

19



OFICINA ESPAÑOLA DE
PATENTES Y MARCAS

ESPAÑA



11 Número de publicación: **2 433 681**

51 Int. Cl.:

C07D 233/58 (2006.01)

C07D 233/64 (2006.01)

C07C 63/24 (2006.01)

C07C 205/57 (2006.01)

C08G 59/68 (2006.01)

12

TRADUCCIÓN DE PATENTE EUROPEA

T3

96 Fecha de presentación y número de la solicitud europea: **21.12.2006 E 06842980 (2)**

97 Fecha y número de publicación de la concesión europea: **11.09.2013 EP 2103600**

54 Título: **Compuesto de clatrato, catalizador de endurecimiento, composición para formar una resina endurecida, y resina endurecida**

45 Fecha de publicación y mención en BOPI de la traducción de la patente:
12.12.2013

73 Titular/es:

**NIPPON SODA CO., LTD. (100.0%)
2-1 OHEMACHI 2-CHOME CHIYODA-KU
TOKYO 100-8165, JP**

72 Inventor/es:

**KANEKO, MASAMI y
AMANOKURA, NATSUKI**

74 Agente/Representante:

CURELL AGUILÁ, Mireia

ES 2 433 681 T3

Aviso: En el plazo de nueve meses a contar desde la fecha de publicación en el Boletín europeo de patentes, de la mención de concesión de la patente europea, cualquier persona podrá oponerse ante la Oficina Europea de Patentes a la patente concedida. La oposición deberá formularse por escrito y estar motivada; sólo se considerará como formulada una vez que se haya realizado el pago de la tasa de oposición (art. 99.1 del Convenio sobre concesión de Patentes Europeas).

DESCRIPCIÓN

Compuesto de clatrato, catalizador de endurecimiento, composición para formar una resina endurecida, y resina endurecida.

5

Campo técnico

La presente invención se refiere a un nuevo compuesto de clatrato, a un catalizador de endurecimiento que contiene el compuesto de clatrato, a una composición para formar una resina endurecida que utiliza el catalizador de endurecimiento, a un procedimiento de producción de una resina endurecida que utiliza la composición para formar una resina endurecida y a una resina endurecida obtenida utilizando el método de producción.

10

Antecedentes de la técnica

Las resinas epoxi presentan excelentes propiedades mecánicas y térmicas y por lo tanto se utilizan ampliamente en muchos campos. Típicamente se utiliza un imidazol como catalizador de endurecimiento para endurecer estas resinas epoxi, aunque en los líquidos mixtos de resina epoxi-imidazol, el inicio del endurecimiento tiende a ser muy rápido, lo que crea un problema en el sentido de que la estabilidad en un solo reactor es muy escasa.

15

De acuerdo con lo anteriormente expuesto, a modo de agente de endurecimiento alternativo, se ha propuesto la utilización de una sal de adición de ácido de un imidazol obtenida mediante la adición de un ácido hidroxibenzoico a un imidazol (ver el documento de patente nº 1), la utilización de un clatrato de un compuesto tetracisfenol (tal como 1,1,2,2-tetracis(4-hidroxifenil)etano (en adelante abreviado como "TEP") y un imidazol (ver el documento de patente nº 2) y la utilización de clatrato de imidazol de ácido isoftálico (ver el documento de patente nº 3). Estas sales de adición de ácido de un imidazol y clatratos proporcionan un cierto nivel de efecto, pero se ha buscado intensamente desarrollar catalizadores adicionales que presenten una funcionalidad similar o superior.

20

25

Documento de patente nº 1:

Solicitud examinada de patente japonesa, segunda publicación nº Hei 04-2638

30

Documento de patente nº 2:

Solicitud no examinada de patente japonesa, primera publicación nº Hei 11-71449

35

Documento de patente nº 3:

Patente US nº 3.746.686.

Exposición de la invención

40

Problemas que debe resolver la invención

Un objetivo de la presente invención es proporcionar un catalizador de endurecimiento (un compuesto de clatrato) para el que pueda suprimirse la reacción de endurecimiento a baja temperatura, permitiendo una mejora de la estabilidad en un solo reactor, pero que puede endurecer efectivamente una resina con el tratamiento térmico. Además, la presente invención proporciona además una composición para formar una resina endurecida que utiliza el catalizador de endurecimiento anteriormente indicado, un procedimiento para producir una resina endurecida que utiliza la composición para formar una resina endurecida, y una resina endurecida obtenida utilizando el procedimiento de producción.

45

50

Medios para resolver los problemas

Como resultado de una investigación exhaustiva destinada a conseguir los objetivos anteriormente indicados, se ha descubierto que los objetivos anteriormente indicados podían conseguirse mediante la utilización de un compuesto de clatrato que contenía un imidazol específico y un ácido específico, y por lo tanto se ha podido completar la presente invención.

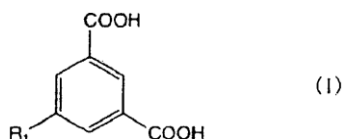
55

En otras palabras, la presente invención se refiere a:

60

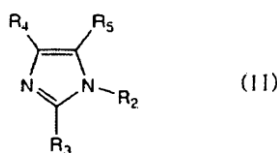
- (1) un compuesto de clatrato que contiene por lo menos un compuesto de ácido isoftálico representado por la fórmula (I) mostrada posteriormente:

[Fórmula química 1]



5 [en la que R₁ representa un grupo alquilo C1 a C6, un grupo alcoxi C1 a C6, un grupo nitro o un grupo hidroxilo], y un compuesto imidazol representado por la fórmula (II) mostrada a continuación:

[Fórmula química 2]



10 [en la que R₂ representa un átomo de hidrógeno, un grupo alquilo C1 a C10, un grupo fenilo, un grupo bencilo o un grupo cianoetilo, y R₃ a R₅ representan, cada uno independientemente, un átomo de hidrógeno, un grupo nitro, un átomo de halógeno o un grupo alquilo C1 a C20, un grupo fenilo, un grupo bencilo o un grupo acilo C1 a C20 que pueden presentar un sustituyente; con la condición de que el compuesto de clatrato no sea [Co(5-nbdc)₂(imH)₂]_n ni [Cu₃(5-nbdc)₂(OH)₂(imH)₂]_n, en la que 5-nbdcH₂ representa ácido 5-nitro-1,3-bencenodicarboxílico e imH representa imidazol;

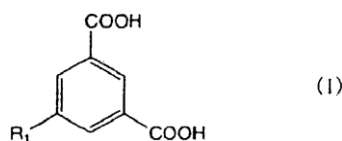
15

- 20 (2) el compuesto dado a conocer en (1), anteriormente, en el que el compuesto de ácido isoftálico representado por la fórmula (I) es ácido 5-t-butilisoftálico o ácido 5-nitroisoftálico;
- 25 (3) el compuesto dado a conocer en (1) o (2), en el que el compuesto imidazol representado por la fórmula (II) es 2-etil-4-metilimidazol, 2-metilimidazol, 1-bencil-2-metilimidazol, 2-heptadecilimidazol, 2-undecilimidazol o 2-fenil-4-metil-5-hidroximetilimidazol;
- (4) el compuesto dado a conocer en cualquiera de entre (1) y (3), anteriormente, en el que R₂ en la fórmula (II) es un átomo de hidrógeno,
- 30 (5) el compuesto dado a conocer en cualquiera de entre (1) y (4), anteriormente, en el que el compuesto se encuentra en forma de unos polvos, y
- (6) un catalizador de endurecimiento para una resina epoxi, que contiene un compuesto de clatrato dado a conocer en cualquiera de entre (1) y (5), anteriormente.

35 Además, la presente invención se refiere además a:

- (7) una composición para formar una resina epoxi endurecida, que contiene:
- 40 (A) una resina epoxi, y
- (B) un compuesto de clatrato que contiene por lo menos un compuesto de ácido isoftálico representado por la fórmula (I) mostrada a continuación:

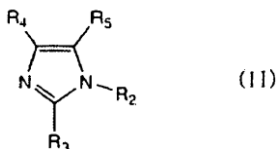
[Fórmula química 3]



[en la que R₁ representa un grupo alquilo C1 a C6, un grupo alcoxi C1 a C6, un grupo nitro o un grupo hidroxilo], y un compuesto imidazol representado por la fórmula (II), mostrada a continuación:

50

[Fórmula química 4]



- 5 [en la que R₂ representa un átomo de hidrógeno, un grupo alquilo C1 a C10, un grupo fenilo, un grupo bencilo o un grupo cianoetilo, y R₃ a R₅ representan, cada uno independientemente, un átomo de hidrógeno, un grupo nitro, un átomo de halógeno, o un grupo alquilo C1 a C20, un grupo fenilo, un grupo bencilo o un grupo acilo C1 a C20 que pueden presentar un sustituyente];
- 10 (8) la composición para formar una resina epoxi endurecida dada a conocer en (7), anteriormente, en la que una cantidad del compuesto imidazol representado por la fórmula (II) en el componente (B) se encuentra comprendida dentro de un intervalo de entre 0,01 y 1,0 mol por cada 1 mol de anillos epoxi dentro de la resina epoxi del componente (A);
- 15 (9) la composición para formar una resina epoxi endurecida dada a conocer en (7) u (8), anteriormente, en la que el compuesto de ácido isoftálico representado por la fórmula (I) es ácido 5-t-butilisoftálico o ácido 5-nitroisoftálico; y
- 20 (10) la composición para formar una resina epoxi endurecida dada a conocer en cualquiera de entre (7) y (9), anteriormente, en la que el compuesto imidazol representado por la fórmula (II) es 2-etil-4-metilimidazol, 2-metilimidazol, 1-bencil-2-metilimidazol, 2-heptadecil-imidazol, 2-undecilimidazol o 2-fenil-4-metil-5-hidroximetilimidazol.

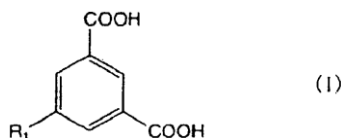
Además, la presente invención se refiere además a:

- 25 (11) un procedimiento para producir una resina epoxi endurecida, incluyendo el endurecimiento de una composición para formar una resina epoxi endurecida dada a conocer en cualquiera de entre (7) y (10), anteriormente, mediante la realización de un tratamiento térmico;
- 30 (12) el procedimiento de producir una resina epoxi endurecida dado a conocer en (11), anteriormente, en el que la temperatura de calentamiento durante el tratamiento térmico se encuentra comprendida dentro del intervalo de entre 60°C y 250°C; y
- 35 (13) una resina epoxi endurecida obtenida utilizando un procedimiento dado a conocer en (11) o (12), anteriormente.

Además, la presente invención se refiere además a:

- 40 (14) un compuesto que puede obtenerse tras disolver o suspender por lo menos un compuesto de ácido isoftálico representado por la fórmula (I), mostrada a continuación:

[Fórmula química 5]



- 45 [en la que R₁ representa un grupo alquilo C1 a C6, un grupo alcoxi C1 a C6, un grupo nitro o un grupo hidroxilo], y un compuesto imidazol representado por la fórmula (II) mostrada a continuación:

[Fórmula química 6]

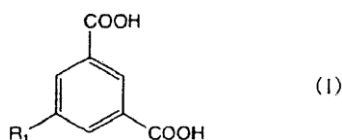
- 50 (11)
-
- (II)

[en la que R_2 representa un átomo de hidrógeno, un grupo alquilo C1 a C10, un grupo fenilo, un grupo bencilo o un grupo cianoetilo, y R_3 a R_5 representan, cada uno independientemente, un átomo de hidrógeno, un grupo nitro, un átomo de halógeno, o un grupo alquilo C1 a C20, un grupo fenilo, un grupo bencilo o un grupo acilo C1 a C20 que pueden presentar un sustituyente] en un solvente y posteriormente llevar a cabo un calentamiento, con la condición de que el compuesto de clatrato no sea $[\text{Co}(5\text{-nbdc})_2(\text{imH})_2]_n$ ni $[\text{Cu}_3(5\text{-nbdc})_2(\text{OH})_2(\text{imH})_2]_n$, en la que 5-nbdcH₂ representa ácido 5-nitro-1,3-benzenodicarboxílico e imH representa imidazol;

(15) el compuesto dado a conocer en (14), anteriormente, que puede obtenerse mediante disolución o suspensión de un compuesto de ácido isoftálico representado por la fórmula (I) y un compuesto imidazol representado por la fórmula (II) en un solvente, llevando a cabo un calentamiento y después realizando una cristalización;

(16) la utilización de un compuesto anfitrión para un compuesto de clatrato, caracterizado porque el compuesto anfitrión está representado por la fórmula (I) mostrada a continuación:

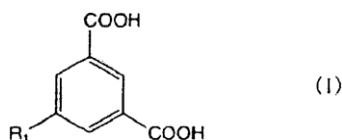
[Fórmula química 7]



[en la que R_1 representa un grupo nitro o un grupo alquilo C4], con la condición de que el compuesto de clatrato no sea $[\text{Co}(5\text{-nbdc})_2(\text{imH})_2]_n$ ni $[\text{Cu}_3(5\text{-nbdc})_2(\text{OH})_2(\text{imH})_2]_n$, en la que 5-nbdcH₂ representa ácido 5-nitro-1,3-benzenodicarboxílico e imH representa imidazol; y

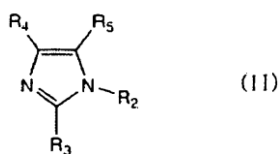
(17) la utilización dada a conocer en (16), anteriormente, en el que el grupo alquilo C⁴ es un grupo t-butilo,

(18) la utilización de un compuesto de clatrato que comprende por lo menos un compuesto de ácido isoftálico representado por la fórmula (I), mostrada a continuación:



en la que R_1 representa un grupo alquilo C1 a C6, un grupo alcoxi C1 a C6, un grupo nitro o un grupo hidroxilo, y

un compuesto imidazol representado por la fórmula (II), mostrada a continuación:



en la que R_2 representa un átomo de hidrógeno, un grupo alquilo C1 a C10, un grupo fenilo, un grupo bencilo o un grupo cianoetilo, y R_3 a R_5 representan, cada uno independientemente, un átomo de hidrógeno, un grupo nitro, un átomo de halógeno, o un grupo alquilo C1 a C20, un grupo fenilo, un grupo bencilo o un grupo acilo C1 a C20 que puede presentar un sustituyente, a modo de catalizador de endurecimiento.

Efectos de la invención

Según un catalizador de endurecimiento (compuesto de clatrato) de la presente invención, la reacción de endurecimiento puede suprimirse a baja temperatura, permitiendo una mejora de la estabilidad en un solo reactor, mientras que una resina puede endurecerse con eficacia mediante la realización de un tratamiento térmico.

Breve descripción de los dibujos

La figura 1 es un gráfico de un análisis térmico (TG/ATD) de un clatrato según el Ejemplo 1 de la presente

invención.

La figura 2 es un gráfico de un análisis térmico (CDB) de la modificación de la temperatura del clatrato según el Ejemplo 1 de la presente invención.

La figura 3 es un gráfico de un análisis térmico (CDB) a una temperatura fija (80°C) del clatrato según el Ejemplo 1 de la presente invención.

La figura 4 es un gráfico de un análisis térmico (TG/ATD) de un clatrato según el Ejemplo 2 de la presente invención.

La figura 5 es un gráfico de un análisis térmico (CDB) de la modificación de la temperatura del clatrato según el Ejemplo 2 de la presente invención.

La figura 6 es un gráfico de un análisis térmico (CDB) a una temperatura fija (80°C) del clatrato según el Ejemplo 2 de la presente invención.

La figura 7 es un gráfico de un análisis térmico (TG/ATD) de un clatrato según el Ejemplo 4 de la presente invención.

La figura 8 es un gráfico de un análisis térmico (CDB) de modificación de la temperatura del clatrato según el Ejemplo 4 de la presente invención.

La figura 9 es un gráfico de un análisis térmico (CDB) a una temperatura fija (80°C) del clatrato según el Ejemplo 4 de la presente invención.

La figura 10 es un gráfico de un análisis térmico (TG/ATD) de únicamente 2-undecilimidazol.

La figura 11 es un gráfico de un análisis térmico (TG/ATD) del clatrato según el Ejemplo 5 de la presente invención.

La figura 12 es un gráfico de un análisis térmico (CDB) de modificación de la temperatura de 2-undecilimidazol y una resina epoxi.

La figura 13 es un gráfico de un análisis térmico (CDB) de la modificación de temperatura del clatrato según el Ejemplo 5 de la presente invención y una resina epoxi.

La figura 14 es un gráfico de un análisis térmico (TG/ATD) para únicamente 2-heptadecilimidazol.

La figura 15 es un gráfico de un análisis térmico (TG/ATD) de un clatrato según el Ejemplo 6 de la presente invención.

La figura 16 es un gráfico de un análisis térmico (CDB) de la modificación de la temperatura de 2-heptadecilimidazol y una resina epoxi.

La figura 17 es un gráfico de un análisis térmico (CDB) de la modificación de la temperatura del clatrato según el Ejemplo 6 de la presente invención y una resina epoxi.

