

明 細 書

発明の名称：

アゾール化合物、該アゾール化合物の合成方法およびその利用

技術分野

[0001] 本発明は、新規なアゾール化合物、該アゾール化合物の合成方法およびその利用に関するものである。

背景技術

[0002] 従来、有機材料と無機材料のように互いに性質の異なる材料を結合させるためにカップリング剤が用いられており、電子材料、塗料、プライマー、接着剤等の分野に使用されている。そのため、カップリング剤は複合材料の開発や生産には不可欠の薬剤である。

[0003] 例えば、有機物とケイ素から構成される化合物を用いたカップリング剤（シランカップリング剤）が知られており、このシランカップリング剤は、通常では馴染まない有機材料と無機材料を結ぶ仲介役としての機能を発揮する。

[0004] また、トリアゾール化合物等のアゾール化合物は、金属を防錆する機能と、エポキシ樹脂やウレタン樹脂を硬化させる機能を有するため、アゾール化合物を用いた種々のカップリング剤が提案されている。

[0005] カップリング剤として、例えば、特許文献1には、特定トリアゾール環にアルコキシシリル基が導入されたトリアゾールシラン化合物が提案されている。また、特許文献2には、特定の2つのトリアゾール環とジスルフィド結合（ $-S-S-$ ）を有し、トリアゾール環に $-CO-NH-(CH_2)_m-Si(OR)_3$ が導入されたトリアゾールシラン化合物が提案されている。

先行技術文献

特許文献

[0006] 特許文献1：国際公開第2018/186476号

特許文献2：国際公開第2015/002158号

発明の概要

発明が解決しようとする課題

[0007] 近年、電気・電子材料の分野では、小型化、薄型化、精密化、伝搬高速化等への対応から、材料間の接着性（密着性）を高めることが求められる。特許文献 1、2 に開示されるようなアゾール化合物も優れた接着性を発揮できるが、さらなる高接着性を発揮できる化合物が求められていた。

[0008] 本発明は上記課題に鑑みてなされたものであり、新規なアゾール化合物およびその合成方法、並びにカップリング剤を提供することを課題とする。

課題を解決するための手段

[0009] 本発明者らは、前記の課題を解決するために鋭意研究を重ねた結果、ある種のスチリル化合物と、ある種のトリアゾール化合物またはテトラゾール化合物とを反応させることによって得られるアゾール化合物により、上記課題を解決できることを見出し、本発明を完成するに至った。

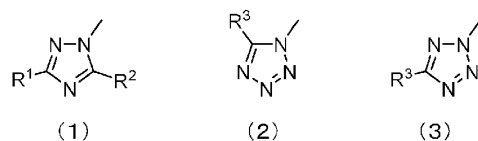
即ち、第 1 の発明は、化学式 (I) で示されるアゾール化合物である。

[0010] [化1]



[0011] (式 (I) 中、A は、式 (1) ~ (3) で示される基を表す。)

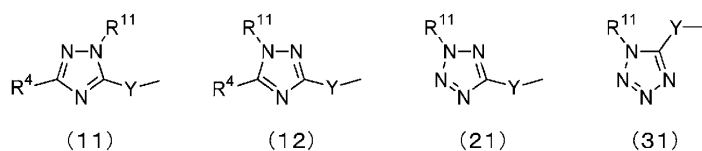
[0012] [化2]



[0013] (式 (1) 中、R¹ および R² は、同一または異なって、水素原子、炭素数 1 ~ 12 の直鎖状もしくは分岐鎖状のアルキル基、アリール基、アラルキル基、置換されていてもよいアミノ基、ヒドロキシル基、シアノ基、ハロゲン原子、炭素数 1 ~ 6 のアルキルチオ基、式 (11) で示される基または式 (12) で示される基を表す。式 (2) および式 (3) 中、R³ は、水素原子、炭

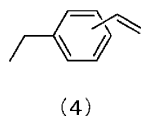
素数 1 ～ 12 の直鎖状もしくは分岐鎖状のアルキル基、アリール基、アラルキル基、置換されていてもよいアミノ基、ヒドロキシル基、シアノ基、ハロゲン原子、炭素数 1 ～ 6 のアルキルチオ基、式 (21) で示される基または式 (31) で示される基を表す。但し、 R^1 および R^2 が同時に水素原子である場合、 R^1 および R^2 が同時に式 (11) で示される基である場合、 R^1 および R^2 が同時に式 (12) で示される基である場合、 R^1 および R^2 が式 (11) と式 (12) で示される基である場合を除く。)

[0014] [化3]



[0015] (式 (11) および式 (12) 中、 R^4 は、水素原子、炭素数 1 ～ 12 の直鎖状もしくは分岐鎖状のアルキル基、アリール基、アラルキル基、置換されていてもよいアミノ基、ヒドロキシル基、シアノ基、ハロゲン原子または炭素数 1 ～ 6 のアルキルチオ基を表す。式 (11)、式 (12)、式 (21) および式 (31) 中、 R^{11} は、水素原子または式 (4) で示される基を表し、 Y は、フェニレン基、 $-NH-$ または $-(CH_2)_n-$ で示される基を表し、ここで、 n は、0 ～ 12 の整数を表す。)

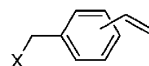
[0016] [化4]



[0017] 第 2 の発明は、化学式 (II) で示されるスチリル化合物と、化学式 (III) で示されるトリアゾール化合物または化学式 (IV) で示されるテトラゾール化合物とを反応させる第 1 の発明のアゾール化合物の合成方法である。

[0018]

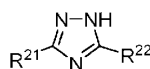
[化5]



(II)

[0019] (式 (II) 中、Xは、フッ素原子、塩素原子、臭素原子またはヨウ素原子を表す。)

[0020] [化6]



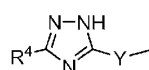
(III)



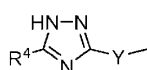
(IV)

[0021] (式 (III) 中、 R^{21} および R^{22} は、同一または異なって、水素原子、炭素数 1 ～ 12 の直鎖状もしくは分岐鎖状のアルキル基、アリール基、アラルキル基、置換されていてもよいアミノ基、ヒドロキシル基、シアノ基、ハロゲン原子、炭素数 1 ～ 6 のアルキルチオ基、式 (13) で示される基または式 (14) で示される基を表す。式 (IV) 中、 R^{23} は、水素原子、炭素数 1 ～ 12 の直鎖状もしくは分岐鎖状のアルキル基、アリール基、アラルキル基、置換されていてもよいアミノ基、ヒドロキシル基、シアノ基、ハロゲン原子、炭素数 1 ～ 6 のアルキルチオ基、式 (22) で示される基または式 (32) で示される基を表す。但し、 R^{21} および R^{22} が同時に水素原子である場合、 R^{21} および R^{22} が同時に式 (13) で示される基である場合、 R^{21} および R^{22} が同時に式 (14) で示される基である場合、 R^{21} および R^{22} が式 (13) と式 (14) で示される基である場合を除く。)

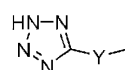
[0022] [化7]



