

実施例6：イオン性液体の疎水性の測定

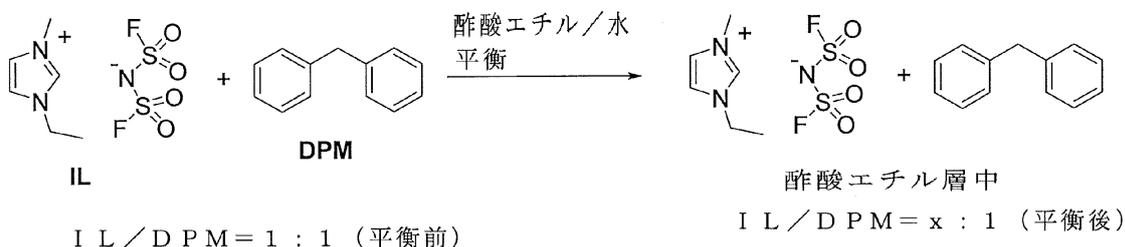
水/酢酸エチルを含む系は、イオン性液体の親水性-疎水性挙動を測定するために設計された。内部標準としてジフェニルメタン（DPM）が使用された。したがって、酢酸エチル（100mL）中のイオン性液体（0.5mmol）およびジフェニルメタン（0.5mmol）の溶液を水（100mL）とともに振盪した。相分離後、有機層中の酢酸エチルを減圧下で蒸発させることにより除去し、イオン性液体およびDPMの混合物を残した。次いで、これら2つの化学物質のモル比をNMR分析によって決定した。DPMが100%の疎水性を表すと仮定すると、イオン性液体とDPMとのモル比は、イオン性液体の疎水性がどの程度であるかを示す。この開示の目的のために、この試験で得られた値は、「分配比」または「IL/DPM」と呼ばれる。イオン性液体（IL）が有機層（例えば酢酸エチル）よりも水中に留まることを好む場合（IL/DPM < 0.5）、それを親水性と呼ぶ。イオン性液体が水層よりも有機層（例えば酢酸エチル）に留まることを好む場合（IL/DPM > 0.5）、それを疎水性と呼ぶ。2つのイオン性液体（S1およびS2）および参照化合物CE-1のデータを以下に示す。

30

40

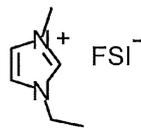
【0076】

【化18】



50

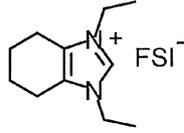
【化19】



CE1

IL/DPM=0.49

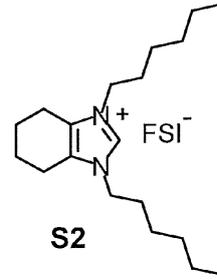
弱い親水性



S1

IL/DPM=0.77

中程度の疎水性



S2

IL/DPM=1.00

強い疎水性

10

【0077】

実施例7：ポリマー溶液の調製

【0078】

アクリル酸 n - ブチル (BA) (95 質量部)、アクリル酸 (AA) (5 質量部) および酢酸エチル (125 質量部) を、窒素ガス入口を備えた凝縮器に取り付けられたフラスコ (攪拌棒を含む) に導入した。混合物を室温で攪拌しながら、窒素ガスを約 1 時間導入して、反応系から酸素を除去した。アゾビスイソブチロニトリル (AIBN) (0.2 質量部) を添加し、得られた混合物の温度を約 63 ± 2 に上げ、得られた混合物を重合のために約 5 ~ 6 時間攪拌した。加熱を停止した後、アクリルポリマー含有溶液が約 30 重量% の濃度で得られた。ポリマーの見かけの分子量 (P1) は、Tg (ガラス転移温度) が約 -50 で、約 800,000 であると決定された。

20

【0079】

実施例8：粘着シートの調製

第一に、電気剥離可能な粘着剤組成物は、上記で記載のポリマー溶液を、ポリマー溶液 100 グラムあたり N, N, N', N' - テトラグリシジル - m - キシレンジアミンなどの 0.01 g のエポキシ架橋剤、および上記で記載のイオン性液体化合物の 1 つ (1.5 重量%) と混合することにより得られた。次いで、調製された組成物を、表面処理された PET セパレータ (剥離ライナー) [MRF38, Mitsubishi Chemical Corp. Japan により製造] 上にコーティング/堆積し、約 150 μm (ミクロン) の厚さの粘着剤複合層を形成した。次いで、コーティングされたフィルムを 130 で約 3 分間加熱乾燥させた。次いで、露出した粘着剤コーティングの上に 2 番目の PET セパレータ (剥離ライナー) を配置して層状シート (PET セパレータ/粘着剤コーティング/PET セパレータ) を得て、それを次いで 50 で約 20 ~ 24 時間経年/乾燥させて、次いで必要になるまで周囲条件下で保管した。