La figura 18 es un gráfico espectral de RMN-¹H del clatrato según el Ejemplo 1 de la presente invención.

La figura 19 ilustra patrones de difracción de rayos X del clatrato (5-NO₂IPA-2E4MZ) según el Ejemplo 1 de la presente invención y ácido 5-nitroisoftálico (5-NO₂-IPA).

Mejor modo de poner en práctica la invención

No existen restricciones particulares al compuesto de clatrato de la presente invención, con la condición de que incluya por lo menos un compuesto de ácido isoftálico representado por la fórmula (I) y un compuesto imidazol representado por la fórmula (II). El compuesto puede incluir además un tercer componente, tal como un solvente, aunque la cantidad de este tercer compuesto preferentemente no es superior a 40% molar, más preferentemente 35% molar o menos, todavía más preferentemente 20% molar o menos, y todavía más preferentemente 10% molar o menos. Resulta más deseable un compuesto de clatrato que no incluya un tercer componente y esté compuesto únicamente del compuesto de ácido isoftálico representado por la fórmula (I) y el compuesto imidazol representado por la fórmula (II). En la presente invención, un "compuesto de clatrato" describe un compuesto en el que dos, o tres o más tipos diferentes de molécula se encuentran unidos entre sí mediante enlaces diferentes de los enlaces covalentes, y preferentemente describe un compuesto cristalino en el que se encuentran unidos dos o tres o más tipos diferentes de molécula mediante enlaces diferentes de los enlaces covalentes. Un compuesto de clatrato de la

presente invención que contiene un compuesto de ácido isoftálico representado por la fórmula (I) y un compuesto imidazol representado por la fórmula (II) también puede describirse como una sal formada del compuesto de ácido isoftálico de fórmula (I) y el compuesto imidazol representado por la fórmula (II).

- 5 El compuesto de clatrato de la presente invención puede utilizarse como un agente de endurecimiento e resina para resinas de poliéster, resinas epoxi y resinas epoxi-poliéster y similares, y resulta particularmente ideal como agente de endurecimiento para resinas epoxi. Además, el compuesto de clatrato de la presente invención puede encontrarse en una forma líquida preparada mediante la disolución del compuesto en un solvente, aunque preferentemente se encuentra en una forma de polvos (precipitados dentro de un solvente). En el caso de que el compuesto se encuentre en forma de polvos, también puede utilizarse en pinturas en polvo y similares.

Posteriormente se presenta una descripción del compuesto de ácido isoftálico representado por la fórmula (I). En la fórmula (I), R₁ representa un grupo alquilo C1 a C6, un grupo alcoxi C1 a C6, un grupo nitro o un grupo hidroxilo.

- 15 El grupo alquilo C1 a C6 es preferentemente un grupo alquilo C1 a C4, y puede presentar un sustituyente. Entre los ejemplos específicos del grupo alquilo C1 a C6 se incluyen un grupo metilo, un grupo etilo, un grupo propilo, un grupo isopropilo, un grupo ciclopropilo, un grupo butilo, un grupo isobutilo, un grupo s-butilo, un grupo t-butilo, un grupo ciclobutilo, un grupo ciclopropilmetilo, un grupo pentilo, un grupo isopentilo, un grupo 2-metilbutilo, un grupo neopentilo, un grupo 1-etilpropilo, un grupo hexilo, un grupo isohexilo, un grupo 4-metilpentilo, un grupo 3-metilpentilo, un grupo 2-metilpentilo, un grupo 1-metilpentilo, un grupo 3,3-dimetilbutilo, un grupo 2,2-dimetilbutilo, un grupo 1,1-dimetilbutilo, un grupo 1,2-dimetilbutilo, un grupo 1,3-dimetilbutilo, un grupo 2,3-dimetilbutilo, un grupo 1-etilbutilo y un grupo 2-etilbutilo.

- 25 El grupo alcoxi C1 a C6 preferentemente es un grupo alcoxi C1 a C4 y puede presentar un sustituyente. Entre los ejemplos específicos del grupo alcoxi C1 a C6 se incluyen un grupo metoxi, un grupo etoxi, un grupo propoxi, un grupo isopropoxi, un grupo butoxi, un grupo isobutoxi, un grupo s-butoxi, un grupo t-butoxi, un grupo pentoxi, un grupo isopentoxi, un grupo 2-metilbutoxi, un grupo 1-etilpropoxi, un grupo 2-etilpropoxi, un grupo neopentoxi, un grupo hexiloxi, un grupo 4-metilpentoxi, un grupo 3-metilpentoxi, un grupo 2-metilpentoxi, un grupo 3,3-dimetilbutoxi, un grupo 2,2-dimetilbutoxi, un grupo 1,1-dimetilbutoxi, un grupo 1,2-dimetilbutoxi, un grupo 1,3-dimetilbutoxi y un grupo 2,3-dimetilbutoxi.

Entre los ejemplos específicos de compuestos preferidos para el compuesto de ácido isoftálico representado por la fórmula (I) se incluyen el ácido 5-t-butilisoftálico y el ácido 5-nitroisoftálico.

- 35 A continuación se proporciona una descripción del compuesto imidazol representado por la fórmula (II). En la fórmula (II), R₂ representa un átomo de hidrógeno, un grupo alquilo C1 a C10, un grupo fenilo, un grupo bencilo o un grupo cianoetilo, y de entre ellos resulta preferido un átomo de hidrógeno.

- 40 El grupo alquilo C1 a C10 preferentemente es un grupo alquilo C1 a C6 y puede presentar un sustituyente. Entre los ejemplos específicos del grupo alquilo C1 a C10 se incluyen los grupos alquilo indicados anteriormente, así como n grupo heptilo, un grupo octilo, un grupo nonilo y un grupo decilo.

Además, el grupo fenilo y el grupo bencilo también pueden presentar un sustituyente.

- 45 R₃ a R₅ representan, cada uno independientemente, un átomo de hidrógeno, un grupo nitro, un átomo de halógeno, o un grupo alquilo C1 a C20, un grupo fenilo, un grupo bencilo o un grupo acilo C1 a C20 que puede presentar un sustituyente, representando preferentemente cada uno un átomo de hidrógeno, un grupo nitro, un átomo de halógeno o un grupo alquilo C1 a C17, un grupo fenilo, un grupo bencilo o un grupo acilo C1 a C17 que puede presentar un sustituyente, y más preferentemente, cada uno independientemente, representa un átomo de hidrógeno, un grupo nitro, un átomo de halógeno o un grupo alquilo C1 a C10, un grupo fenilo, un grupo bencilo o un grupo acilo C1 a C10 que puede presentar un sustituyente. El grupo alquilo C1 a C20 es tal como se ha indicado anteriormente. El grupo acilo C1 a C20 que puede presentar un sustituyente preferentemente es un grupo acilo C1 a C10 que puede presentar un sustituyente, y es más preferentemente un grupo acilo C1 a C6 que puede presentar un sustituyente. Entre los ejemplos específicos se incluyen un grupo formilo, un grupo acetilo, un grupo propionilo, un grupo butirilo, un grupo valerilo o un grupo benzoilo.

- 60 No existen restricciones particulares al sustituyente que puede unirse al grupo alquilo, grupo fenilo, grupo bencilo o grupo acilo, con la condición de que pueda obtenerse un compuesto sólido que contenga por lo menos el compuesto de ácido isoftálico representado por la fórmula (I) y el compuesto imidazol representado por la fórmula (II) como elementos estructurales. Un ejemplo de un sustituyente preferido es un grupo hidroxilo.

- 65 Entre los ejemplos específicos del compuesto imidazol representado por la fórmula (II) se incluyen 2-etil-4-metilimidazol, 2-metilimidazol, 1-bencil-2-metilimidazol, 2-heptadecilimidazol, 2-undecilimidazol, 2-fenil-4-metil-5-hidroximetilimidazol, 2-fenilimidazol, 2-fenil-4-metilimidazol, 1-bencil-2-fenilimidazol, 1,2-dimetilimidazol, 1-cianoetil-2-metilimidazol, 1-cianoetil-2-etil-4-metilimidazol, 1-cianoetil-2-undecilimidazol, 1-cianoetil-2-fenilimidazol y 2-fenil-4,5-dihidroximetilimidazol. En términos de facilidad con la que puede formarse un compuesto de clatrato en polvo,

resulta preferente 2-etil-4-metilimidazol y 2-metilimidazol, y en el caso de que también se considere la estabilidad en un solo reactor, resulta particularmente deseable el 2-etil-4-metilimidazol.

5 El tipo anteriormente indicado de compuesto de clatrato de la presente invención puede obtenerse mediante la adición del compuesto de ácido isoftálico representado por la fórmula (I) y el compuesto imidazol representado por la fórmula (II) a un solvente, y llevando a cabo a continuación un tratamiento térmico o un tratamiento de reflujo bajo calentamiento, bajo agitación en caso necesario, con el fin de precipitar el compuesto de clatrato. Además, dependiendo de la diversidad de compuestos ácido isoftálico representado por la fórmula (I) y la diversidad de compuestos imidazol representados por la fórmula (II), la precipitación mediante la misma operación a la indicada anteriormente puede proporcionar un compuesto cristalino.

10 Con el fin de facilitar la disolución en el solvente, el compuesto de ácido isoftálico representado por la fórmula (I) y el compuesto imidazol representado por la fórmula (II) preferentemente se disuelven separadamente en solventes y las mezclas resultantes preferentemente se mezclan a continuación. Entre los ejemplos de solventes que pueden utilizarse se incluyen agua, metanol, etanol, acetato de etilo, acetato de metilo, éter dietílico, éter dimetílico, acetona, metil-etil-cetona y acetonitrilo. En términos de las proporciones añadidas del compuesto de ácido isoftálico representado por la fórmula (I) y el compuesto imidazol representado por la fórmula (II) durante la producción del compuesto de clatrato de la presente invención, la cantidad añadida del compuesto imidazol representado por la fórmula (II) (el huésped) preferentemente se encuentra comprendida dentro del intervalo de entre 0,1 y 5,0 moles, y más preferentemente de entre 0,5 y 3,0 moles, en relación a 1 mol del compuesto de ácido isoftálico representado por la fórmula (I) (el anfitrión).

15 No existen restricciones particulares al compuesto de la presente invención, con la condición de que pueda obtenerse tras la disolución o suspensión de por lo menos el compuesto de ácido isoftálico representado por la fórmula (I) y el compuesto imidazol representado por la fórmula (II) en un solvente y la realización de calentamiento. El compuesto puede incluir un tercer componente, tal como un solvente, aunque la cantidad de este tercer componente preferentemente no es superior a 40% molar, más preferentemente 35% molar o menos, todavía más preferentemente 20% molar o menos, y todavía más preferentemente 10% molar o menos, y un compuesto que no contenga un tercer componente resulta más deseable.

20 Aunque no existen restricciones particulares al compuesto de la presente invención, con la condición de que pueda obtenerse tras disolver o suspender por lo menos el compuesto de ácido isoftálico representado por la fórmula (I) y el compuesto imidazol representado por la fórmula (II) en un solvente y llevarse a cabo el calentamiento, el compuesto de la presente invención preferentemente es un compuesto que puede obtenerse mediante disolución o suspensión de por lo menos el compuesto de ácido isoftálico representado por la fórmula (I) y el compuesto imidazol representado por la fórmula (II) en un solvente, realización del calentamiento, seguido de la precipitación del compuesto, y más preferentemente es un compuesto cristalino que puede obtenerse mediante disolución o suspensión de por lo menos el compuesto de ácido isoftálico representado por la fórmula (I) y el compuesto imidazol representado por la fórmula (II) en un solvente, realización de calentamiento, seguido de la cristalización del compuesto.

25 El compuesto de ácido isoftálico representado por la fórmula (I) y el compuesto imidazol representado por la fórmula (II) son tal como se han indicado anteriormente. No existen restricciones particulares al solvente, con la condición de que no perjudique el procedimiento de obtención del compuesto de la presente invención mediante disolución o suspensión del compuesto de ácido isoftálico representado por la fórmula (I) y el compuesto imidazol representado por la fórmula (II) en un solvente y la realización del calentamiento, y pueda seleccionarse un solvente apropiado de acuerdo con el compuesto de ácido isoftálico representado por la fórmula (I) y el compuesto imidazol representado por la fórmula (II) que se utilizan realmente. Los ejemplos específicos del solvente son los indicados anteriormente.

30 En términos de las proporciones añadidas del compuesto de ácido isoftálico representado por la fórmula (I) y el compuesto imidazol representado por la fórmula (II) durante la producción del compuesto de la presente invención, la cantidad del compuesto imidazol representado por la fórmula (II) preferentemente se encuentra comprendida dentro del intervalo de entre 0,1 y 5,0 moles, y más preferentemente de entre 0,5 y 3,0 moles, en relación a un mol del compuesto de ácido isoftálico representado por la fórmula (I).

35 Durante la producción del compuesto de la presente invención, el compuesto de ácido isoftálico representado por la fórmula (I) y el compuesto imidazol representado por la fórmula (II) se disuelven o se suspenden en un solvente, y ambos compuestos preferentemente se disuelven en el solvente. En aquellos casos en los que ambos compuestos se disuelvan en un solvente, la cantidad total de ambos compuestos no se disuelve necesariamente en el solvente, sino que debe disolverse en el solvente por lo menos una parte reducida de ambos compuestos.

40 No existen restricciones particulares a las condiciones del calentamiento utilizadas durante la producción del compuesto de la presente invención, con la condición de que el compuesto de la presente invención pueda obtenerse tras disolver por lo menos el compuesto de ácido isoftálico representado por la fórmula (I) y el compuesto imidazol representado por la fórmula (II) en un solvente y llevando a cabo el calentamiento. Por ejemplo, el calentamiento puede llevarse a cabo a una temperatura comprendida dentro del intervalo de entre 40°C y 120°C, y

preferentemente se lleva a cabo dentro de un intervalo de entre 50°C y 90°C.

Además, el calentamiento realizado durante la producción del compuesto de la presente invención no debe llevarse a cabo necesariamente bajo agitación de la solución o suspensión que contiene el compuesto de ácido isoftálico representado por la fórmula (I) y el compuesto imidazol representado por la fórmula (II), sino que el calentamiento preferentemente se lleva a cabo bajo agitación de la solución o suspensión y más preferentemente se lleva a cabo bajo condiciones de reflujo bajo calentamiento.

Durante la producción del compuesto de la presente invención no existen restricciones particulares a la etapa realizada tras disolver o suspender por lo menos el compuesto de ácido isoftálico representado por la fórmula (I) y el compuesto imidazol representado por la fórmula (II) en un solvente y la realización del calentamiento, con la condición de que esta etapa posterior proporcione un compuesto sólido que contenga por lo menos el compuesto de ácido isoftálico representado por la fórmula (I) y el compuesto imidazol representado por la fórmula (II) como elementos estructurales. Por ejemplo, tras disolver el compuesto de ácido isoftálico representado por la fórmula (I) y el compuesto imidazol representado por la fórmula (II) en un solvente y llevar a cabo el calentamiento, el compuesto sólido puede precipitarse simplemente deteniendo el tratamiento de calentamiento, aunque la solución preferentemente se deja reposar durante la noche a temperatura ambiente tras detener el calentamiento. Tras la precipitación del compuesto sólido, puede utilizarse la filtración y el secado para obtener el compuesto diana. Además, dependiendo de factores tales como los tipos de compuesto de ácido isoftálico representado por la fórmula (I) utilizados y los tipos de compuesto imidazol representado por la fórmula (II) utilizados, las mismas operaciones indicadas en las etapas anteriores para obtener el compuesto sólido pueden proporcionar un compuesto cristalino de la presente invención.

Con la condición de que un compuesto sea igual al compuesto de la presente invención, se considera comprendido dentro de la presente invención, aunque no se obtenga tras disolver por lo menos un compuesto de ácido isoftálico representado por la fórmula (I) y un compuesto imidazol representado por la fórmula (II) en un solvente y se realice calentamiento.

No existen restricciones particulares al catalizador de endurecimiento para una resina epoxi según la presente invención, con la condición de que incluya un compuesto de clatrato de la presente invención o un compuesto de la presente invención, y por ejemplo, el catalizador puede incluir además otros catalizadores de endurecimiento de resina epoxi.

Además, no existen restricciones particulares a la composición utilizada para formar una resina epoxi endurecida según la presente invención, con la condición de que la composición incluya una resina epoxi (componente (A)) y un compuesto de clatrato de la presente invención o un compuesto de la presente invención (componente (B)). El componente (B) es tal como el indicado anteriormente.