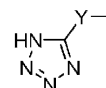
(13)



(14)



(22)



(32)

[0023] (式 (13) および式 (14) 中の R^4 、並びに式 (13)、式 (14)、式

(22) および式(32)中のYは、前記と同様である。)

[0024] 第3の発明は、第1の発明のアゾール化合物を成分とするカップリング剤である。

第4の発明は、第1の発明のアゾール化合物を含有する表面処理液である。

第5の発明は、金属、無機材料および樹脂材料からなる群から選択される少なくとも1つの表面を処理するために用いる、第4の発明の表面処理液である。

第6の発明は、金属、無機材料および樹脂材料からなる群から選択される2つの材料を接着するために用いる、第4の発明の表面処理液である。

第7の発明は、前記金属が、銅、アルミニウム、チタン、ニッケル、錫、鉄、銀、金およびこれらの合金からなる群から選択される少なくとも1つである、第5の発明または第6の発明に記載の表面処理液である。

第8の発明は、第4の発明～第7の発明のいずれか1つに記載の表面処理液を金属、無機材料および樹脂材料からなる群から選択される少なくとも1つの表面に接触させる表面処理方法である。

第9の発明は、前記金属が、銅、アルミニウム、チタン、ニッケル、錫、鉄、銀、金およびこれらの合金からなる群から選択される少なくとも1つである、第8の発明に記載の表面処理方法である。

第10の発明は、前記金属が、銅または銅合金である、第8の発明または第9の発明に記載の表面処理方法である。

第11の発明は、前記表面処理液を銅または銅合金の表面に接触させる前に、銅イオンを含む水溶液を前記銅または銅合金の表面に接触させる、第8の発明～第10の発明のいずれか1つに記載の表面処理方法である。

第12の発明は、前記表面処理液を銅または銅合金の表面に接触させた後に、酸性水溶液またはアルカリ性水溶液を前記銅または銅合金の表面に接触させる、第8の発明～第11の発明のいずれか1つに記載の表面処理方法である。

第13の発明は、第4の発明～第7の発明のいずれか1つに記載の表面処理液を、金属、無機材料および樹脂材料からなる群から選択される少なくとも1つに接触させて当該少なくとも一方に化成皮膜を形成し、前記化成皮膜を介して互いに接着する接着方法である。

第14の発明は、金属と樹脂材料の接着方法であって、第4の発明～第7の発明のいずれか1つに記載の表面処理液を、金属および樹脂材料の少なくとも一方に接触させて当該少なくとも一方に化成皮膜を形成し、前記金属と前記樹脂材料とを前記化成皮膜を介して互いに接着する金属と樹脂材料の接着方法である。

第15の発明は、金属、無機材料および樹脂材料からなる群から選択される2つの材料が、第4の発明～第7の発明のいずれか1つに記載の表面処理液により形成された化成皮膜を介して接着されたプリント配線板である。

第16の発明は、金属、無機材料および樹脂材料からなる群から選択される2つの材料が、第4の発明～第7の発明のいずれか1つに記載の表面処理液により形成された化成皮膜を介して接着された半導体ウェハである。

第17の発明は、第3の発明のカップリング剤と樹脂材料または無機材料とを含有する絶縁性組成物である。

第18の発明は、第17の発明の絶縁性組成物を含有する絶縁材料である。

第19の発明は、第17の発明の絶縁性組成物から得られる絶縁層を有するプリント配線板である。

第20の発明は、第17の発明の絶縁性組成物から得られる絶縁層を有する半導体ウェハである。

発明の効果

[0025] 本発明のアゾール化合物は、分子中に重合性基 ($-C_6H_4-CH=CH_2$) と共にアゾール環 (トリアゾール環またはテトラゾール環) を有する化合物であるため、アゾール化合物の特徴である金属の防錆機能と、エポキシ樹脂やウレタン樹脂等を硬化させる機能を併せ持つ。そのため、本発明のアゾー

ル化合物は、カップリング剤や表面処理液の成分として有用である。

また、本発明のカップリング剤は、重合性基（ $-\text{C}_6\text{H}_4-\text{CH}=\text{CH}_2$ ）を有するアゾール化合物を成分とするので、性質の異なる材料間の接着性（密着性）を高めることができる。このアゾール化合物を含有した表面処理液によれば、材質の異なる2つの材料、即ち、金属と無機材料、金属と樹脂材料および、無機材料と樹脂材料の接着性を高めることができる。

発明を実施するための形態

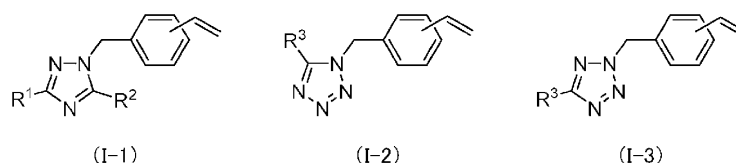
[0026] 以下、本発明を詳細に説明する。なお、本発明は、以下に説明する実施形態に限定されるものではない。

[0027] （アゾール化合物）

本発明のアゾール化合物は、前記化学式（1）で示される（以下、本発明のアゾール化合物ということがある。）。

化学式（1）で示されるアゾール化合物は、化学式（I-1）～化学式（I-3）で示されるアゾール化合物を包含する。

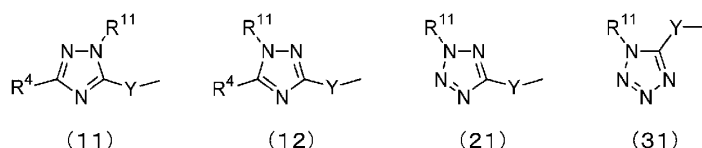
[0028] [化8]



[0029] （式（I-1）中、 R^1 および R^2 は、同一または異なって、水素原子、炭素数1～12の直鎖状もしくは分岐鎖状のアルキル基、アリール基、アラルキル基、置換されていてもよいアミノ基、ヒドロキシ基、シアノ基、ハロゲン原子、炭素数1～6のアルキルチオ基、式（11）で示される基または式（12）で示される基を表す。式（I-2）および式（I-3）中、 R^3 は、水素原子、炭素数1～12の直鎖状もしくは分岐鎖状のアルキル基、アリール基、アラルキル基、置換されていてもよいアミノ基、ヒドロキシ基、シアノ基、ハロゲン原子、炭素数1～6のアルキルチオ基、式（21）で示される基または式（31）で示される基を表す。但し、 R^1 および R^2 が同時に水素原子で

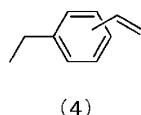
ある場合、 R^1 および R^2 が同時に式(11)で示される基である場合、 R^1 および R^2 が同時に式(12)で示される基である場合、 R^1 および R^2 が式(11)と式(12)で示される基である場合を除く。)

[0030] [化9]