30

【0080】

実施例9：粘着剤イオン性組成物腐食試験

粘着シートをナノ Al コーティングされた層に適用する直前に、前述の剥離ライナーを取り除いた。前述の粘着シートを、アルミニウムフィルム (厚さ 50 nm のアルミニウムコーティングされた PET フィルム [Toray Advanced Film, Tokyo, Japan]) の金属表面に適用した。

40

【0081】

調製したフィルムを 85 および 85 % 相対湿度に設定した温度および湿度のベンチトップチャンバ (ESPEC North America, [Hudsonville, MI, USA], Criterion Temperature & Humidity Benchtop Model BTL-433) に入れ、70 時間確認した。粘着剤とアルミニウム箔との間の界面を、アルミニウム箔の腐食性劣化および/または選択的粘着性の粘着剤中の金属の溶解および/またはアルミニウム箔の孔食の兆候について視覚的に検査した。本明細書に記載の腐食性のいずれも視覚的に観察されなかった場合、サンプル

50

ルは「腐食なし」と示された。ここに記載されている腐食性のいずれかが観察され、CE - 1で視覚的に観察された腐食性と同じくらいであった（またはそれに近かった）場合、サンプルは「過度の腐食」として示される。本明細書に記載の腐食性が視覚的にほとんど観察されず、CE - 1で視覚的に観察されるよりも著しく腐食性が低い場合、サンプルは「わずかな腐食」として示された。結果を以下の表1にまとめる。

【0082】

【表1】

ILなし	CE-1	S1	S2	S3	S4	S5
腐食なし	過度の腐食	過度の腐食	腐食なし	わずかな腐食	過度の腐食	腐食なし

10

【0083】

実施例10：粘着剤組成物の粘着試験

粘着試験は、特願2015-228951号明細書および/またはJP2015-204998に記載され、図3にも示されている方法で行われた。

【0084】

図3に示すように、装置300において、粘着剤材料303は、幅25mm、長さ100mmの導電性基材301上にコーティングされ、導電性基材301よりも幅が10mm~25mm、長さが100mm長い別の柔軟な導電層302（アルミニウム箔および/またはPETなどの金属化プラスチックフィルムなど）上への2kgのローラーおよびロールプレスによる圧延圧力の適用により、積層された。

20

【0085】

結合/剥離テスター（Mark-10, Copiague, New York, USA, モデルESM303電動張力/圧縮スタンド）には、Mark-10フォースゲージ（シリーズ7-1000）が装備され、下部および上部クランプを有していた。図3に示すように、実施例2で説明した導電性基材301を下部クランプに固定し、次いで電源304（Protek DC Power Supply 3006B）の正極に電氣的に接続した。最上層302は、電源オン/オフスイッチ305に接続された同じ電源の負極に接続された上部クランプに固定された。電源の出力範囲は0~100VDCであった。

【0086】

動的試験では、移動/剥離速度を300mm/分に設定し、剥離または分離が開始してから数秒後に電圧を印加した。時間および応力ゲージからの剥離強度の読み取り値は、データ収集システム（Mark-10MESURgauge Plus）によって記録される。図4は、5重量%の濃度の化合物S2でドーブされた粘着剤材料に10VDCが印加されたときの経時的な180度剥離強度の変化を示す。

30

【0087】

静的剥離テストでは、サンプルをテスターに固定し、同じ方法で電源に接続した。初期の180度剥離の剥離強度は、300mm/分の同じ剥離速度で測定された。その後、剥離を止めた。DC電圧（例えば10VDC）がしばらく（例えば10秒）印加された。次いで、剥離強度を同じ剥離速度300mm/分で測定した。化合物S2の同じ粘着剤サンプルの場合、初期剥離強度は3.0N/cmで、10VDCを10秒間印加した後の残留粘着剥離強度は約0.2である。

40

【0088】

別段の指示がない限り、本明細書と実施形態で使用される成分の量、特性、例えば分子量、反応条件などを表すすべての数字は、すべての場合において用語「約」によって修飾されていると理解されるべきである。したがって、反対に示されない限り、本明細書と付属の実施形態における数値パラメータは、達成されることが求められる所望の特性に従って変更されてもよい近似値である。少なくとも、実施形態の範囲への均等論の適用を制限する意図ではなく、各数値パラメータは、報告された有効数字の数を考慮して、通常丸め手法を適用することにより少なくとも解釈されるべきである。

50

【 0 0 8 9 】

本開示の発明を説明する文脈において（特に以下の実施形態の文脈において）使用される用語「a」、「an」、「the」、および類似の指示対象は、本明細書で別段の指示がない限りまたは文脈による明確な否定がない限り、単数および複数の両方を網羅すると解釈されるべきである。本明細書に記載のすべての方法は、本明細書で別段の指示がない限りまたは文脈による明確な否定がない限り、任意の適切な順序で実行され得る。本明細書で提供されるありとあらゆる例、または例示的な言語（例えば、「例えば（such as）」）の使用は、単に本発明をよりよく説明することを目的とし、いずれの実施形態の範囲も限定するものではない。本明細書中のいかなる言語も、本開示の発明の実施に必須のあらゆる請求されていない要素を示すと解釈されるべきではない。