Como resina epoxi de componente (A), puede utilizarse todo tipo de compuestos poliepoxi convencionales, y entre los ejemplos específicos se incluyen compuestos éter glicidílico aromáticos, tales como éter bis(4-hidroxifenil)propano-diglicidílico, éter bis(4-hidroxi-3,5-dibromofenil)propano-diglicidílico, éter bis(4-hidroxifenil)etano-diglicidílico, éter bis(4-hidroxifenil)metano-diglicidílico, éter resorcinol-diglicidílico, éter floroglucinol-triglicidílico, éter trihidroxibifenil-triglicidílico, tetraglicidilbenzofenona, éter bis-resorcinol-tetraglicidílico, éter tetrametilbifenol A-diglicidílico, éter bisfenol C-diglicidílico, éter bisfenilhexafluoropropano-diglicidílico, 1,3-bis[1-(2,3-epoxipropoxi)-1-trifluorometil-2,2,2-trifluoroetil]benceno, 1,4-bis[1-(2,3-epoxipropoxi)-1-trifluorometil-2,2,2-trifluorometil]benceno, 4,4'-bis(2,3-epoxipropoxi)octafluorobifenilo y compuestos fenol-novolak-bis-epoxi, compuestos poliepoxi alicíclicos, tales como acetal diepoxi alicíclico, adipato de diepoxi alicíclico, carboxilato de diepoxi alicíclico y dióxido de vinilciclohexeno; compuestos éster de glicidilo, tales como ftalato de diglicidilo, tetrahidroftalato de diglicidilo, hexahidroftalato de diglicidilo, ftalato de dimetilglicidilo, hexahidroftalato de dimetilglicidilo, p-oxibenzoato de diglicidilo, ciclopentano-1,3-dicarboxilato de diglicidilo y ácido dimérico de éster de glicidilo; compuestos glicidilamina, tales como diglicidil-anilina, diglicidil-toluidina, triglicidil-aminofenol, tetraglicidil-diaminodifenilmetano y diglicidil-tribromoanilina y compuestos epoxi heterocíclicos, tales como diglicidil-hidantoína, glicidilglicidoxialquilhidantoína e isocianurato de triglicidilo.

La proporción del compuesto imidazol representado por la fórmula (II) en los componentes (A) y (B) en la composición para formar una resina epoxi endurecida según la presente invención preferentemente es suficiente para que la cantidad del compuesto imidazol representado por la fórmula (II) en el componente (B) se encuentre comprendida dentro del intervalo de entre 0,01 y 1,0 moles, más preferentemente de entre 0,1 y 1,0 moles, y todavía más preferentemente de entre 0,3 y 1,0 moles, en relación a 1 mol de anillos epoxi dentro de la resina epoxi del componente (A).

Además, la composición para formar una resina epoxi endurecida según la presente invención puede producirse mediante la mezcla del componente (A) y el componente (B), y con el fin de garantizar la formación de un estado mixto satisfactorio, la mezcla habitualmente se lleva a cabo bajo calentamiento a una temperatura de entre 60°C y 100°C. Durante la producción de la resina epoxi endurecida, la estabilidad en un solo reactor de la composición a dicha temperatura es un factor importante.

Además, no existen restricciones particulares al procedimiento utilizado para producir la resina epoxi endurecida de la presente invención, con la condición de que el procedimiento incluya el endurecimiento de la composición para formar una resina epoxi endurecida mediante la realización de un tratamiento térmico. La temperatura de calentamiento utilizada durante el tratamiento térmico típicamente se encuentra comprendida dentro del intervalo de entre 60°C y 250°C, y preferentemente de entre 100°C y 200°C, y la composición preferentemente se endurece en un periodo de tiempo corto a dicha temperatura.

No existen restricciones particulares al compuesto anfitrión para el compuesto de clatrato de la presente invención, con la condición de que sea un compuesto de ácido isoftálico representado por la fórmula (I) (en la que R₁ representa un grupo nitro o un grupo alquilo C4) y el grupo alquilo C4 preferentemente es un grupo t-butilo.

En la presente invención, el compuesto anfitrión para el compuesto de clatrato se refiere a un compuesto que se une de manera no covalente a uno, dos o más tipos diferentes de molécula (tales como moléculas huésped o de solvente) para formar un compuesto, en el que este compuesto es capaz de formar una estructura de clatrato, y más preferentemente se refiere a un compuesto que se une de manera no covalente a uno, dos o más tipos diferentes de molécula (tal como una molécula huésped o de solvente) para formar un compuesto cristalino, en el que este compuesto cristalino es capaz de formar una estructura de clatrato. En la presente memoria, la expresión "estructura de clatrato" se refiere a una estructura en la que las moléculas del compuesto anfitrión se unen entre sí mediante enlaces no covalentes y otra molécula (tal como una molécula huésped o de solvente) o una combinación de otra molécula y un compuesto anfitrión se unen mediante algún tipo de enlace no covalente dentro de los espacios entre dos, o tres o más compuestos anfitrión, o una estructura en la que el compuesto anfitrión se encuentra unido a otra molécula (tal como una molécula huésped o de solvente) mediante enlace no covalente, y un compuesto anfitrión y/o otra molécula (tal como una molécula huésped o de solvente) se unen mediante algún tipo de enlace no covalente dentro de los espacios entre dos, o tres o más, de los compuestos anfitrión unidos a otras moléculas. Al preparar un compuesto de clatrato utilizando un compuesto anfitrión de la presente invención, dependiendo de los tipos de compuesto huésped, también pueden unirse moléculas del compuesto huésped mediante algún tipo de enlace no covalente, aunque este enlace no presente ningún efecto sobre el compuesto anfitrión de la presente invención que actúa como el compuesto anfitrión.

No existen restricciones particulares a la forma de la estructura de clatrato y entre los ejemplos se incluyen estructuras de tipo túnel, estructuras organizadas por capas y estructuras de tipo red.

El compuesto anfitrión de la presente invención forma una estructura reticulada dentro de por lo menos una parte del compuesto de clatrato y las moléculas del compuesto huésped que no forman una estructura de clatrato pueden incluirse dentro del compuesto de clatrato, aunque el compuesto de clatrato entero preferentemente presenta la forma de una estructura de clatrato.

Ejemplos

A continuación se proporciona una descripción con mayor detalle de la presente invención a partir de ejemplos, aunque el alcance técnico de la presente invención en modo alguno se encuentra limitada a estos ejemplos.

[Ejemplo 1]

Se añadieron 20 ml de una solución de metanol que contenía 10 mmoles (1,10 g) de 2-etil-4-metilimidazol a 20 ml de una solución de metanol que contenía 5 mmoles (1,05 g) de ácido 5-nitroisoftálico bajo condiciones de reflujo bajo calentamiento con agitación. Aunque posteriormente se detuvo el calentamiento, precipitaron cristales prácticamente de inmediato; la mezcla se dejó en reposo durante la noche a temperatura ambiente y después se filtró y se secó al vacío, rindiendo un clatrato (0,5 g, 33%). El análisis del clatrato obtenido mediante RMN reveló cristales de clatrato 1:1. El gráfico del espectro de RMN-¹H y el patrón de difracción de rayos X del clatrato obtenido (5-NO₂IPA-2E4MZ) se muestran en las figuras 18 y 19, respectivamente. Para realizar comparaciones, el patrón de difracción de rayos X del ácido 5-nitroisoftálico (5-NO₂-IPA) también se muestra en la figura 19. En la figura 1 se muestra un análisis térmico (TG/ATD) de los cristales de clatrato obtenidos. Además, en la figura 2 se muestra un gráfico del análisis térmico (CDB) con la modificación de la temperatura para los cristales de clatrato obtenidos, mientras que en la figura 3 se muestra un gráfico del análisis térmico (CDB) a una temperatura fija (80°C).

[Ejemplo 2]

Se añadieron 15 mmoles (3,33 g) de ácido 5-t-butylisoftálico y 18 mmoles (1,98 g, 1,2 eq.) de 2-etil-4-metilimidazol a 60 ml de metanol, y la mezcla resultante se agitó bajo reflujo con calentamiento en un matraz de fondo redondo durante 30 minutos, disolviéndose así los cristales. A continuación, se dejó la solución en reposo a temperatura ambiente y los cristales que precipitaron de la solución se filtraron y se secaron bajo vacío, proporcionando un compuesto de clatrato (2,34 g, 47%). El análisis del clatrato obtenido mediante RMN reveló cristales de clatrato 1:1. En la figura 4 se muestra un análisis térmico (TG/ATD) de los cristales de clatrato obtenidos. Además, se muestra en la figura 5 un gráfico del análisis térmico (CDB) de modificación de la temperatura para los cristales de clatrato

obtenidos, mientras que en la figura 6 se muestra un análisis térmico (CDB) a una temperatura fija (80°C).

[Ejemplo 3]

5 Con la excepción de la alteración de la cantidad de 2-etil-4-metilimidazol a 16,5 mmoles (1,81 g, 1,1 eq.), se preparó un clatrato de la misma manera que en el Ejemplo 2 (2,08 g, 42%). El análisis del clatrato obtenido mediante RMN reveló cristales de clatrato 1:1 y el gráfico del análisis térmico (TG/ATD) para los cristales de clatrato obtenidos era el mismo que para los cristales obtenidos en el Ejemplo 2.

10 [Ejemplo 4]

Se añadieron 20 ml de una solución de metanol que contenía 10 mmoles (0,82 g) de 2-metilimidazol a 20 ml de una solución de metanol que contenía 5 mmoles (1,05 g) de ácido 5-nitroisoftálico bajo condiciones de reflujo bajo calentamiento con agitación. Aunque posteriormente se detuvo el calentamiento, los cristales precipitaron prácticamente de inmediato; la mezcla se dejó en reposo durante la noche a temperatura ambiente y después se filtraron y se secaron al vacío, proporcionando un clatrato (1,2 g, 64%). El análisis del clatrato obtenido mediante RMN reveló cristales de clatrato 1:1. En la figura 7 se muestra un gráfico del análisis térmico (TG/ATD) de los cristales de clatrato obtenidos. Además, en la figura 8 se muestra un gráfico del análisis térmico (CDB) de modificación de la temperatura para los cristales de clatrato obtenidos, mientras que en la figura 9 se muestra un gráfico del análisis térmico (CDB) a una temperatura fija (80°C).

[Ejemplo 5]

25 Se añadieron 5 mmoles (1,06 g) de ácido 5-nitroisoftálico y 5 mmoles (1,11 g) de 2-undecilimidazol a 40 ml de acetona y la mezcla resultante se agitó bajo calentamiento y se dejó reposar durante la noche. Tras dejar reposar durante la noche, la mezcla se filtró y se secó bajo vacío, proporcionando 1,98 g de un clatrato (clatrato 1:1).

En la figura 10 se muestra un gráfico del análisis térmico (TG/ATD) para únicamente 2-undecilimidazol, mientras que en la figura 11 se muestra un gráfico del análisis térmico (TG/ATD) para los cristales de clatrato obtenidos. Se cree que debido a que el punto de fusión del 2-undecilimidazol no se observó en el gráfico de la figura 11, los cristales obtenidos son de un compuesto de clatrato.

Además, en la figura 12 se muestra un gráfico del análisis térmico (CDB) de modificación de la temperatura para 2-undecilimidazol y una resina epoxi, mientras que en la figura 13 se muestra un gráfico del análisis térmico (CDB) para el clatrato obtenido y una resina epoxi. La temperatura de endurecimiento en la figura 13 era considerablemente más alta que la temperatura de endurecimiento en la figura 12, confirmando que la estructura de clatrato generaba una mejora de la estabilidad en un solo reactor.

40 Se prepararon los gráficos de CDB mediante la mezcla de 4% del imidazol con una resina epoxi de bisfenol A (YD-128) y llevando a cabo a continuación las mediciones.

[Ejemplo 6]

45 Se añadieron 5 mmoles (1,06 g) de ácido 5-nitroisoftálico y 10 mmoles (3,06 g) de 2-heptadecilimidazol a 30 ml de metanol y la mezcla resultante se agitó bajo calentamiento y después se dejó en reposo durante la noche. Tras dejar reposo durante la noche, se filtró la mezcla y se secó al vacío, proporcionando 3,16 g de un clatrato (clatrato 1:2).

En la figura 14 se muestra un gráfico del análisis térmico (TG/TDA) para únicamente 2-heptadecilimidazol, mientras que en la figura 15 se muestra un gráfico del análisis térmico (TG/ATD) para los cristales de clatrato obtenidos. Se cree que debido a que el punto de fusión del 2-heptadecilimidazol no se observó en el gráfico de la figura 15, los cristales obtenidos eran de un compuesto de clatrato.

Además, en la figura 16 se muestra un gráfico del análisis térmico (CDB) de modificación de la temperatura para 2-heptadecilimidazol, mientras que en la figura 17 se muestra un gráfico del análisis térmico (CDB) para el clatrato obtenido y una resina epoxi. Los picos en las figuras 16 y 17 son claramente diferentes, confirmando la diferencia de estructura obtenida como resultado de la estructura de clatrato.

Se prepararon los gráficos de CDB mediante la mezcla de 4% del imidazol con una resina epoxi bisfenol A (YD-128) y llevando a cabo a continuación las mediciones.

60 [Ejemplo comparativo 1]

Mediante la utilización del mismo procedimiento que en el Ejemplo 1, se generó un gráfico del análisis térmico (CDB) de modificación de la temperatura y un gráfico del análisis térmico (CDB) a una temperatura fija (80°C) para 2-etil-4-metilimidazol (2E4MZ).

65

[Ejemplo comparativo 2]

Una solución de metanol (200 ml) que contenía 125 mmoles (49,8 g) de 1,1,2,2-tetrakis(4-hidroxifenil)etano (TEP) se calentó bajo reflujo y se añadió gota a gota a continuación a la solución bajo reflujo una solución de metanol (20 ml) que contenía 267 mmoles (29,4 g) de 2-etil-4-metilimidazol. Tras agitar durante una hora, se detuvo el calentamiento y la mezcla se dejó en reposo durante la noche. A continuación, la mezcla resultante se filtró y se secó al vacío, proporcionando 54,6 g de un clatrato (TEP-2E4MZ). Mediante la utilización del mismo procedimiento que en el Ejemplo 1, se generó un gráfico del análisis térmico (CDB) de modificación de la temperatura ya un gráfico del análisis térmico (CDB) a una temperatura fija (80°C) para el clatrato obtenido de esta manera.

[Ejemplo comparativo 3]

Se disolvieron 15 mmoles (2,5 g) de ácido isoftálico y 16,5 mmoles (1,8 g) de 2-etil-4-metilimidazol en 15 ml de metanol bajo calentamiento, y la mezcla resultante se dejó en reposo durante la noche. A continuación, los cristales precipitados se filtraron y se secaron al vacío, proporcionando 1,8 g de un clatrato (ácido isoftálico-2E4MZ). Mediante la utilización del mismo procedimiento que en el Ejemplo 1, se generó un gráfico del análisis térmico (CDB) de modificación de la temperatura y un gráfico del análisis térmico (CDB) a una temperatura fija (80°C) para el clatrato obtenido de esta manera.

[Ejemplo comparativo 4]

Se disolvieron 5 mmoles (0,8 g) de ácido tereftálico y 10 mmoles (1,1 g) de 2-etil-4-metilimidazol en 15 ml de metanol bajo calentamiento y la mezcla resultante se dejó en reposo durante la noche. A continuación, los cristales precipitados se filtraron y se secaron al vacío, proporcionando un clatrato (ácido tereftálico-2E4MZ). Mediante la utilización del procedimiento del Ejemplo 1, se generaron un gráfico del análisis térmico (CDB) de modificación de la temperatura y un gráfico del análisis térmico (CDB) a una temperatura fija (80°C) para el clatrato obtenido de esta manera.

[Ejemplo comparativo 5]

Mediante la utilización del mismo procedimiento que en el Ejemplo 1, se generó un gráfico del análisis térmico (CDB) de modificación de la temperatura y un gráfico del análisis térmico (CDB) a una temperatura fija (80°C) para 2-metilimidazol (2MZ).

[Ejemplo comparativo 6]

Se mezclaron 75,0 g de 1,1,2,2-tetrakis(4-hidroxifenil)etano (TEP), 31,0 g de 2-metilimidazol y 300 ml de acetato de etilo, y la mezcla resultante se calentó bajo reflujo durante 3 horas. A continuación, la mezcla se dejó en reposo durante la noche y seguidamente el precipitado resultante se filtró y se secó al vacío, proporcionando 95 g de un clatrato (TEP-2MZ). Mediante la utilización del mismo procedimiento que en el Ejemplo 1, se generó un gráfico del análisis térmico (CDB) de modificación de la temperatura y un gráfico del análisis térmico (CDB) a una temperatura fija (80°C) para el clatrato obtenido de esta manera.