[0031] (式(11)および式(12)中、 R^4 は、水素原子、炭素数1～12の直鎖状もしくは分岐鎖状のアルキル基、アリール基、アラルキル基、置換されていてもよいアミノ基、ヒドロキシル基、シアノ基、ハロゲン原子または炭素数1～6のアルキルチオ基を表す。式(11)、式(12)、式(21)および式(31)中、 R^{11} は、水素原子または式(4)で示される基を表し、 Y は、フェニレン基、 $-NH-$ または $-(CH_2)_n-$ で示される基を表し、ここで、 n は、0～12の整数を表す。)

[0032] [化10]



[0033] R^1 、 R^2 および R^3 で表される炭素数1～12の直鎖状のアルキル基としては、具体的に、メチル基、エチル基、 n -プロピル基、 n -ブチル基、 n -ペンチル基、 n -ヘキシル基、ヘプチル基、オクチル基、ノニル基、デシル基、ウンデシル基、ドデシル基等が挙げられる。

炭素数1～12の分岐鎖状のアルキル基としては、炭素数3～12の分岐鎖状のアルキル基であり、具体的に、イソプロピル基、イソブチル基、 s -ブチル基、 t -ブチル基、イソペンチル基、 s -ペンチル基、 t -ペンチル基、イソヘキシル基、 s -ヘキシル基、 t -ヘキシル基等が挙げられる。

アリール基としては、具体的に、フェニル基、 o -トリル基、 m -トリル

基、p-トリル基、キシリル基、トリメチルフェニル基、テトラメチルフェニル基、1-ナフチル基、2-ナフチル基等が挙げられる。

アラルキル基としては、具体的に、ベンジル基、フェニルエチル基、フェニルプロピル基、メチルベンジル基等が挙げられる。

置換されていてもよいアミノ基としては、具体的に、アミノ基、メチルアミノ基、エチルアミノ基、プロピルアミノ基、イソプロピルアミノ基、フェニルアミノ基、アセトアミド基、グアニジノ基、ジメチルアミノ基、ジエチルアミノ基、ジプロピルアミノ基、ジイソプロピルアミノ基、エチルメチルアミノ基、ジフェニルアミノ基等が挙げられる。

ハロゲン原子としては、具体的に、フッ素原子、塩素原子、臭素原子、ヨウ素原子等が挙げられる。

炭素数1～6のアルキルチオ基としては、具体的に、メチルチオ基、エチルチオ基、プロピルチオ基、イソプロピルチオ基、ブチルチオ基、イソブチルチオ基、sec-ブチルチオ基、tert-ブチルチオ基、ペンチルチオ基、ヘキシルチオ基等が挙げられる。

[0034] 式(11)で示される基および式(12)で示される基中の R^4 で表される炭素数1～12の直鎖状のアルキル基、炭素数1～12の分岐鎖状のアルキル基、アリール基、アラルキル基、置換されていてもよいアミノ基、ハロゲン原子、炭素数1～6のアルキルチオ基の具体例も上記と同様である。

[0035] 式(I-1)において、 R^1 および R^2 は、同一または異なって、アミノ基または炭素数1～6のアルキルチオ基であることがより好ましく、第1級アミノ基または炭素数1～4のアルキルチオ基であることがより好ましい。

式(I-2)または式(I-3)において、 R^3 は、アミノ基または炭素数1～6のアルキルチオ基であることがより好ましく、第1級アミノ基または炭素数1～4のアルキルチオ基であることがより好ましい。

[0036] 化学式(I-1)で示されるアゾール化合物の具体例としては、例えば、3-メチル-1-(4-ビニルベンジル)-1H-1,2,4-トリアゾール、

5-メチル-1-(4-ビニルベンジル)-1H-1,2,4-トリアゾール、
3-エチル-1-(4-ビニルベンジル)-1H-1,2,4-トリアゾール、
5-エチル-1-(4-ビニルベンジル)-1H-1,2,4-トリアゾール、
3-プロピル-1-(4-ビニルベンジル)-1H-1,2,4-トリアゾール、
5-プロピル-1-(4-ビニルベンジル)-1H-1,2,4-トリアゾール、
3-イソプロピル-1-(4-ビニルベンジル)-1H-1,2,4-トリアゾール、
5-イソプロピル-1-(4-ビニルベンジル)-1H-1,2,4-トリアゾール、
3-ブチル-1-(4-ビニルベンジル)-1H-1,2,4-トリアゾール、
5-ブチル-1-(4-ビニルベンジル)-1H-1,2,4-トリアゾール、
3-ヘキシル-1-(4-ビニルベンジル)-1H-1,2,4-トリアゾール、
5-ヘキシル-1-(4-ビニルベンジル)-1H-1,2,4-トリアゾール、
3-オクチル-1-(4-ビニルベンジル)-1H-1,2,4-トリアゾール、
5-オクチル-1-(4-ビニルベンジル)-1H-1,2,4-トリアゾール、
3-デシル-1-(4-ビニルベンジル)-1H-1,2,4-トリアゾール、

5-デシル-1-(4-ビニルベンジル)-1H-1, 2, 4-トリアゾール、
3-ドデシル-1-(4-ビニルベンジル)-1H-1, 2, 4-トリアゾール、
5-ドデシル-1-(4-ビニルベンジル)-1H-1, 2, 4-トリアゾール、
3, 5-ジメチル-1-(4-ビニルベンジル)-1H-1, 2, 4-トリアゾール、
3, 5-ジイソプロピル-1-(4-ビニルベンジル)-1H-1, 2, 4-トリアゾール、
3-メチル-5-オクチル-1-(4-ビニルベンジル)-1H-1, 2, 4-トリアゾール、
5-メチル-3-オクチル-1-(4-ビニルベンジル)-1H-1, 2, 4-トリアゾール、
3-エチル-5-オクチル-1-(4-ビニルベンジル)-1H-1, 2, 4-トリアゾール、
5-エチル-3-オクチル-1-(4-ビニルベンジル)-1H-1, 2, 4-トリアゾール、
3-フェニル-1-(4-ビニルベンジル)-1H-1, 2, 4-トリアゾール、
5-フェニル-1-(4-ビニルベンジル)-1H-1, 2, 4-トリアゾール、
3-メチル-5-フェニル-1-(4-ビニルベンジル)-1H-1, 2, 4-トリアゾール、
5-メチル-3-フェニル-1-(4-ビニルベンジル)-1H-1, 2, 4-トリアゾール、
3-エチル-5-フェニル-1-(4-ビニルベンジル)-1H-1, 2, 4-トリアゾール、