10

【 0 0 9 0 】

本明細書に開示された代替の要素または実施形態の分類は、限定として解釈されるべきではない。各群の構成員は、個々に、またはその群の他の構成員または本明細書中に見出される他の要素との任意の組み合わせで言及および特許請求され得る。便宜上および/または特許性の理由から、群の1つ以上の構成員が群に含まれ得るか、または群から削除され得ると予想される。そのような包含または削除が発生すると、明細書は修正されたグループを含むと見なされ、添付の実施形態で使用されるすべてのマーカッシュグループの記述を満たす。

【 0 0 9 1 】

実施形態を実施するために本発明者らが知っている最良の形態を含む、特定の発明が本明細書に記載されている。当然のことながら、これらの記載された実施形態に対する変形形態は、前述の説明を読むと当業者には明らかになる。本発明者は、当業者がそのような変形形態を適切に使用することを予想しており、本発明者らは、本明細書に具体的に記載されているものとは別の方法で本発明を実施することを意図している。したがって、実施形態は、適用法によって許容されるように、実施形態に列挙された主題のすべての変更形態および均等物を含む。さらに、そのすべての可能な変形形態における上記の要素の任意の組み合わせは、本明細書で別段の指示がない限りまたは文脈による明確な否定がない限り、想定される。

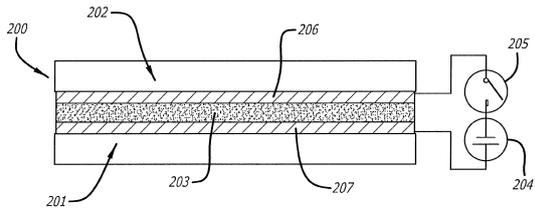
20

【 0 0 9 2 】

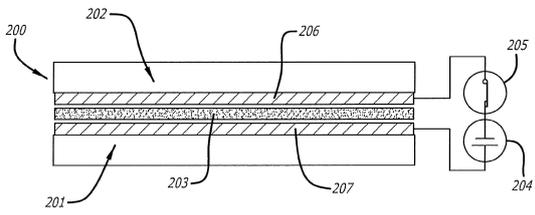
最後に、本明細書に開示された実施形態は実施形態の原理の例示であることが理解されるべきである。使用され得る他の変更は実施形態の範囲内にある。したがって、限定ではなく例として、本明細書の教示に従って代替の実施形態を利用し得る。したがって、実施形態は、示され説明された正にその通りの実施形態に限定されない。

30

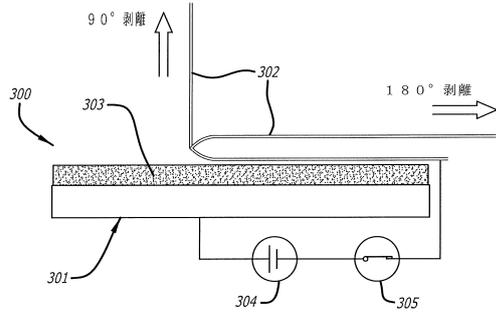
【図1】



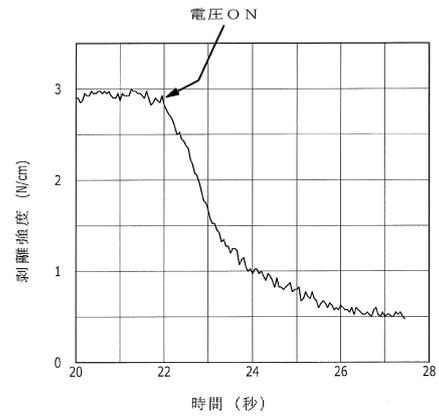
【図2】



【図3】



【図4】



フロントページの続き

(51)Int.Cl. F I
C 0 9 J 11/06 (2006.01) C 0 9 J 11/06
C 0 9 J 5/00 (2006.01) C 0 9 J 5/00
C 0 9 J 7/38 (2018.01) C 0 9 J 7/38

(72)発明者 チャン、ホンシー
アメリカ合衆国 カリフォルニア州 9 2 5 9 2、テメクラ、エンパシー アベニュー 3 2 9 3
8

(72)発明者 ワン、ボン
アメリカ合衆国 カリフォルニア州 9 2 1 2 6、サン ディエゴ、ダッブル ウェイ 1 2 0 6
2

審査官 松澤 優子

(56)参考文献 特開2016-003300(JP,A)
KSHAMA SHETTY S ET AL, Eco-friendly benzimidazolium based ionic liquid as a corrosion inhibitor for aluminum alloy composite in acidic media, JOURNAL OF MOLECULAR LIQUIDS, 2016年, vol. 225, no.25, pages 426-438, DOI: 10.1016/J.MOLLIQ.2016.11.037

(58)調査した分野(Int.Cl., DB名)
C A p l u s / R E G I S T R Y (S T N)
C 0 7 D 2 3 5 / 0 2