[Ejemplo comparativo 7]

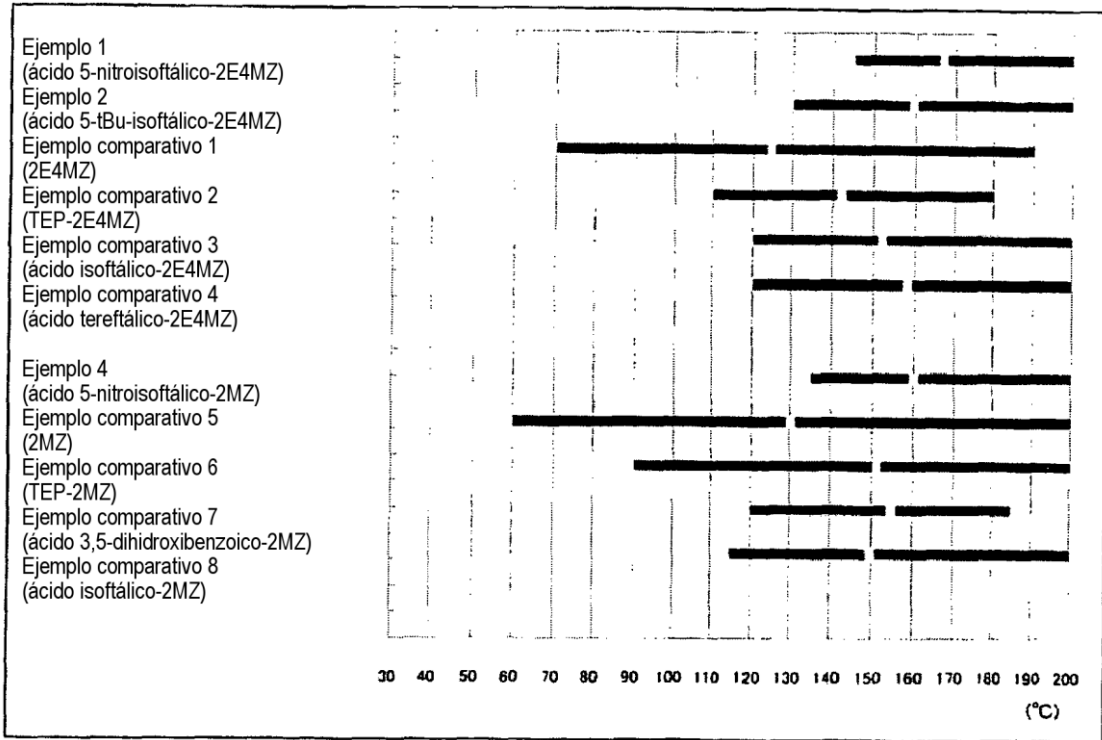
Se disolvieron 10 mmoles (1,5 g) de ácido 3,5-dihidroxibenzoico y 10 mmoles (0,8 g) de 2-metilimidazol en 50 ml de metanol bajo calentamiento y la mezcla resultante se dejó en reposo durante la noche. A continuación, los cristales precipitados se filtraron y se secaron al vacío, proporcionando un clatrato (ácido 3,5-dihidroxibenzoico-2MZ). Mediante la utilización del procedimiento del Ejemplo 1, se generó un gráfico del análisis térmico (CDB) de modificación de la temperatura y un gráfico del análisis térmico (CDB) a una temperatura fija (80°C) para el clatrato obtenido de esta manera.

[Ejemplo comparativo 8]

Se añadieron 15 mmoles (2,5 g) de ácido isoftálico y 16,5 mmoles (1,4 g) de 2-metilimidazol a 20 ml de metanol y la mezcla resultante se agitó bajo calentamiento y se dejó en reposo durante la noche. El precipitado resultante seguidamente se filtró y se secó al vacío, proporcionando 2,8 g de un clatrato (ácido isoftálico-2MZ). Mediante la utilización del procedimiento del Ejemplo 1, se generó un gráfico del análisis térmico (CDB) de modificación de la temperatura y un gráfico del análisis térmico (CDB) a una temperatura fija (80°C) para el clatrato obtenido de esta manera.

La Tabla 1, posteriormente, muestra en forma gráfica los valores de temperatura de inicio de la reacción, máxima y de final de reacción leídas en los gráficos mostrados en la figura 2 (Ejemplo 1), figura 5 (Ejemplo 2) y figura 8 (Ejemplo 4), así como los mismos valores para los ejemplos comparativos también mostrados en forma gráfica.

[Tabla 1]

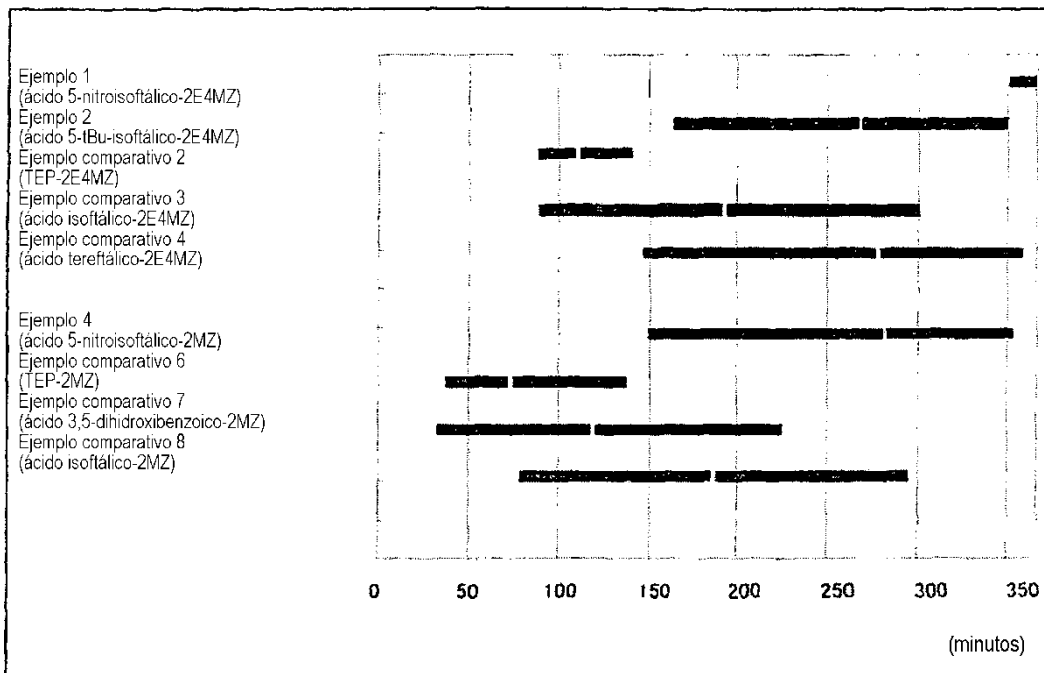


5 A partir de las figuras y de la Tabla 1, resulta evidente que los clatratos según los ejemplos muestran una temperatura de inicio de reacción más alta, lo que indica una mejora de la estabilidad en un solo reactor. Además, los clatratos según los ejemplos también presentaban una diferencia de temperatura reducida entre la temperatura de inicio de reacción y la máxima, y se cree que ello indica un grado de reactividad más alto de los anillos epoxy.

10 La Tabla 2, posteriormente, muestra, en forma gráfica, los valores de temperatura de inicio de reacción, máxima y de final de reacción obtenidas de los gráficos mostrados en la figura 3 (Ejemplo 1), la figura 6 (Ejemplo 2) y la figura 9 (Ejemplo 4), así como los mismos valores para los ejemplos comparativos también mostrados en forma gráfica.

[Tabla 2]

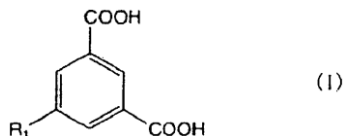
15



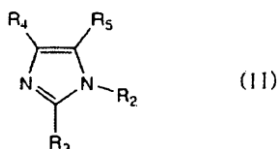
- 5 La temperatura fija de 80°C es una temperatura típica utilizada durante la mezcla de una resina epoxi y un clatrato y por lo tanto la supresión de la reacción a esta temperatura resulta extremadamente importante. A partir de las figuras y de la Tabla 2 resulta evidente que los clatratos según los ejemplos muestran tiempos mucho más largos antes de que se inicie la reacción y antes del pico de reacción, indicando un nivel extremadamente favorable de estabilidad en un solo reactor.

REIVINDICACIONES

1. Compuesto de clatrato que comprende por lo menos un compuesto de ácido isoftálico representado por la fórmula (I) representada a continuación:



en la que R_1 representa un grupo alquilo C1 a C6, un grupo alcoxi C1 a C6, un grupo nitro o un grupo hidroxilo, y un compuesto imidazol representado por la fórmula (II) representada a continuación:



en la que R_2 representa un átomo de hidrógeno, un grupo alquilo C1 a C10, un grupo fenilo, un grupo bencilo o un grupo cianoetilo, y R_3 a R_5 representan, cada uno independientemente, un átomo de hidrógeno, un grupo nitro, un átomo de halógeno o un grupo alquilo C1 a C20, un grupo fenilo, un grupo bencilo o un grupo acilo C1 a C20 que puede presentar un sustituyente,

con la condición de que el compuesto de clatrato no sea ni $[\text{Co}(5\text{-nbdc})_2\text{-(imH)}_2]_n$ ni $[\text{Cu}_3(5\text{-nbdc})_2(\text{OH})_2(\text{imH})_2]_n$, en los que 5-nbdcH₂ representa ácido 5-nitro-1,3-bencenodicarboxílico e imH representa imidazol.

2. Compuesto según la reivindicación 1, en el que dicho compuesto de ácido isoftálico representado por dicha fórmula (I) es el ácido 5-t-butilisoftálico o ácido 5-nitroisoftálico.

3. Compuesto según la reivindicación 1 o 2, en el que dicho compuesto imidazol representado por dicha fórmula (II) es 2-etil-4-metilimidazol, 2-metilimidazol, 1-bencil-2-metilimidazol, 2-heptadecilimidazol, 2-undecilimidazol o 2-fenil-4-metil-5-hidroximetilimidazol.

4. Compuesto según cualquiera de las reivindicaciones 1 a 3, en el que R_2 en dicha fórmula (II) es un átomo de hidrógeno.

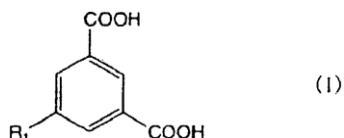
5. Compuesto según cualquiera de las reivindicaciones 1 a 4, en el que dicho compuesto se encuentra en forma de polvos.

6. Catalizador de endurecimiento para una resina epoxi, que comprende un compuesto de clatrato según cualquiera de las reivindicaciones 1 a 5.

7. Composición para formar una resina epoxi endurecida, que comprende:

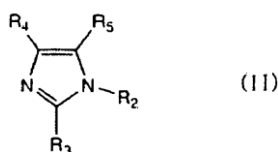
(A) una resina epoxi, y

(B) un compuesto de clatrato que comprende por lo menos un compuesto de ácido isoftálico representado por la fórmula (I), representada a continuación:



en la que R_1 representa un grupo alquilo C1 a C6, un grupo alcoxi C1 a C6, un grupo nitro o un grupo hidroxilo, y

un compuesto imidazol representado por la fórmula (II), representada a continuación:



en la que R₂ representa un átomo de hidrógeno, un grupo alquilo C1 a C10, un grupo fenilo, un grupo bencilo o un grupo cianoetilo, y R₃ a R₅ representan, cada uno independientemente, un átomo de hidrógeno, un grupo nitro, un átomo de halógeno, o un grupo alquilo C1 a C20, un grupo fenilo, un grupo bencilo o un grupo acilo C1 a C20 que puede presentar un sustituyente.

8. Composición para formar una resina epoxi endurecida, según la reivindicación 7, en la que una cantidad de dicho compuesto imidazol representado por dicha fórmula (II) en el interior del componente (B) se encuentra comprendida dentro de un intervalo de 0,01 a 1,0 moles en relación a 1 mol de anillos epoxi dentro de dicha resina epoxi del componente (A).

9. Composición para formar una resina epoxi endurecida según la reivindicación 7 u 8, en la que dicho compuesto de ácido isoftálico representado por dicha fórmula (I) es el ácido 5-t-butilisoftálico o el ácido 5-nitroisoftálico.

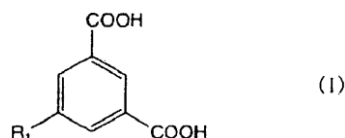
10. Composición para formar una resina epoxi endurecida, según cualquiera de las reivindicaciones 7 a 9, en la que dicho compuesto imidazol representado por dicha fórmula (II) es 2-etil-4-metilimidazol, 2-metilimidazol, 1-bencil-2-metilimidazol, 2-heptadecil-imidazol, 2-undecilimidazol o 2-fenil-4-metil-5-hidroximetilimidazol.

11. Método para producir una resina epoxi endurecida, que comprende endurecer una composición para formar una resina epoxi endurecida según cualquiera de las reivindicaciones 7 a 10 mediante la realización de un tratamiento térmico.

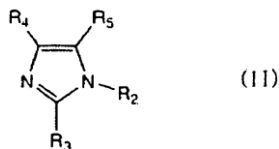
12. Procedimiento para producir una resina epoxi endurecida según la reivindicación 11, en el que una temperatura de calentamiento durante dicho tratamiento térmico se encuentra comprendida dentro del intervalo de 60°C a 250°C.

13. Resina epoxi endurecida, obtenida utilizando un procedimiento según la reivindicación 11 o 12.

14. Compuesto que puede obtenerse tras la disolución o suspensión de por lo menos un compuesto de ácido isoftálico representado por la fórmula (I), representada a continuación:



en la que R₁ representa un grupo alquilo C1 a C6, un grupo alcoxi C1 a C6, un grupo nitro o un grupo hidroxilo, y un compuesto imidazol representado por la fórmula (II), representada a continuación:



en la que R₂ representa un átomo de hidrógeno, un grupo alquilo C1 a C10, un grupo fenilo, un grupo bencilo o un grupo cianoetilo, y R₃ a R₅ representan, cada uno independientemente, un átomo de hidrógeno, un grupo nitro, un átomo de halógeno, o un grupo alquilo C1 a C20, un grupo fenilo, un grupo bencilo o un grupo acilo C1 a C20 que puede presentar un sustituyente,

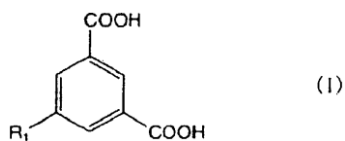
en un solvente y llevar a cabo a continuación un calentamiento,

con la condición de que el compuesto de clatrato no sea ni [Co(5-nbdc)₂(imH)₂]_n ni [Cu₃(5-nbdc)₂(OH)₂(imH)₂]_n, en los que 5-nbdcH₂ representa el ácido 5-nitro-1,3-bencenodicarboxílico e imH representa el imidazol.

15. Compuesto según la reivindicación 14, que puede obtenerse mediante disolución o suspensión de dicho compuesto de ácido isoftálico representado por dicha fórmula (I) y dicho compuesto imidazol representado por dicha fórmula (II) en un solvente, llevando cabo un calentamiento y llevando a cabo a continuación una cristalización.

16. Utilización de un compuesto anfitrión para la preparación de un compuesto de clatrato, caracterizada porque el compuesto anfitrión está representado por la fórmula (I), representada a continuación:

5



en la que R₁ representa un grupo nitrilo o un grupo alquilo C₄,

10

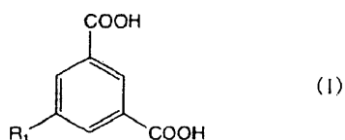
con la condición de que el compuesto de clatrato no sea [Co(5-nbdc)₂(imH)₂]_n ni [Cu₃(5-nbdc)₂(OH)₂(imH)₂]_n, en los que 5-nbdcH₂ representa el ácido 5-nitro-1,3-benzenodicarboxílico y el imH representa imidazol.

17. Utilización según la reivindicación 16, en la que dicho grupo alquilo C₄ es un grupo t-butilo.

15

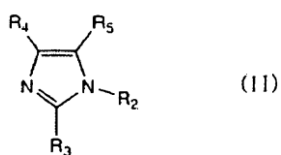
18. Utilización de un compuesto de clatrato que comprende por lo menos un compuesto de ácido isoftálico representado por la fórmula (I), representada a continuación:

20



en la que R₁ representa un grupo alquilo C₁ a C₆, un grupo alcoxi C₁ a C₆, un grupo nitro o un grupo hidroxilo, y un compuesto imidazol representado por la fórmula (II), representada a continuación:

25



en la que R₂ representa un átomo de hidrógeno, un grupo alquilo C₁ a C₁₀, un grupo fenilo, un grupo bencilo o un grupo cianoetilo, y R₃ a R₅ representan, cada uno independientemente, un átomo de hidrógeno, un grupo nitro, un átomo de halógeno, o un grupo alquilo C₁ a C₂₀, un grupo fenilo, un grupo bencilo o un grupo acilo C₁ a C₂₀ que puede presentar un sustituyente, como catalizador de endurecimiento.