5-エチル-3-フェニル-1-(4-ビニルベンジル)-1H-1, 2,
4-トリアゾール、
3, 5-ジフェニル-1-(4-ビニルベンジル)-1H-1, 2, 4-ト
リアゾール、
3-ベンジル-1-(4-ビニルベンジル)-1H-1, 2, 4-トリアゾ
ール、
5-ベンジル-1-(4-ビニルベンジル)-1H-1, 2, 4-トリアゾ
ール、
5-プロピル-3-ベンジル-1-(4-ビニルベンジル)-1H-1, 2
, 4-トリアゾール、
3-プロピル-5-ベンジル-1-(4-ビニルベンジル)-1H-1, 2
, 4-トリアゾール、
3-ベンジル-5-フェニル-1-(4-ビニルベンジル)-1H-1, 2
, 4-トリアゾール、
5-ベンジル-3-フェニル-1-(4-ビニルベンジル)-1H-1, 2
, 4-トリアゾール、
3-アミノ-1-(4-ビニルベンジル)-1H-1, 2, 4-トリアゾ
ール、
5-アミノ-1-(4-ビニルベンジル)-1H-1, 2, 4-トリアゾ
ール、
3-アミノ-5-エチル-1-(4-ビニルベンジル)-1H-1, 2, 4
-トリアゾール、
5-アミノ-3-エチル-1-(4-ビニルベンジル)-1H-1, 2, 4
-トリアゾール、
3-アミノ-5-フェニル-1-(4-ビニルベンジル)-1H-1, 2,
4-トリアゾール、
5-アミノ-3-フェニル-1-(4-ビニルベンジル)-1H-1, 2,
4-トリアゾール、

3-アミノ-5-ベンジル-1-(4-ビニルベンジル)-1H-1, 2,
4-トリアゾール、
5-アミノ-3-ベンジル-1-(4-ビニルベンジル)-1H-1, 2,
4-トリアゾール、
3, 5-ジアミノ-1-(2-ビニルベンジル)-1H-1, 2, 4-トリ
アゾール、
3, 5-ジアミノ-1-(3-ビニルベンジル)-1H-1, 2, 4-トリ
アゾール、
3, 5-ジアミノ-1-(4-ビニルベンジル)-1H-1, 2, 4-トリ
アゾール、
3-メチルチオ-1-(4-ビニルベンジル)-1H-1, 2, 4-トリア
ゾール、
5-メチルチオ-1-(4-ビニルベンジル)-1H-1, 2, 4-トリア
ゾール、
3-エチルチオ-5-イソプロピル-1-(4-ビニルベンジル)-1H-
1, 2, 4-トリアゾール、
5-エチルチオ-3-イソプロピル-1-(4-ビニルベンジル)-1H-
1, 2, 4-トリアゾール、
3-イソプロピルチオ-1-(4-ビニルベンジル)-1H-1, 2, 4-
トリアゾール、
5-イソプロピルチオ-1-(4-ビニルベンジル)-1H-1, 2, 4-
トリアゾール、
3-ヘキシルチオ-1-(4-ビニルベンジル)-1H-1, 2, 4-トリ
アゾール、
5-ヘキシルチオ-1-(4-ビニルベンジル)-1H-1, 2, 4-トリ
アゾール、
3, 5-ビス(メチルチオ)-1-(4-ビニルベンジル)-1H-1, 2
, 4-トリアゾール、

3-メチルチオ-5-ヘキシルチオ-1-(4-ビニルベンジル)-1H-1, 2, 4-トリアゾール、
5-メチルチオ-3-ヘキシルチオ-1-(4-ビニルベンジル)-1H-1, 2, 4-トリアゾール、
3-アミノ-5-メチルチオ-1-(4-ビニルベンジル)-1H-1, 2, 4-トリアゾール、
5-アミノ-3-メチルチオ-1-(4-ビニルベンジル)-1H-1, 2, 4-トリアゾール、
3-アミノ-5-イソプロピルチオ-1-(4-ビニルベンジル)-1H-1, 2, 4-トリアゾール、
5-アミノ-3-イソプロピルチオ-1-(4-ビニルベンジル)-1H-1, 2, 4-トリアゾール、
3-アミノ-5-ヘキシルチオ-1-(4-ビニルベンジル)-1H-1, 2, 4-トリアゾール、
5-アミノ-3-ヘキシルチオ-1-(4-ビニルベンジル)-1H-1, 2, 4-トリアゾール、
3-メチルアミノ-1-(4-ビニルベンジル)-1H-1, 2, 4-トリアゾール、
5-メチルアミノ-1-(4-ビニルベンジル)-1H-1, 2, 4-トリアゾール、
3, 5-ビス(メチルアミノ)-1-(4-ビニルベンジル)-1H-1, 2, 4-トリアゾール、
3-アミノ-5-メチルアミノ-1-(4-ビニルベンジル)-1H-1, 2, 4-トリアゾール、
5-アミノ-3-メチルアミノ-1-(4-ビニルベンジル)-1H-1, 2, 4-トリアゾール、
3-メチルアミノ-5-エチル-1-(4-ビニルベンジル)-1H-1, 2, 4-トリアゾール、

5-メチルアミノ-3-エチル-1-(4-ビニルベンジル)-1H-1, 2, 4-トリアゾール、
3-メチルアミノ-5-フェニル-1-(4-ビニルベンジル)-1H-1, 2, 4-トリアゾール、
5-メチルアミノ-3-フェニル-1-(4-ビニルベンジル)-1H-1, 2, 4-トリアゾール、
3-メチルアミノ-5-ベンジル-1-(4-ビニルベンジル)-1H-1, 2, 4-トリアゾール、
5-メチルアミノ-3-ベンジル-1-(4-ビニルベンジル)-1H-1, 2, 4-トリアゾール、
3-フェニルアミノ-1-(4-ビニルベンジル)-1H-1, 2, 4-トリアゾール、
5-フェニルアミノ-1-(4-ビニルベンジル)-1H-1, 2, 4-トリアゾール、
3, 5-ビス(フェニルアミノ)-1-(4-ビニルベンジル)-1H-1, 2, 4-トリアゾール、
3-アミノ-5-フェニルアミノ-1-(4-ビニルベンジル)-1H-1, 2, 4-トリアゾール、
5-アミノ-3-フェニルアミノ-1-(4-ビニルベンジル)-1H-1, 2, 4-トリアゾール、
3-フェニルアミノ-5-エチル-1-(4-ビニルベンジル)-1H-1, 2, 4-トリアゾール、
5-フェニルアミノ-3-エチル-1-(4-ビニルベンジル)-1H-1, 2, 4-トリアゾール、
3-フェニルアミノ-5-フェニル-1-(4-ビニルベンジル)-1H-1, 2, 4-トリアゾール、
5-フェニルアミノ-3-フェニル-1-(4-ビニルベンジル)-1H-1, 2, 4-トリアゾール、