FIG. 1

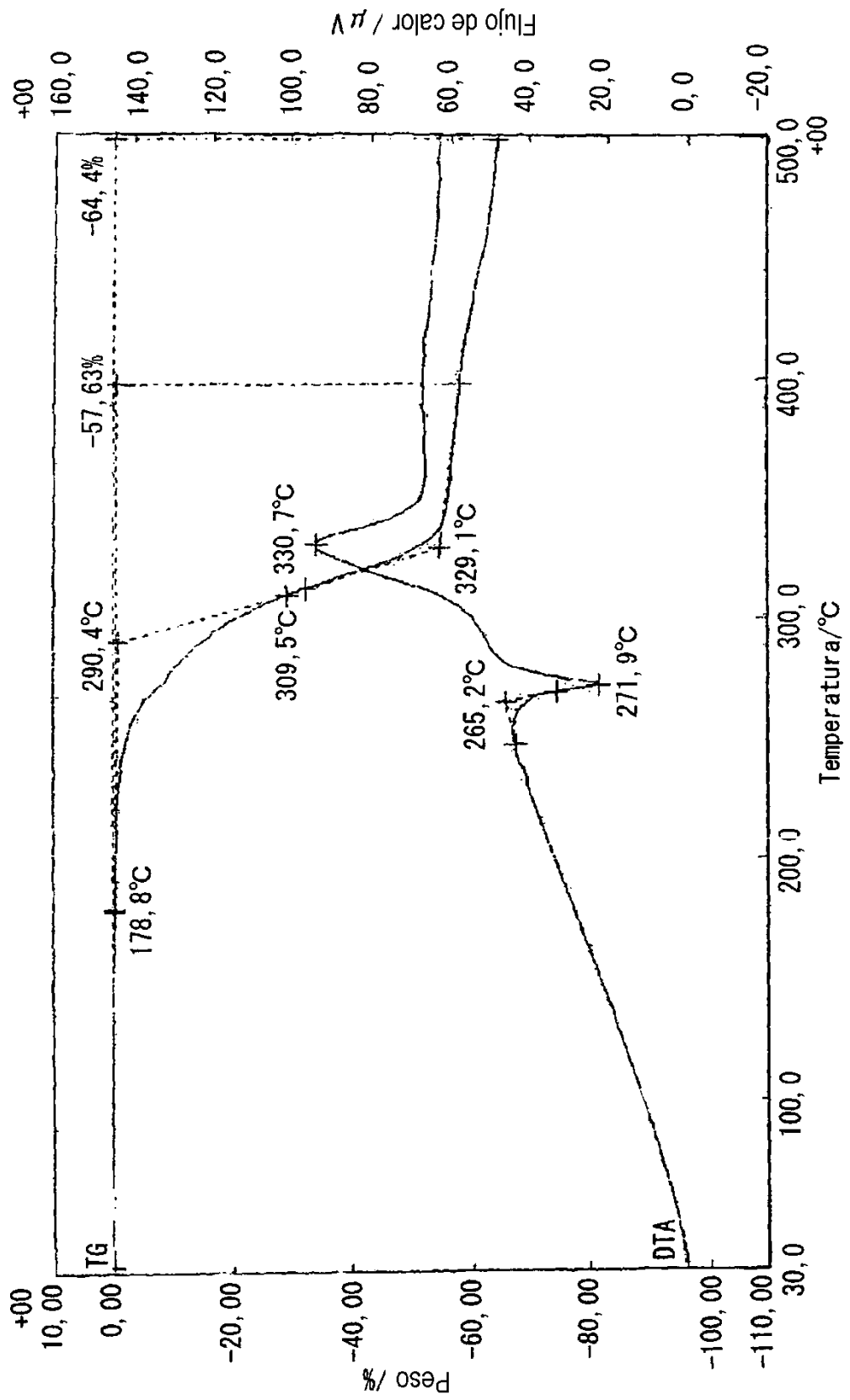


FIG. 2

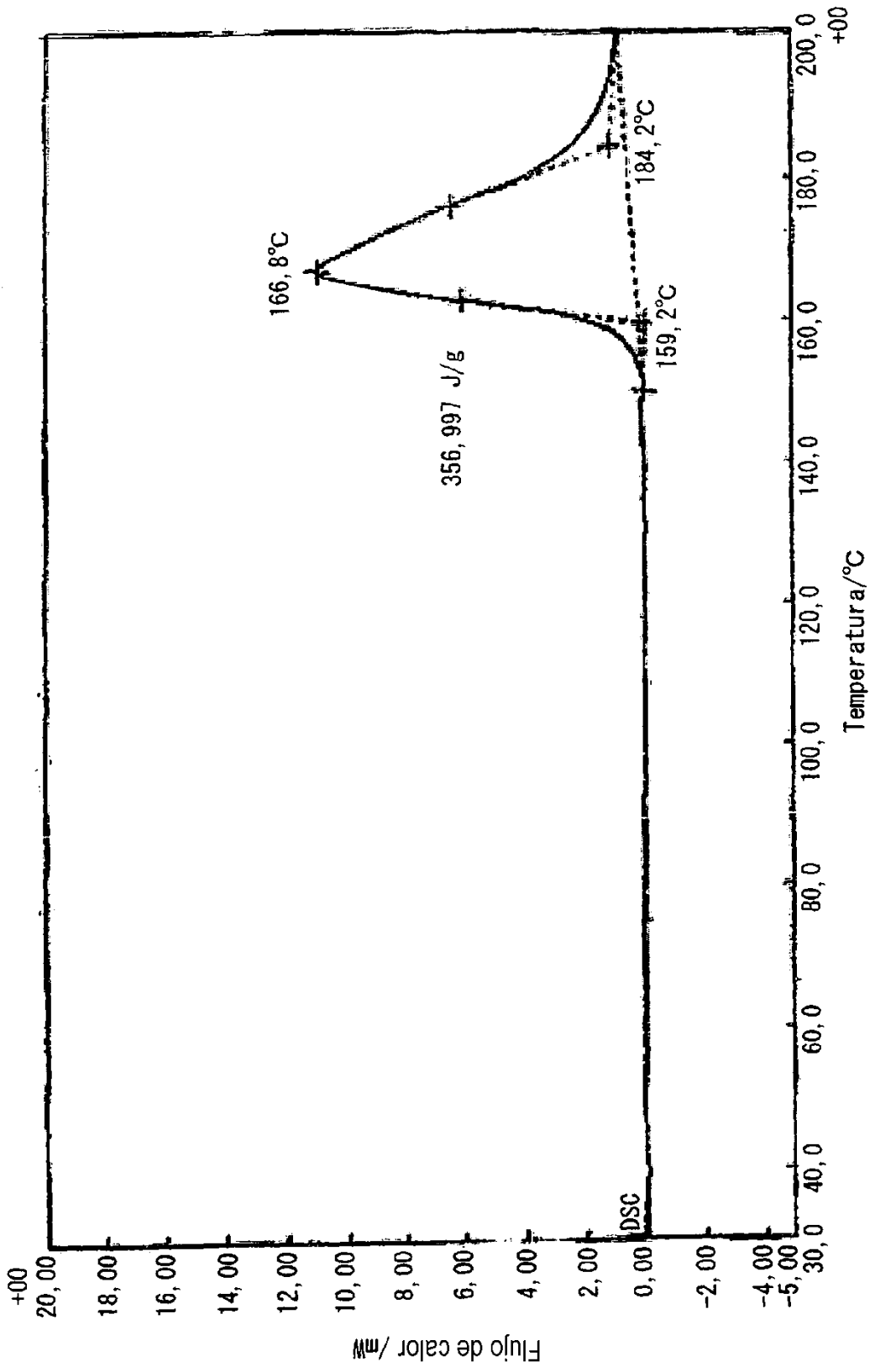


FIG. 3

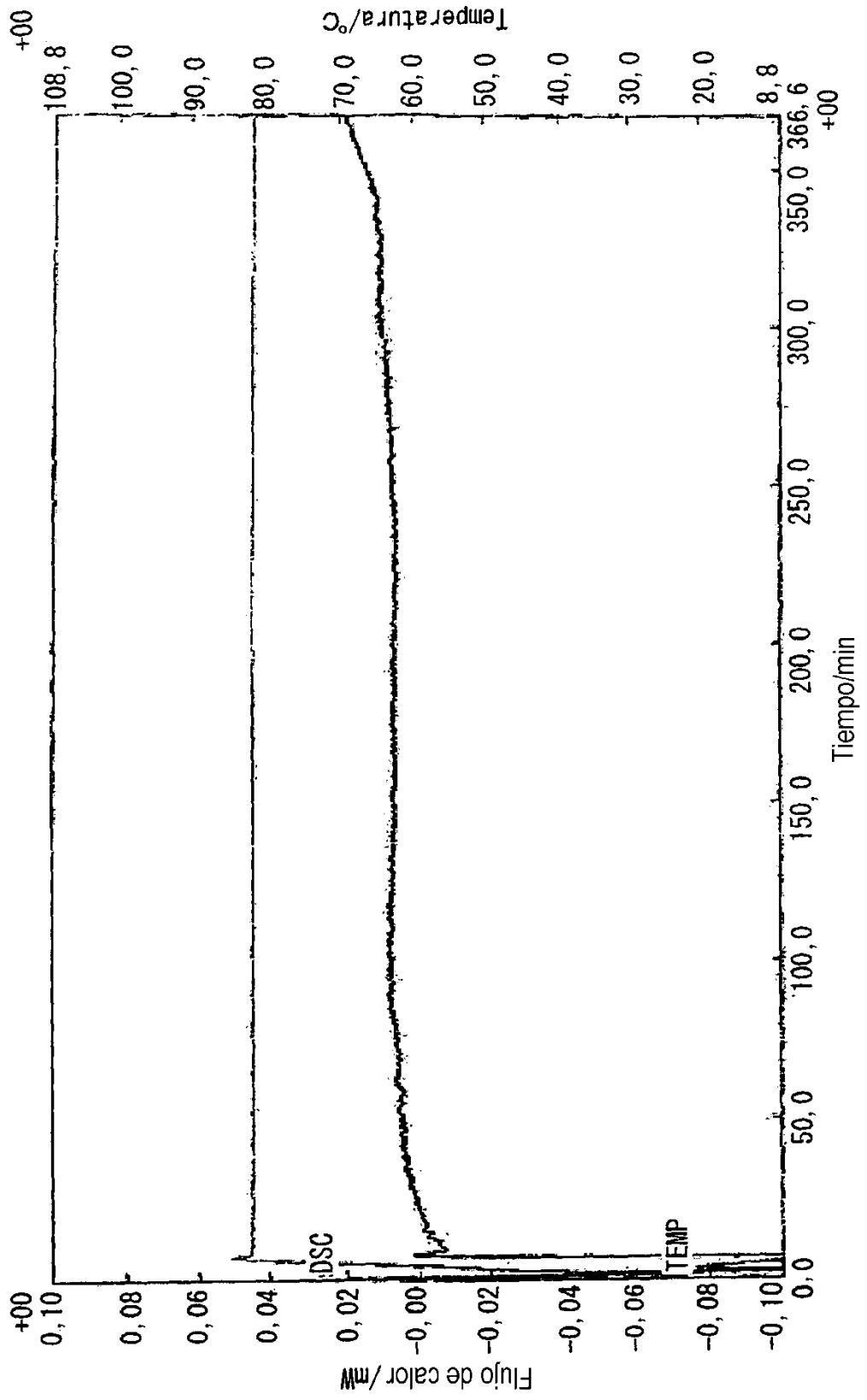


FIG. 4

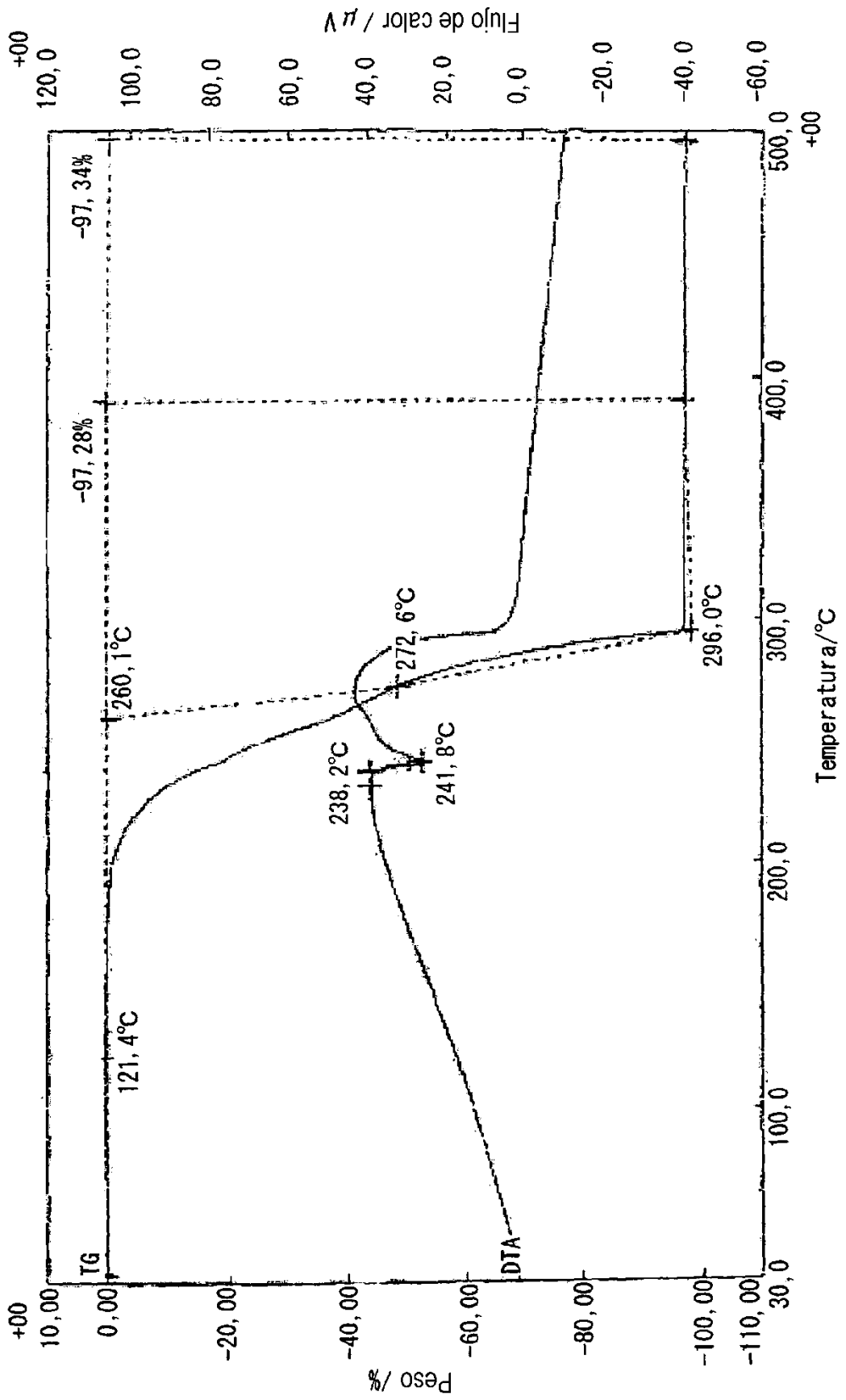


FIG. 5

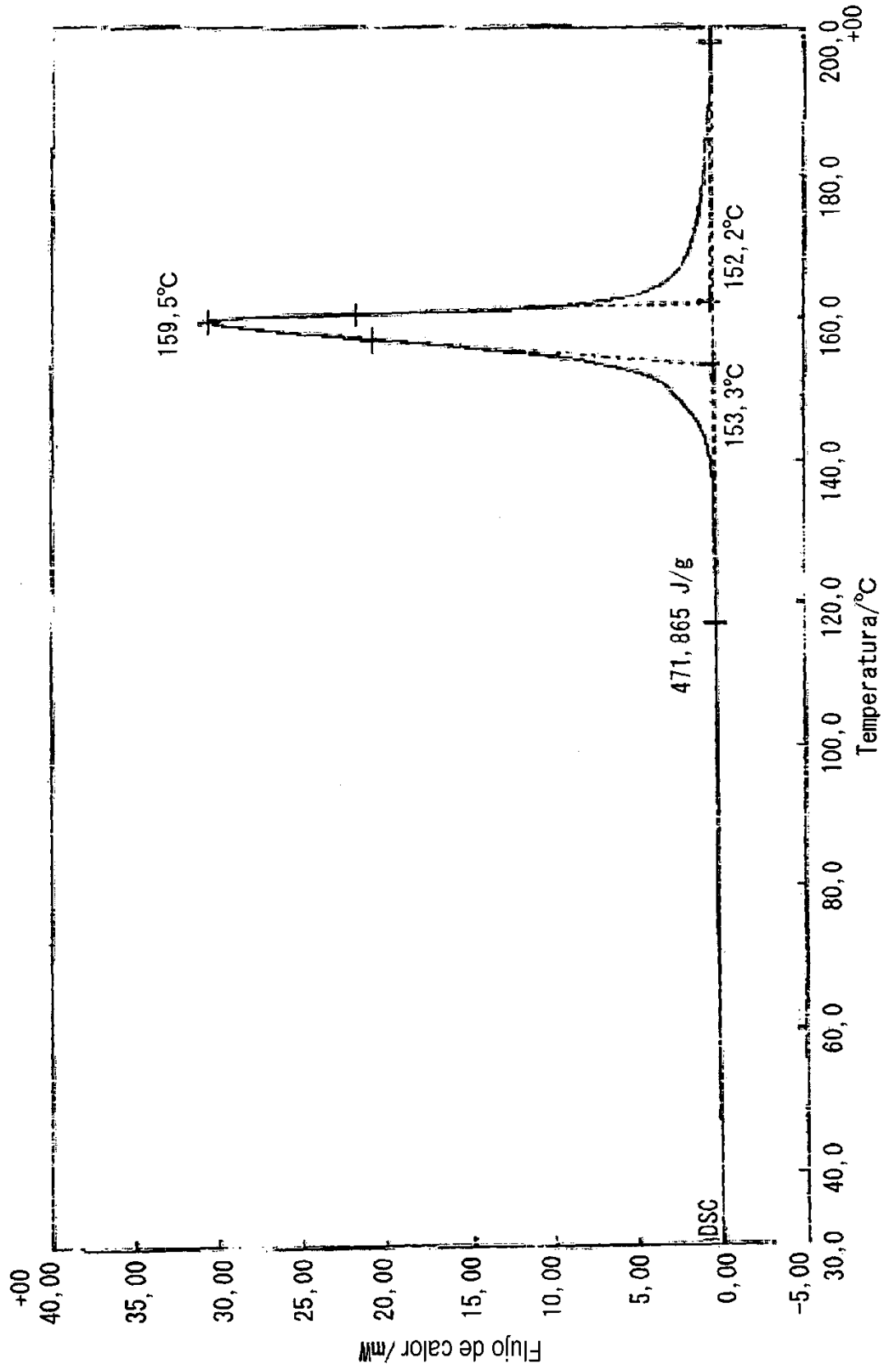


FIG. 6

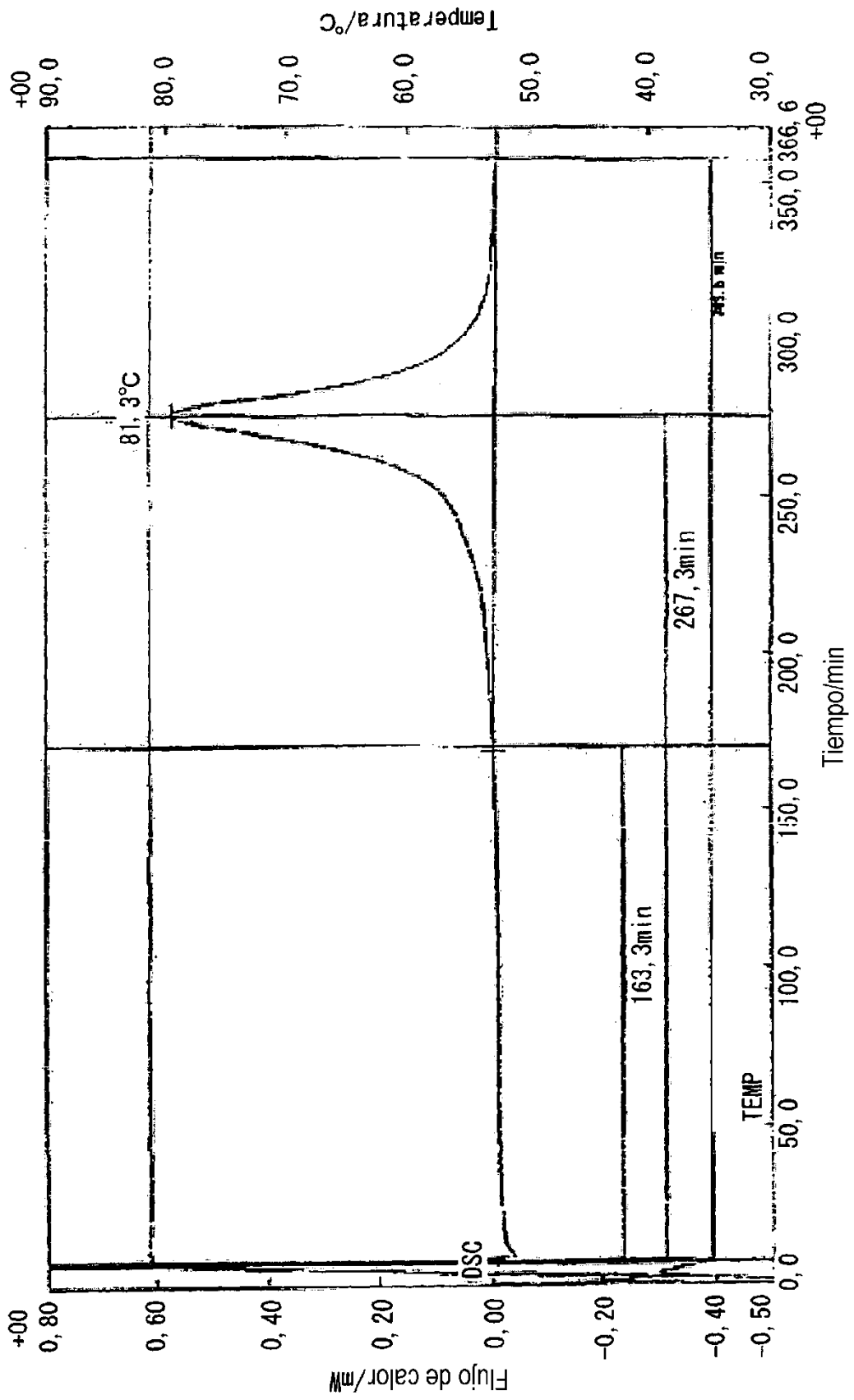


FIG. 7

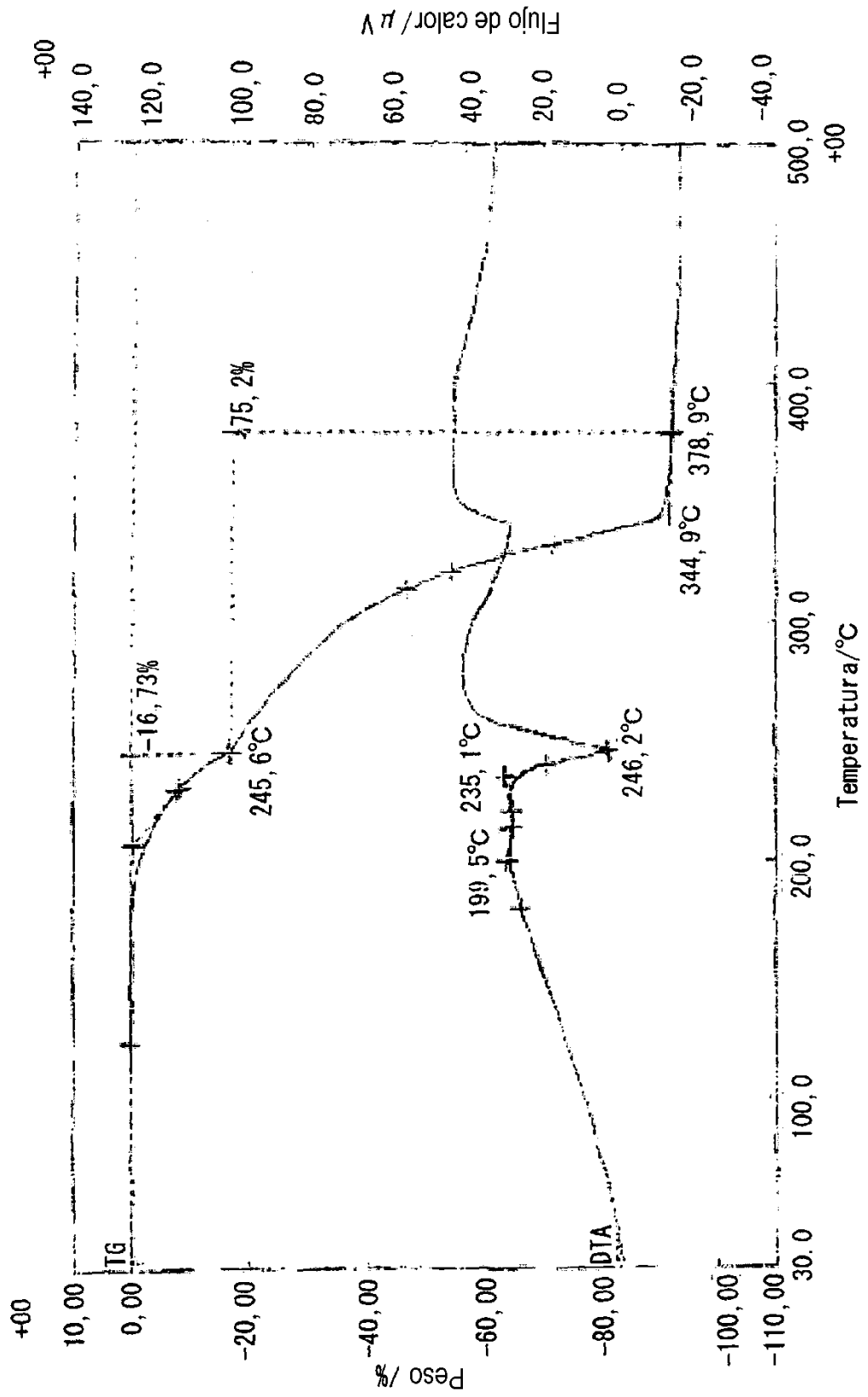


FIG. 8

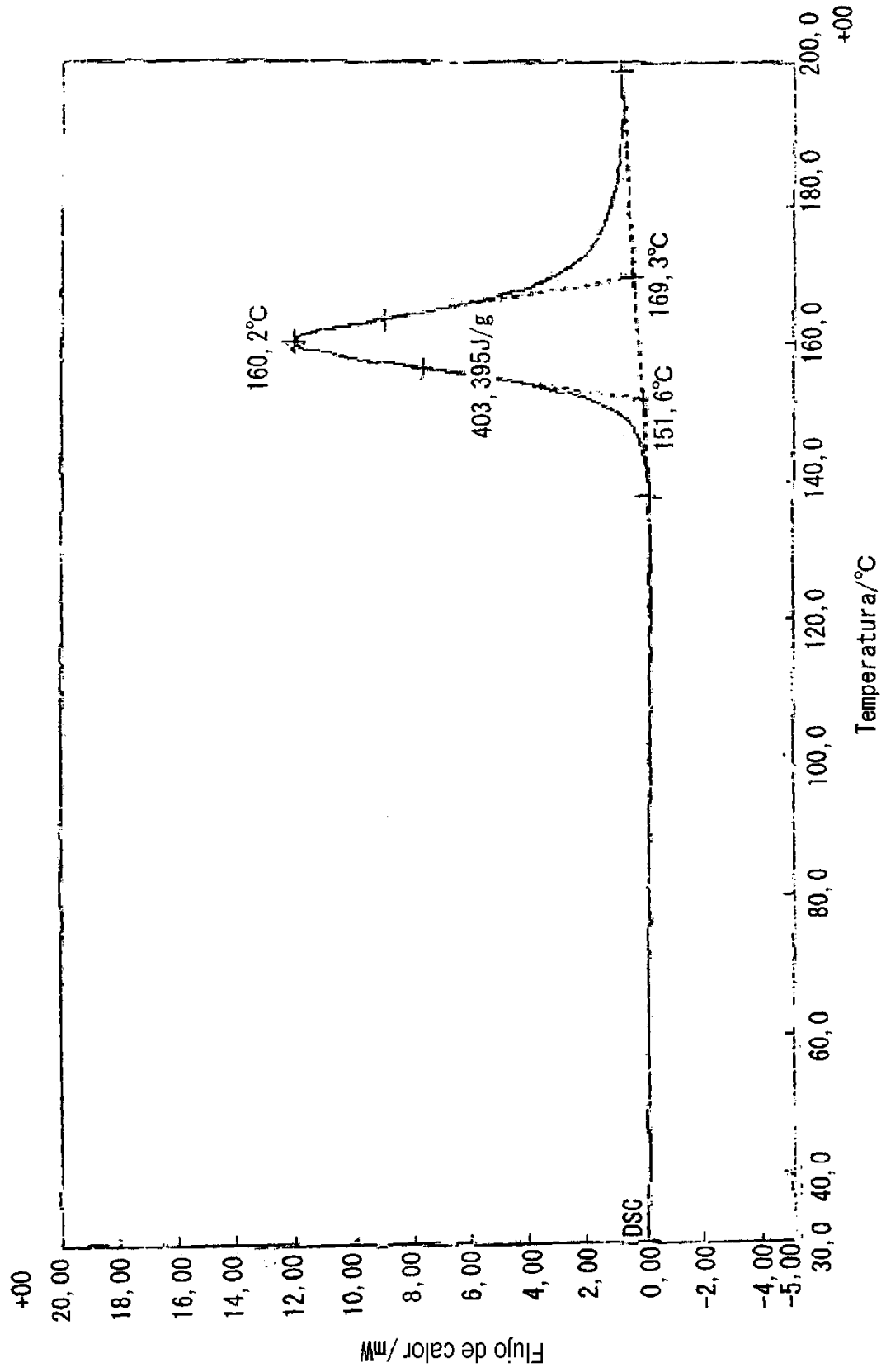


FIG. 9

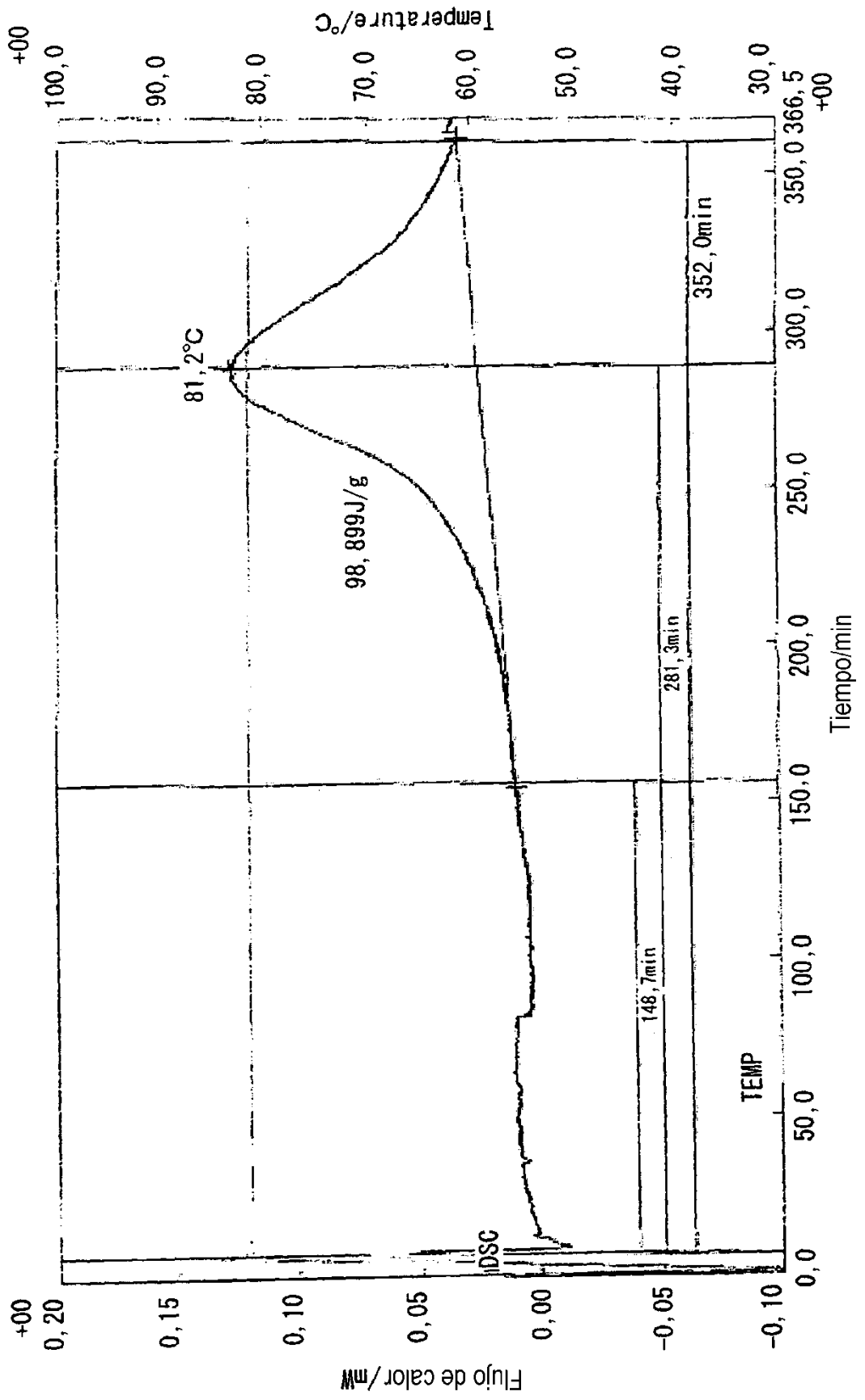


FIG. 10