3-フェニルアミノ-5-ベンジル-1-(4-ビニルベンジル)-1H-1, 2, 4-トリアゾール、
5-フェニルアミノ-3-ベンジル-1-(4-ビニルベンジル)-1H-1, 2, 4-トリアゾール、
3-アセトアミド-1-(4-ビニルベンジル)-1H-1, 2, 4-トリアゾール、
5-アセトアミド-1-(4-ビニルベンジル)-1H-1, 2, 4-トリアゾール、
3, 5-ビス(アセトアミド)-1-(4-ビニルベンジル)-1H-1, 2, 4-トリアゾール、
3-アミノ-5-アセトアミド-1-(4-ビニルベンジル)-1H-1, 2, 4-トリアゾール、
5-アミノ-3-アセトアミド-1-(4-ビニルベンジル)-1H-1, 2, 4-トリアゾール、
3-アセトアミド-5-エチル-1-(4-ビニルベンジル)-1H-1, 2, 4-トリアゾール、
5-アセトアミド-3-エチル-1-(4-ビニルベンジル)-1H-1, 2, 4-トリアゾール、
3-アセトアミド-5-フェニル-1-(4-ビニルベンジル)-1H-1, 2, 4-トリアゾール、
5-アセトアミド-3-フェニル-1-(4-ビニルベンジル)-1H-1, 2, 4-トリアゾール、
3-アセトアミド-5-ベンジル-1-(4-ビニルベンジル)-1H-1, 2, 4-トリアゾール、
5-アセトアミド-3-ベンジル-1-(4-ビニルベンジル)-1H-1, 2, 4-トリアゾール、
3-グアニジノ-1-(4-ビニルベンジル)-1H-1, 2, 4-トリアゾール、

5-グアニジノ-1-(4-ビニルベンジル)-1H-1, 2, 4-トリアゾール、
3, 5-ビス(グアニジノ)-1-(4-ビニルベンジル)-1H-1, 2, 4-トリアゾール、
3-アミノ-5-グアニジノ-1-(4-ビニルベンジル)-1H-1, 2, 4-トリアゾール、
5-アミノ-3-グアニジノ-1-(4-ビニルベンジル)-1H-1, 2, 4-トリアゾール、
3-グアニジノ-5-エチル-1-(4-ビニルベンジル)-1H-1, 2, 4-トリアゾール、
5-グアニジノ-3-エチル-1-(4-ビニルベンジル)-1H-1, 2, 4-トリアゾール、
3-グアニジノ-5-フェニル-1-(4-ビニルベンジル)-1H-1, 2, 4-トリアゾール、
5-グアニジノ-3-フェニル-1-(4-ビニルベンジル)-1H-1, 2, 4-トリアゾール、
3-グアニジノ-5-ベンジル-1-(4-ビニルベンジル)-1H-1, 2, 4-トリアゾール、
5-グアニジノ-3-ベンジル-1-(4-ビニルベンジル)-1H-1, 2, 4-トリアゾール、
3-ヒドロキシ-1-(4-ビニルベンジル)-1H-1, 2, 4-トリアゾール、
5-ヒドロキシ-1-(4-ビニルベンジル)-1H-1, 2, 4-トリアゾール、
3-ヒドロキシ-5-エチル-1-(4-ビニルベンジル)-1H-1, 2, 4-トリアゾール、
5-ヒドロキシ-3-エチル-1-(4-ビニルベンジル)-1H-1, 2, 4-トリアゾール、

3-ヒドロキシ-5-フェニル-1-(4-ビニルベンジル)-1H-1, 2, 4-トリアゾール、
5-ヒドロキシ-3-フェニル-1-(4-ビニルベンジル)-1H-1, 2, 4-トリアゾール、
3-ヒドロキシ-5-ベンジル-1-(4-ビニルベンジル)-1H-1, 2, 4-トリアゾール、
5-ヒドロキシ-3-ベンジル-1-(4-ビニルベンジル)-1H-1, 2, 4-トリアゾール、
3-シアノ-1-(4-ビニルベンジル)-1H-1, 2, 4-トリアゾール、
5-シアノ-1-(4-ビニルベンジル)-1H-1, 2, 4-トリアゾール、
3-シアノ-5-エチル-1-(4-ビニルベンジル)-1H-1, 2, 4-トリアゾール、
5-シアノ-3-エチル-1-(4-ビニルベンジル)-1H-1, 2, 4-トリアゾール、
3-シアノ-5-フェニル-1-(4-ビニルベンジル)-1H-1, 2, 4-トリアゾール、
5-シアノ-3-フェニル-1-(4-ビニルベンジル)-1H-1, 2, 4-トリアゾール、
3-シアノ-5-ベンジル-1-(4-ビニルベンジル)-1H-1, 2, 4-トリアゾール、
5-シアノ-3-ベンジル-1-(4-ビニルベンジル)-1H-1, 2, 4-トリアゾール、
3-クロロ-1-(4-ビニルベンジル)-1H-1, 2, 4-トリアゾール、
5-クロロ-1-(4-ビニルベンジル)-1H-1, 2, 4-トリアゾール、

3-クロロ-5-エチル-1-(4-ビニルベンジル)-1H-1, 2, 4-トリアゾール、
5-クロロ-3-エチル-1-(4-ビニルベンジル)-1H-1, 2, 4-トリアゾール、
3-ブロモ-5-フェニル-1-(4-ビニルベンジル)-1H-1, 2, 4-トリアゾール、
5-ブロモ-3-フェニル-1-(4-ビニルベンジル)-1H-1, 2, 4-トリアゾール、
3-ヨード-5-ベンジル-1-(4-ビニルベンジル)-1H-1, 2, 4-トリアゾール、
5-ヨード-3-ベンジル-1-(4-ビニルベンジル)-1H-1, 2, 4-トリアゾール、
1-(4-ビニルベンジル)-3, 3'-(1, 4-フェニレン)ビス(1H-1, 2, 4-トリアゾール)、
1-(4-ビニルベンジル)-3, 3'-(1, 2-フェニレン)ビス(5-メチル-1, 2, 4-1H-トリアゾール)、
1-(4-ビニルベンジル)-3, 3'-(1, 3-フェニレン)ビス(5-ブチル-1, 2, 4-1H-トリアゾール)、
1-(4-ビニルベンジル)-3, 3'-(1, 4-フェニレン)ビス(5-アミノ-1, 2, 4-1H-トリアゾール)、
1-(4-ビニルベンジル)-3, 3'-(1, 4-フェニレン)ビス(5-エチルチオ-1H-1, 2, 4-トリアゾール)、
1-(4-ビニルベンジル)-3, 3'-イミノビス(5-エチル-1H-1, 2, 4-トリアゾール)、
1-(4-ビニルベンジル)-3, 3'-イミノビス(5-p-トリル-1H-1, 2, 4-トリアゾール)、
1-(4-ビニルベンジル)-3, 3'-イミノビス(5-アミノ-1H-1, 2, 4-トリアゾール)、