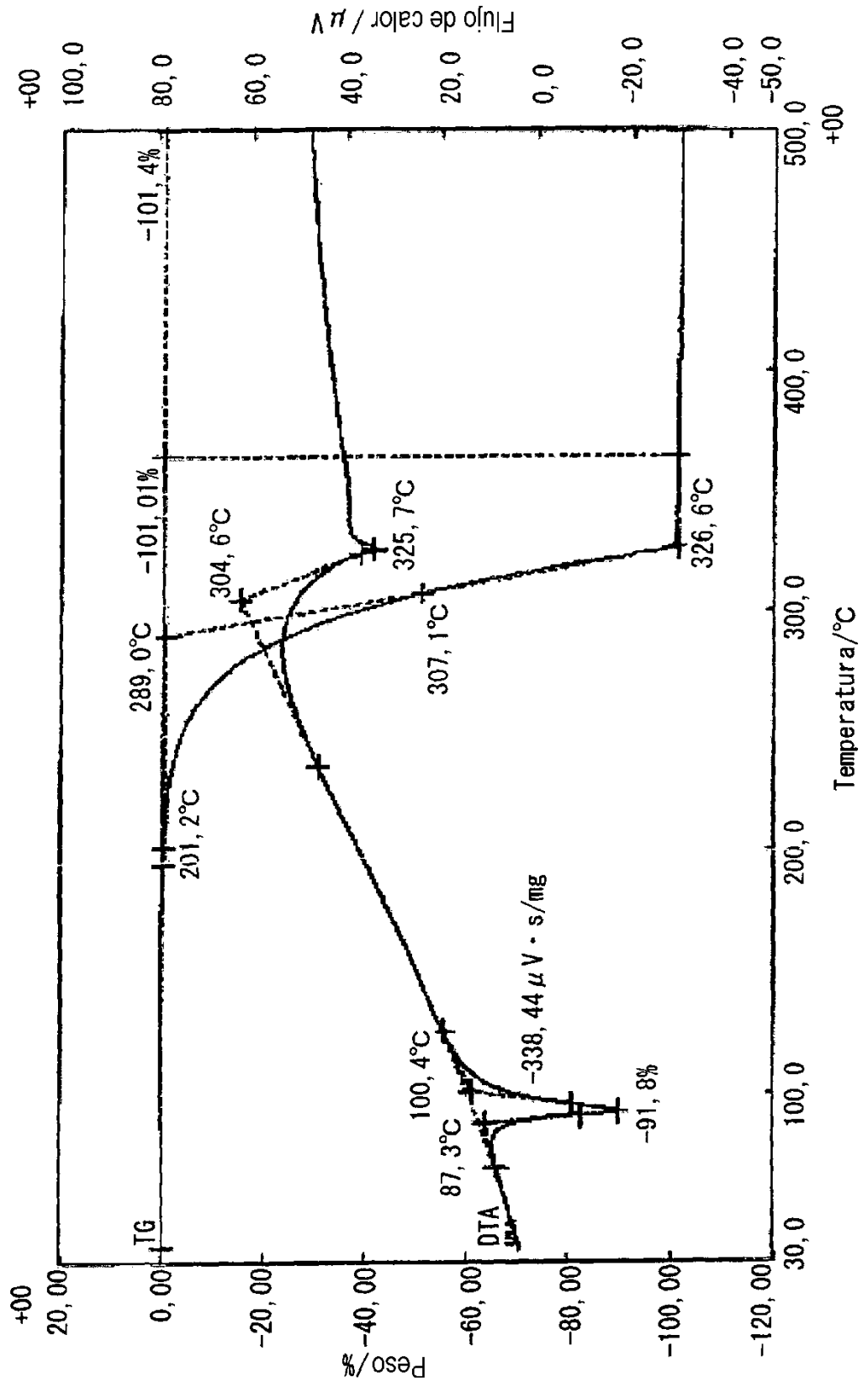


FIG. 11

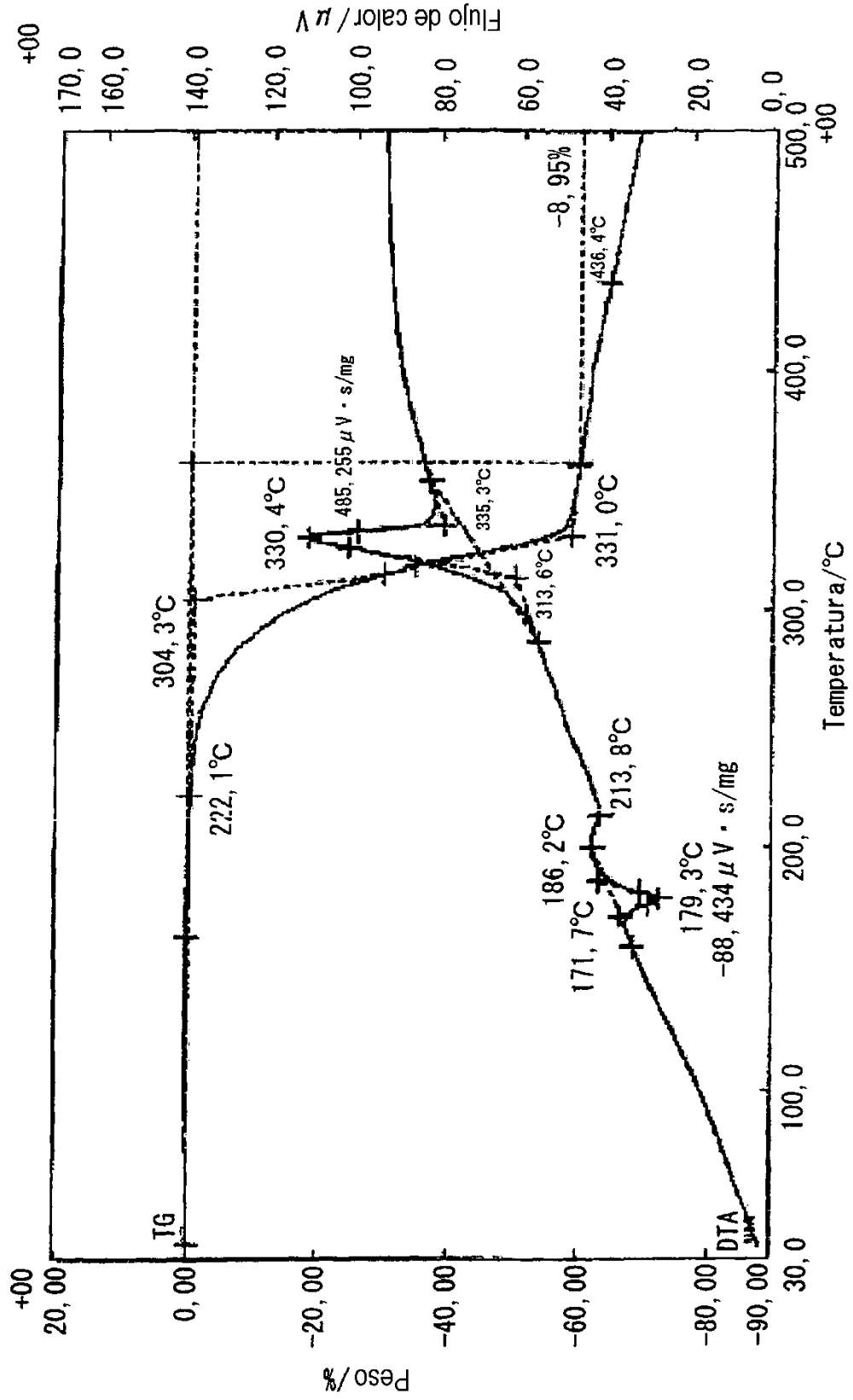


FIG. 12

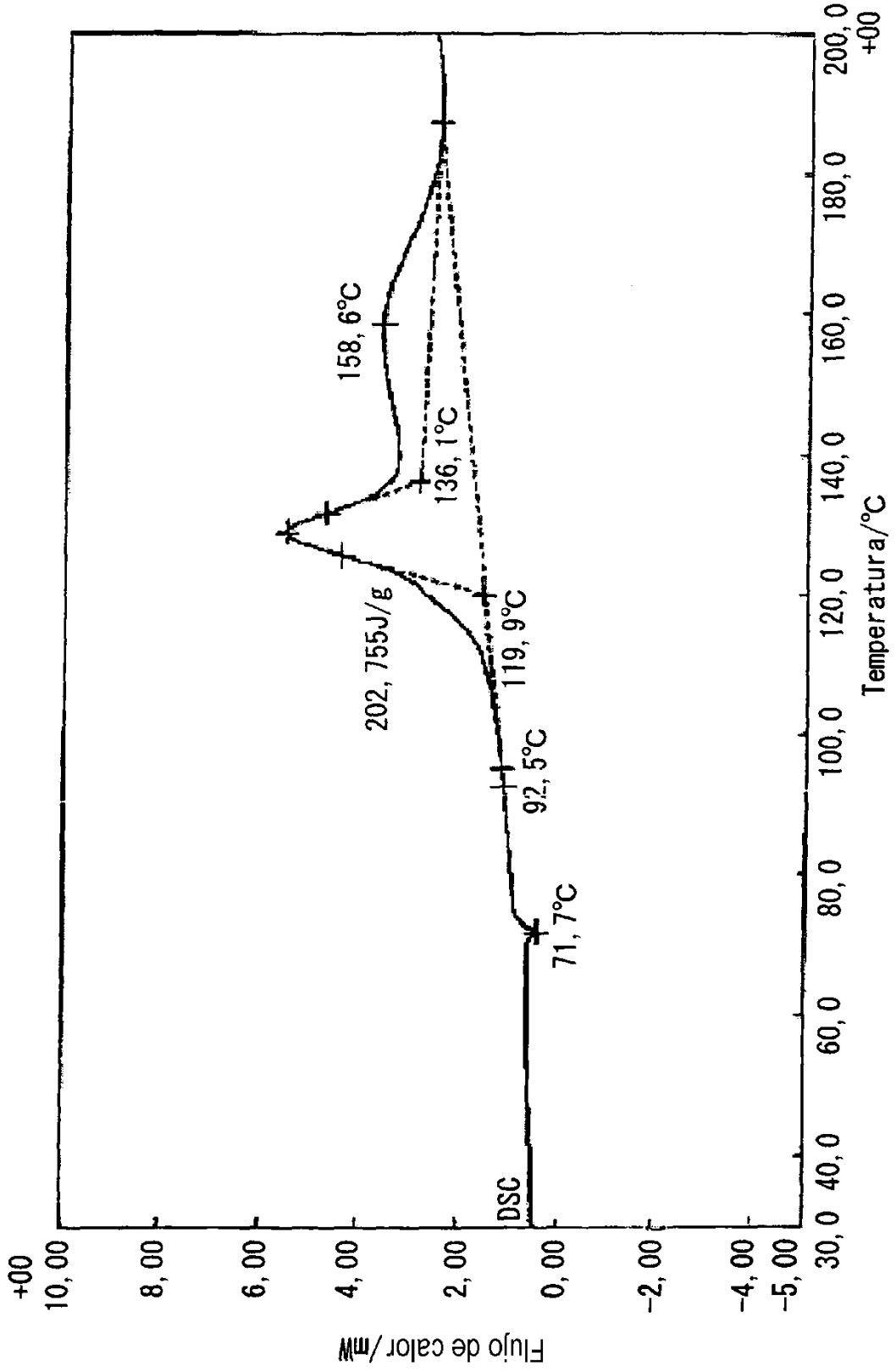


FIG. 13

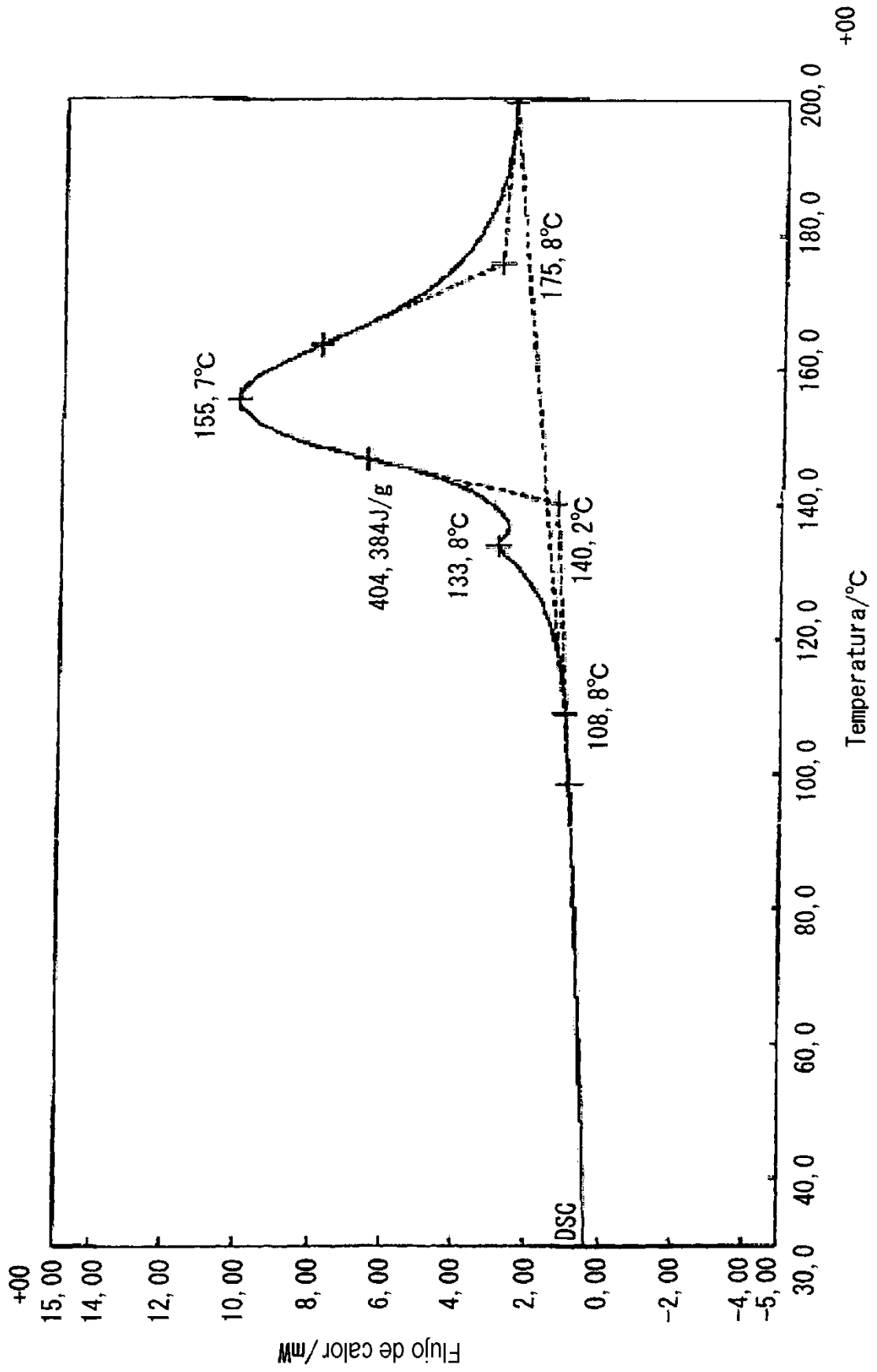


FIG. 14

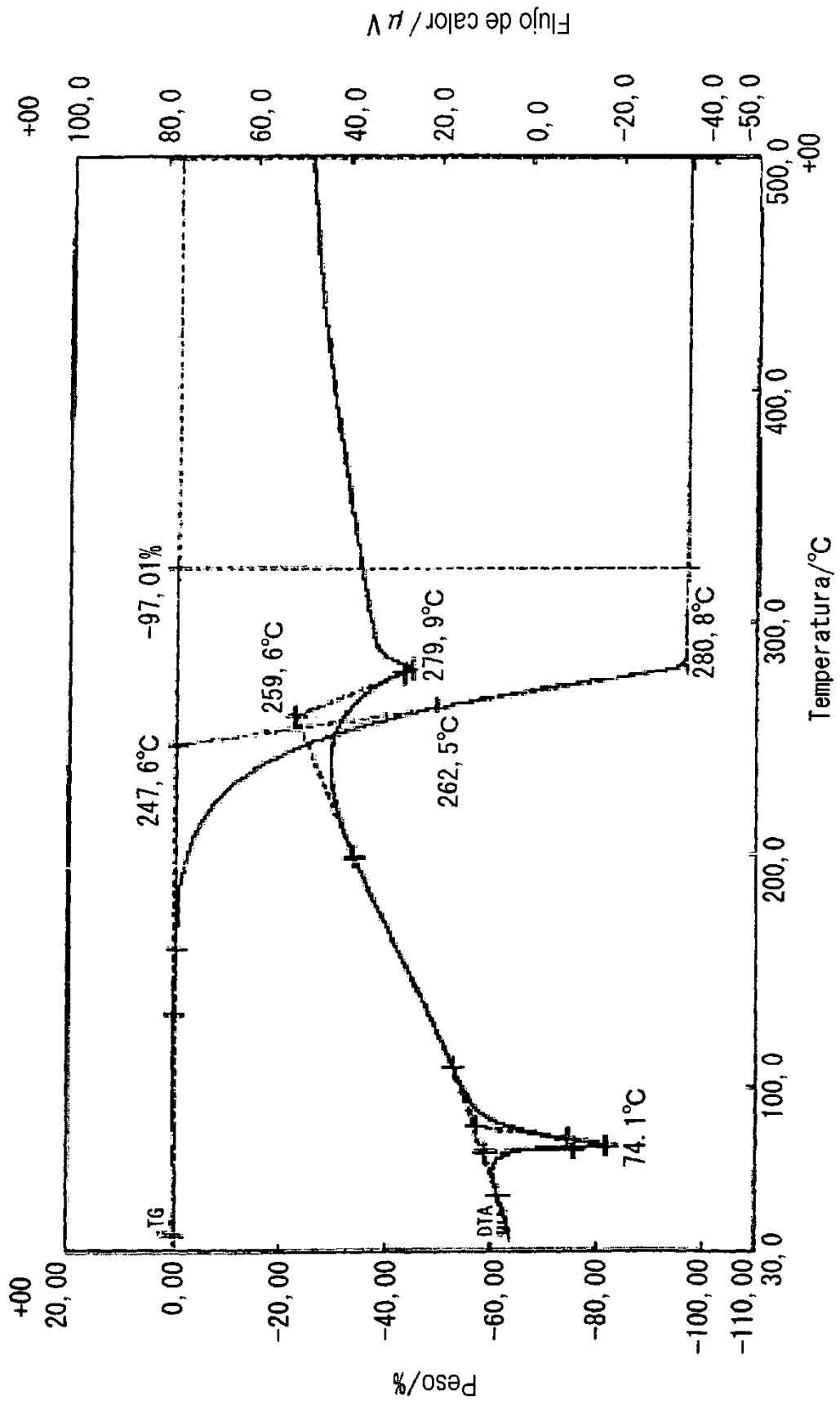