- 1 - (4 - ビニルベンジル) - 3, 3' - イミノビス (5 - イソプロピル - 1 H - 1, 2, 4 - トリアゾール) 、
- 1 - (4 - ビニルベンジル) - 3, 3' - ビス (5 - メチル - 1 H - 1, 2, 4 - トリアゾール) 、
- 1 - (4 - ビニルベンジル) - 3, 3' - ビス (5 - ペンチル - 1 H - 1, 2, 4 - トリアゾール) 、
- 1 - (4 - ビニルベンジル) - 3, 3' - ビス (5 - アミノ - 1 H - 1, 2, 4 - トリアゾール) 、
- 1 - (4 - ビニルベンジル) - 3, 3' - ビス (5 - フェニル - 1 H - 1, 2, 4 - トリアゾール) 、
- 1 - (4 - ビニルベンジル) - 5 - アミノ - 5' - メチル - 3, 3' - ビ - 1 H - 1, 2, 4 - トリアゾール、
- 1 - (4 - ビニルベンジル) - 3, 3' - メチレンビス (5 - イソブチル - 1 H - 1, 2, 4 - トリアゾール) 、
- 1 - (4 - ビニルベンジル) - 3, 3' - メチレンビス (5 - ヒドロキシ - 1 H - 1, 2, 4 - トリアゾール) 、
- 1 - (4 - ビニルベンジル) - 3, 3' - メチレンビス (5 - アミノ - 1 H - 1, 2, 4 - トリアゾール) 、
- 1 - (4 - ビニルベンジル) - 3, 3' - エチレンビス (5 - エチル - 1 H - 1, 2, 4 - トリアゾール) 、
- 1 - (4 - ビニルベンジル) - 3, 3' - エチレンビス (5 - アミノ - 1 H - 1, 2, 4 - トリアゾール) 、
- 1 - (4 - ビニルベンジル) - 3, 3' - テトラメチレンビス (5 - ベンジル - 1, 2, 4 - 1 H - トリアゾール) 、
- 1 - (4 - ビニルベンジル) - 3, 3' - テトラメチレンビス (5 - ブチルチオ - 1 H - 1, 2, 4 - トリアゾール) 、
- 1 - (4 - ビニルベンジル) - 3, 3' - テトラメチレンビス (5 - アミノ - 1 H - 1, 2, 4 - トリアゾール) 、

- 1 - (4 - ビニルベンジル) - 3, 3' - ペンタメチレンビス (1 H - 1, 2, 4 - トリアゾール) 、
- 1 - (4 - ビニルベンジル) - 3, 3' - ペンタメチレンビス (5 - アミノ - 1 H - 1, 2, 4 - トリアゾール) 、
- 1 - (4 - ビニルベンジル) - 3, 3' - ヘキサメチレンビス (5 - アミノ - 1 H - 1, 2, 4 - トリアゾール) 、
- 1 - (4 - ビニルベンジル) - 3, 3' - オクタメチレンビス (5 - アミノ - 1 H - 1, 2, 4 - トリアゾール) 、
- 1 - (4 - ビニルベンジル) - 3, 3' - ノナメチレンビス (5 - アミノ - 1 H - 1, 2, 4 - トリアゾール) 、
- 1 - (4 - ビニルベンジル) - 3, 3' - デカメチレンビス (5 - アミノ - 1 H - 1, 2, 4 - トリアゾール) 、
- 1 - (4 - ビニルベンジル) - 3, 3' - ウンデカメチレンビス (5 - アミノ - 1 H - 1, 2, 4 - トリアゾール) 、
- 1 - (4 - ビニルベンジル) - 3, 3' - ドデカメチレンビス (5 - アミノ - 1 H - 1, 2, 4 - トリアゾール) 、
- 3, 3' - (1, 4 - フェニレン) ビス [1 - (4 - ビニルベンジル) - 1 H - 1, 2, 4 - トリアゾール] 、
- 3, 3' - (1, 2 - フェニレン) ビス [1 - (4 - ビニルベンジル) - 5 - メチル - 1 H - 1, 2, 4 - トリアゾール] 、
- 3, 3' - (1, 3 - フェニレン) ビス {1 - (4 - ビニルベンジル) - 5 - ブチル - 1 H - 1, 2, 4 - トリアゾール} 、
- 3, 3' - (1, 4 - フェニレン) ビス [1 - (4 - ビニルベンジル) - 5 - アミノ - 1 H - 1, 2, 4 - トリアゾール] 、
- 3, 3' - (1, 4 - フェニレン) ビス [1 - (4 - ビニルベンジル) - 5 - エチルチオ - 1 H - 1, 2, 4 - トリアゾール] 、
- 3, 3' - イミノビス [1 - (4 - ビニルベンジル) - 5 - エチル - 1 H - 1, 2, 4 - トリアゾール] 、

- 3, 3' -イミノビス [1 - (4 - ビニルベンジル) - 5 - p - トリル - 1 H - 1, 2, 4 - トリアゾール]、
- 3, 3' -イミノビス [1 - (4 - ビニルベンジル) - 5 - アミノ - 1 H - 1, 2, 4 - トリアゾール]、
- 3, 3' -イミノビス [1 - (4 - ビニルベンジル) - 5 - イソプロピル - 1 H - 1, 2, 4 - トリアゾール]、
- 3, 3' -ビス [1 - (4 - ビニルベンジル) - 1 H - 1, 2, 4 - トリアゾール]、
- 3, 3' -ビス [1 - (4 - ビニルベンジル) - 5 - ペンチル - 1 H - 1, 2, 4 - トリアゾール]、
- 3, 3' -ビス [1 - (4 - ビニルベンジル) - 5 - アミノ - 1 H - 1, 2, 4 - トリアゾール]、
- 3, 3' -ビス [1 - (4 - ビニルベンジル) - 5 - フェニル - 1 H - 1, 2, 4 - トリアゾール]、
- 1, 1' -ビス (4 - ビニルベンジル) - 5 - アミノ - 5' - メチル - 3, 3' - ビ - 1 H - 1, 2, 4 - トリアゾール、
- 3, 3' -メチレンビス [1 - (4 - ビニルベンジル) - 5 - イソブチル - 1 H - 1, 2, 4 - トリアゾール]、
- 3, 3' -メチレンビス [1 - (4 - ビニルベンジル) - 5 - ヒドロキシ - 1 H - 1, 2, 4 - トリアゾール]、
- 3, 3' -メチレンビス [1 - (4 - ビニルベンジル) - 5 - アミノ - 1 H - 1, 2, 4 - トリアゾール]、
- 3, 3' -エチレンビス [1 - (4 - ビニルベンジル) - 5 - エチル - 1 H - 1, 2, 4 - トリアゾール]、
- 3, 3' -エチレンビス [1 - (4 - ビニルベンジル) - 5 - アミノ - 1 H - 1, 2, 4 - トリアゾール]、
- 3, 3' -テトラメチレンビス [1 - (4 - ビニルベンジル) - 5 - ベンジル - 1, 2, 4 - 1 H - トリアゾール]、

3, 3' -テトラメチレンビス [1 - (4 - ビニルベンジル) - 5 - ブチルチオ - 1 H - 1, 2, 4 - トリアゾール]、
3, 3' -テトラメチレンビス [1 - (4 - ビニルベンジル) - 5 - アミノ - 1 H - 1, 2, 4 - トリアゾール]、
3, 3' -ペンタメチレンビス [1 - (4 - ビニルベンジル) - 1 H - 1, 2, 4 - トリアゾール]、
3, 3' -ペンタメチレンビス [1 - (4 - ビニルベンジル) - 5 - アミノ - 1 H - 1, 2, 4 - トリアゾール]、
3, 3' -ヘキサメチレンビス [1 - (4 - ビニルベンジル) - 5 - アミノ - 1 H - 1, 2, 4 - トリアゾール]、
3, 3' -オクタメチレンビス [1 - (4 - ビニルベンジル) - 5 - アミノ - 1 H - 1, 2, 4 - トリアゾール]、
3, 3' -ノナメチレンビス [1 - (4 - ビニルベンジル) - 5 - アミノ - 1 H - 1, 2, 4 - トリアゾール]、
3, 3' -デカメチレンビス [1 - (4 - ビニルベンジル) - 5 - アミノ - 1 H - 1, 2, 4 - トリアゾール]、
3, 3' -ウンデカメチレンビス [1 - (4 - ビニルベンジル) - 5 - アミノ - 1 H - 1, 2, 4 - トリアゾール]、
3, 3' -ドデカメチレンビス [1 - (4 - ビニルベンジル) - 5 - アミノ - 1 H - 1, 2, 4 - トリアゾール] 等が挙げられる。