FIG. 15

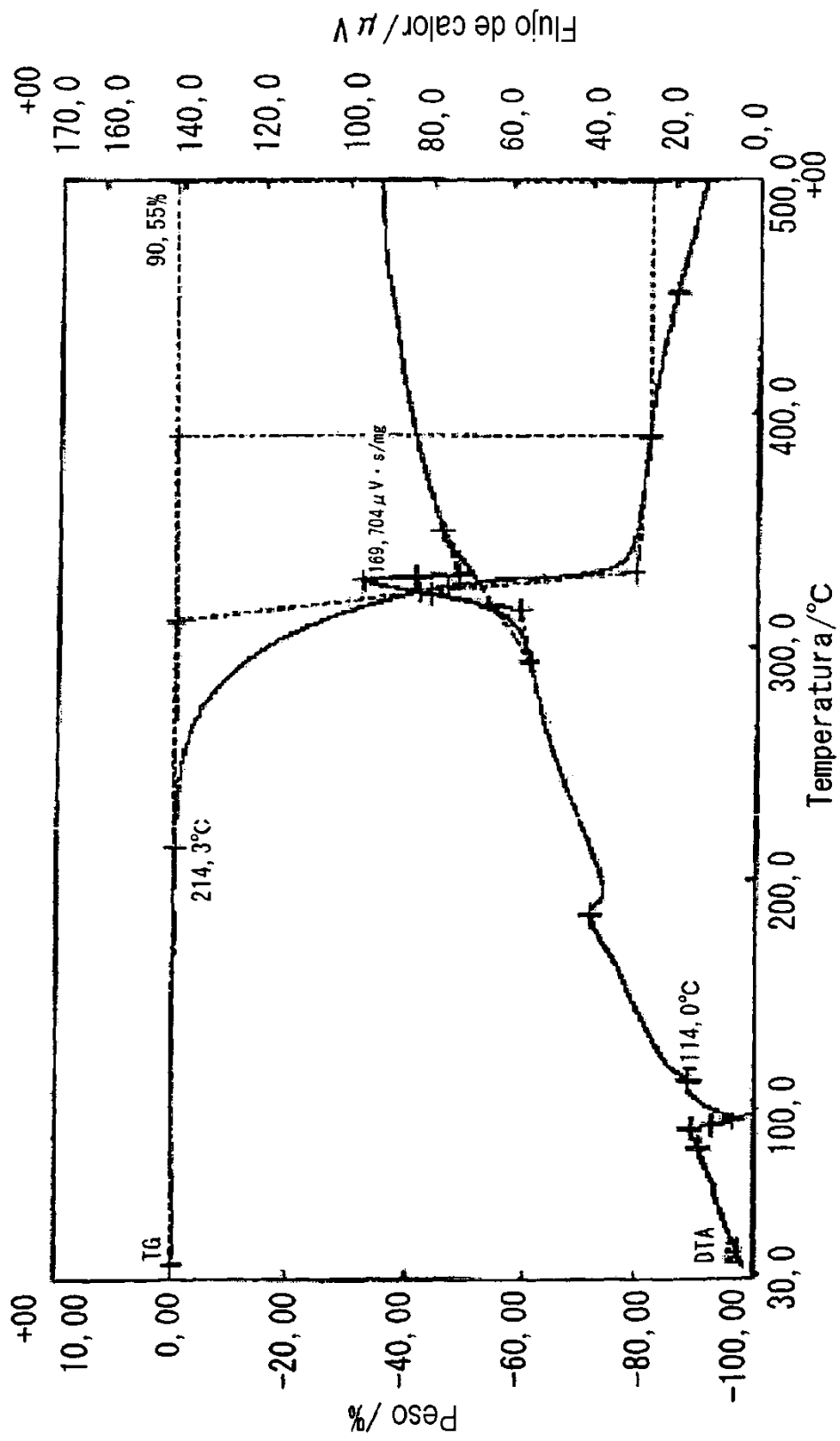


FIG. 16

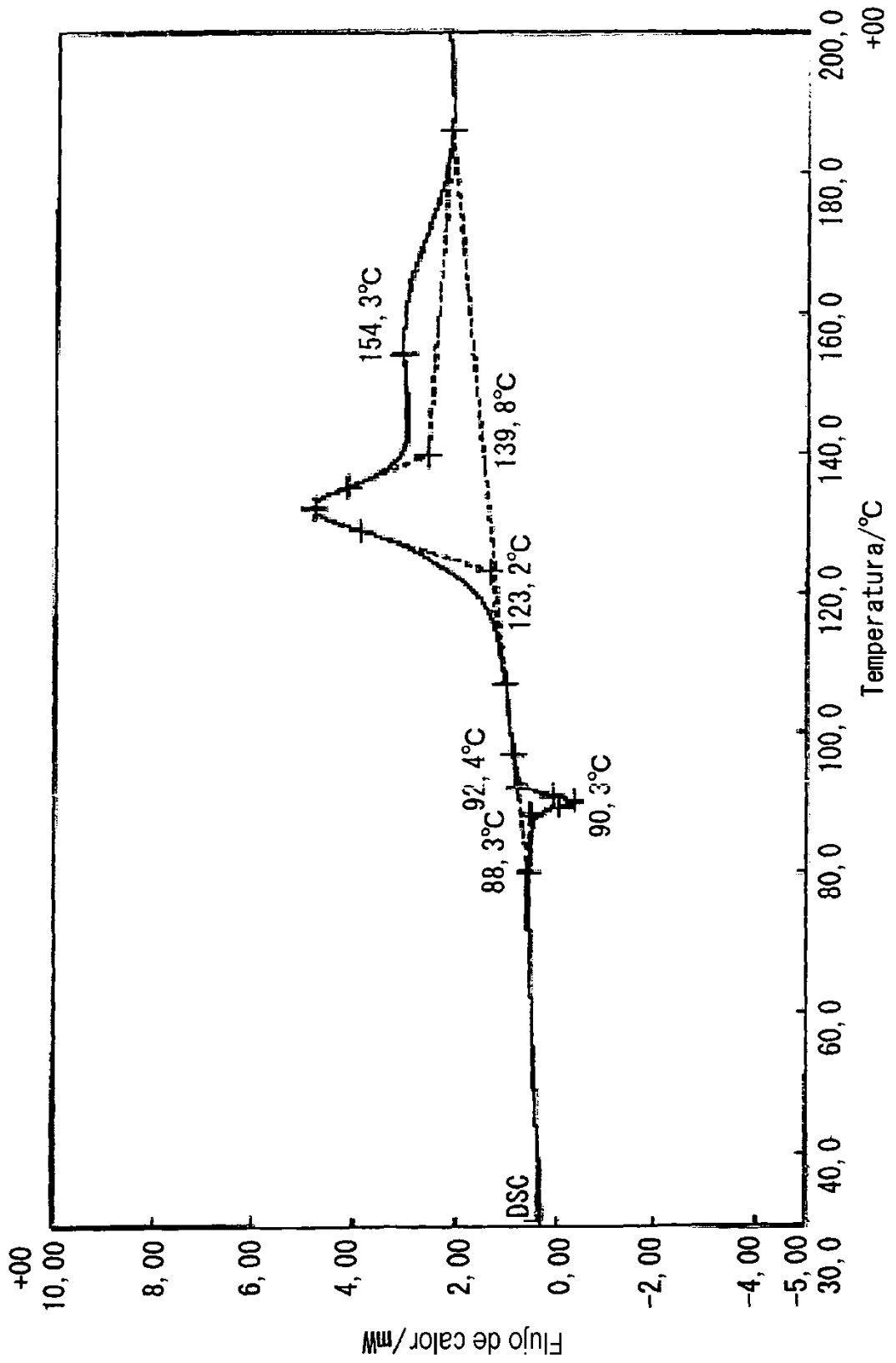


FIG. 17

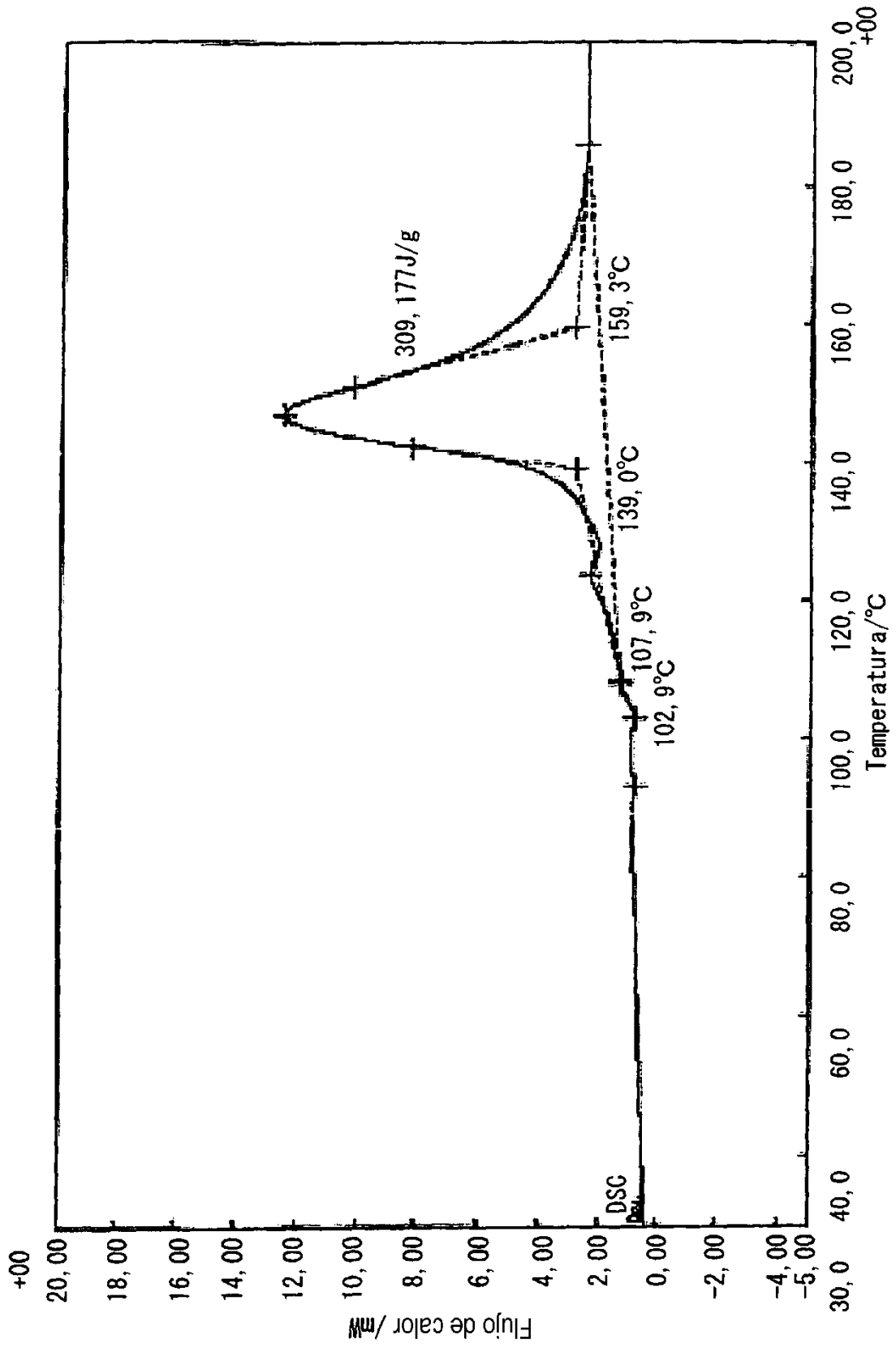


FIG. 18

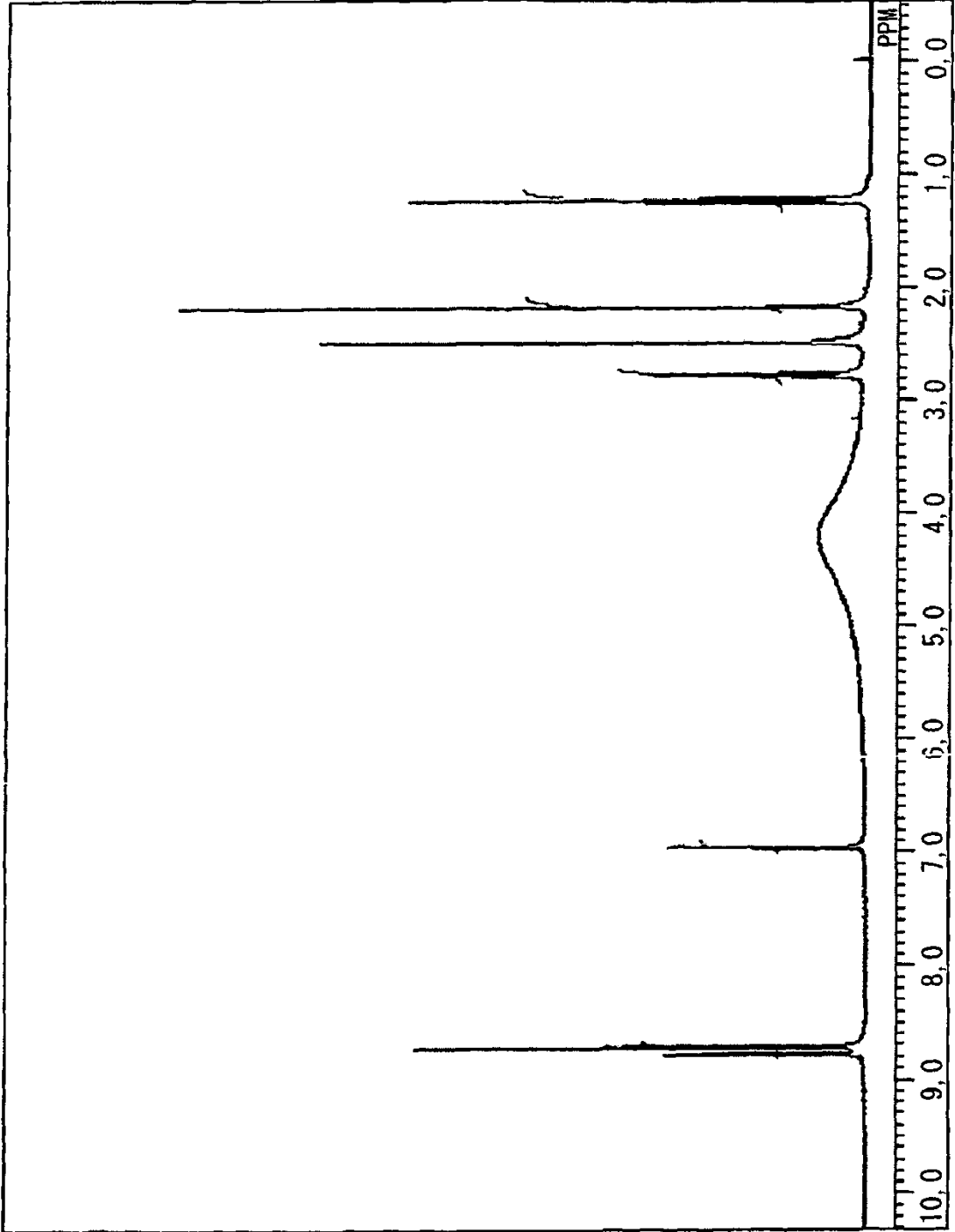


FIG. 19