[0037] 化学式 (I-2) で示されるアゾール化合物の具体例としては、例えば、

1 - (4 - ビニルベンジル) - 1 H - テトラゾール、
5 - メチル - 1 - (4 - ビニルベンジル) - 1 H - テトラゾール、
5 - エチル - 1 - (4 - ビニルベンジル) - 1 H - テトラゾール、
5 - プロピル - 1 - (4 - ビニルベンジル) - 1 H - テトラゾール、
5 - イソプロピル - 1 - (4 - ビニルベンジル) - 1 H - テトラゾール、
5 - ブチル - 1 - (4 - ビニルベンジル) - 1 H - テトラゾール、
5 - t e r t - ブチル - 1 - (4 - ビニルベンジル) - 1 H - テトラゾール

、

5-ペンチル-1-(4-ビニルベンジル)-1H-テトラゾール、
5-ヘキシル-1-(4-ビニルベンジル)-1H-テトラゾール、
5-オクチル-1-(4-ビニルベンジル)-1H-テトラゾール、
5-デシル-1-(4-ビニルベンジル)-1H-テトラゾール、
5-ドデシル-1-(4-ビニルベンジル)-1H-テトラゾール、
5-フェニル-1-(4-ビニルベンジル)-1H-テトラゾール、
5-(p-トリル)-1-(4-ビニルベンジル)-1H-テトラゾール、
5-ベンジル-1-(4-ビニルベンジル)-1H-テトラゾール、
5-フェネチル-1-(4-ビニルベンジル)-1H-テトラゾール、
5-メチルチオ-1-(4-ビニルベンジル)-1H-テトラゾール、
5-エチルチオ-1-(4-ビニルベンジル)-1H-テトラゾール、
5-プロピルチオ-1-(4-ビニルベンジル)-1H-テトラゾール、
5-イソプロピルチオ-1-(4-ビニルベンジル)-1H-テトラゾール

、

5-ブチルチオ-1-(4-ビニルベンジル)-1H-テトラゾール、
5-ペンチルチオ-1-(4-ビニルベンジル)-1H-テトラゾール、
5-ヘキシルチオ-1-(4-ビニルベンジル)-1H-テトラゾール、
5-アミノ-1-(2-ビニルベンジル)-1H-テトラゾール、
5-アミノ-1-(3-ビニルベンジル)-1H-テトラゾール、
5-アミノ-1-(4-ビニルベンジル)-1H-テトラゾール、
5-メチルアミノ-1-(4-ビニルベンジル)-1H-テトラゾール、
5-エチルアミノ-1-(4-ビニルベンジル)-1H-テトラゾール、
5-フェニルアミノ-1-(4-ビニルベンジル)-1H-テトラゾール、
5-アセトアミド-1-(4-ビニルベンジル)-1H-テトラゾール、
5-グアニジノ-1-(4-ビニルベンジル)-1H-テトラゾール、
5-ヒドロキシ-1-(4-ビニルベンジル)-1H-テトラゾール、
5-シアノ-1-(4-ビニルベンジル)-1H-テトラゾール、

5-ブromo-1-(4-ビニルベンジル)-1H-テトラゾール、
1-(4-ビニルベンジル)-5, 5'-(1, 4-フェニレン)ビス(1H-テトラゾール)、
1-(4-ビニルベンジル)-5, 5'-(1, 2-フェニレン)ビス(1H-テトラゾール)、
1-(4-ビニルベンジル)-5, 5'-(1, 3-フェニレン)ビス(1H-テトラゾール)、
1-(4-ビニルベンジル)-5, 5'-イミノビス(1H-テトラゾール)、
1-(4-ビニルベンジル)-5, 5'-ビ-1H-テトラゾール、
1-(4-ビニルベンジル)-5, 5'-メチレンビス(1H-テトラゾール)、
1-(4-ビニルベンジル)-5, 5'-エチレンビス(1H-テトラゾール)、
1-(4-ビニルベンジル)-5, 5'-テトラメチレンビス(1H-テトラゾール)、
1-(4-ビニルベンジル)-5, 5'-ペンタメチレンビス(1H-テトラゾール)、
1-(4-ビニルベンジル)-5, 5'-ヘキサメチレンビス(1H-テトラゾール)、
1-(4-ビニルベンジル)-5, 5'-オクタメチレンビス(1H-テトラゾール)、
1-(4-ビニルベンジル)-5, 5'-ノナメチレンビス(1H-テトラゾール)、
1-(4-ビニルベンジル)-5, 5'-デカメチレンビス(1H-テトラゾール)、
1-(4-ビニルベンジル)-5, 5'-ウンデカメチレンビス(1H-テトラゾール)、

1 - (4 - ビニルベンジル) - 5, 5' - ドデカメチレンビス (1 H - テトラゾール) 、
5, 5' - (1, 4 - フェニレン) ビス [1 - (4 - ビニルベンジル) - 1 H - テトラゾール] 、
5, 5' - (1, 2 - フェニレン) ビス [1 - (4 - ビニルベンジル) - 1 H - テトラゾール] 、
5, 5' - (1, 3 - フェニレン) ビス [1 - (4 - ビニルベンジル) - 1 H - テトラゾール] 、
5, 5' - イミノビス [1 - (4 - ビニルベンジル) - 1 H - テトラゾール] 、
5, 5' - ビス [1 - (4 - ビニルベンジル) - 1 H - テトラゾール] 、
1 - (4 - ビニルベンジル) - 2' - (4 - ビニルベンジル) - ビー 1, 2, 3, 4 - テトラゾール、
5, 5' - メチレンビス [1 - (4 - ビニルベンジル) - 1 H - テトラゾール] 、
5, 5' - エチレンビス [1 - (4 - ビニルベンジル) - 1 H - テトラゾール] 、
5, 5' - テトラメチレンビス [1 - (4 - ビニルベンジル) - 1 H - テトラゾール] 、
5, 5' - ペンタメチレンビス [1 - (4 - ビニルベンジル) - 1 H - テトラゾール] 、
5, 5' - ヘキサメチレンビス [1 - (4 - ビニルベンジル) - 1 H - テトラゾール] 、
5, 5' - オクタメチレンビス [1 - (4 - ビニルベンジル) - 1 H - テトラゾール] 、
5, 5' - ノナメチレンビス [1 - (4 - ビニルベンジル) - 1 H - テトラゾール] 、
5, 5' - デカメチレンビス [1 - (4 - ビニルベンジル) - 1 H - テトラ

ゾール]、

5, 5' -ウンデカメチレンビス [1 - (4 -ビニルベンジル) - 1 H -テトラゾール]、

5, 5' -ドデカメチレンビス [1 - (4 -ビニルベンジル) - 1 H -テトラゾール] 等が挙げられる。

[0038] 化学式 (I-3) で示されるアゾール化合物の具体例としては、例えば、

2 - (4 -ビニルベンジル) - 2 H -テトラゾール、

5 -メチル- 2 - (4 -ビニルベンジル) - 2 H -テトラゾール、

5 -エチル- 2 - (4 -ビニルベンジル) - 2 H -テトラゾール、

5 -プロピル- 2 - (4 -ビニルベンジル) - 2 H -テトラゾール、

5 -イソプロピル- 2 - (4 -ビニルベンジル) - 2 H -テトラゾール、

5 -ブチル- 2 - (4 -ビニルベンジル) - 2 H -テトラゾール、

5 - t e r t -ブチル- 2 - (4 -ビニルベンジル) - 2 H -テトラゾール

、

5 -ペンチル- 2 - (4 -ビニルベンジル) - 2 H -テトラゾール、

5 -ヘキシル- 2 - (4 -ビニルベンジル) - 2 H -テトラゾール、

5 -オクチル- 2 - (4 -ビニルベンジル) - 2 H -テトラゾール、

5 -デシル- 2 - (4 -ビニルベンジル) - 2 H -テトラゾール、

5 -ドデシル- 2 - (4 -ビニルベンジル) - 2 H -テトラゾール、

5 -フェニル- 2 - (4 -ビニルベンジル) - 2 H -テトラゾール、

5 - (p -トリル) - 2 - (4 -ビニルベンジル) - 2 H -テトラゾール、

5 -ベンジル- 2 - (4 -ビニルベンジル) - 2 H -テトラゾール、

5 -フェネチル- 2 - (4 -ビニルベンジル) - 2 H -テトラゾール、

5 -メチルチオ- 2 - (4 -ビニルベンジル) - 2 H -テトラゾール、

5 -エチルチオ- 2 - (4 -ビニルベンジル) - 2 H -テトラゾール、

5 -プロピルチオ- 2 - (4 -ビニルベンジル) - 2 H -テトラゾール、

5 -イソプロピルチオ- 2 - (4 -ビニルベンジル) - 2 H -テトラゾール

、

5-ブチルチオ-2-(4-ビニルベンジル)-2H-テトラゾール、
5-ペンチルチオ-2-(4-ビニルベンジル)-2H-テトラゾール、
5-ヘキシルチオ-2-(4-ビニルベンジル)-2H-テトラゾール、
5-アミノ-2-(2-ビニルベンジル)-2H-テトラゾール、
5-アミノ-2-(3-ビニルベンジル)-2H-テトラゾール、
5-アミノ-2-(4-ビニルベンジル)-2H-テトラゾール、
5-メチルアミノ-2-(4-ビニルベンジル)-2H-テトラゾール、
5-エチルアミノ-2-(4-ビニルベンジル)-2H-テトラゾール、
5-フェニルアミノ-2-(4-ビニルベンジル)-2H-テトラゾール、
5-アセトアミド-2-(4-ビニルベンジル)-2H-テトラゾール、
5-グアニジノ-2-(4-ビニルベンジル)-2H-テトラゾール、
5-ヒドロキシ-2-(4-ビニルベンジル)-2H-テトラゾール、
5-シアノ-2-(4-ビニルベンジル)-2H-テトラゾール、
5-ブロモ-2-(4-ビニルベンジル)-2H-テトラゾール、
2-(4-ビニルベンジル)-5, 5'-(1, 4-フェニレン)ビス(2H-テトラゾール)、
2-(4-ビニルベンジル)-5, 5'-(1, 2-フェニレン)ビス(2H-テトラゾール)、
2-(4-ビニルベンジル)-5, 5'-(1, 3-フェニレン)ビス(2H-テトラゾール)、
2-(4-ビニルベンジル)-5, 5'-イミノビス(2H-テトラゾール)、
2-(4-ビニルベンジル)-5, 5'-ビ-2H-テトラゾール、
2-(4-ビニルベンジル)-5, 5'-メチレンビス(2H-テトラゾール)、
2-(4-ビニルベンジル)-5, 5'-エチレンビス(2H-テトラゾール)、
2-(4-ビニルベンジル)-5, 5'-テトラメチレンビス(2H-テト

ラゾール)、

2-(4-ビニルベンジル)-5, 5'-ペンタメチレンビス(2 H-テトラゾール)、

2-(4-ビニルベンジル)-5, 5'-ヘキサメチレンビス(2 H-テトラゾール)、

2-(4-ビニルベンジル)-5, 5'-オクタメチレンビス(2 H-テトラゾール)、

2-(4-ビニルベンジル)-5, 5'-ノナメチレンビス(2 H-テトラゾール)、

2-(4-ビニルベンジル)-5, 5'-デカメチレンビス(2 H-テトラゾール)、

2-(4-ビニルベンジル)-5, 5'-ウンデカメチレンビス(2 H-テトラゾール)、

2-(4-ビニルベンジル)-5, 5'-ドデカメチレンビス(2 H-テトラゾール)、

5, 5'-(1, 4-フェニレン)ビス[2-(4-ビニルベンジル)-2 H-テトラゾール]、

5, 5'-(1, 2-フェニレン)ビス[2-(4-ビニルベンジル)-2 H-テトラゾール]、

5, 5'-(1, 3-フェニレン)ビス[2-(4-ビニルベンジル)-2 H-テトラゾール]、

5, 5'-イミノビス[2-(4-ビニルベンジル)-2 H-テトラゾール]、

5, 5'-ビス[2-(4-ビニルベンジル)-2 H-テトラゾール]、

5, 5'-メチレンビス[2-(4-ビニルベンジル)-2 H-テトラゾール]、

5, 5'-エチレンビス[2-(4-ビニルベンジル)-2 H-テトラゾール]、

5, 5' -テトラメチレンビス [2 - (4 - ビニルベンジル) - 2 H - テトラゾール] 、

5, 5' -ペンタメチレンビス [2 - (4 - ビニルベンジル) - 2 H - テトラゾール] 、

5, 5' -ヘキサメチレンビス [2 - (4 - ビニルベンジル) - 2 H - テトラゾール] 、

5, 5' -オクタメチレンビス [2 - (4 - ビニルベンジル) - 2 H - テトラゾール] 、

5, 5' -ノナメチレンビス [2 - (4 - ビニルベンジル) - 2 H - テトラゾール] 、

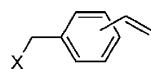
5, 5' -デカメチレンビス [2 - (4 - ビニルベンジル) - 2 H - テトラゾール] 、

5, 5' -ウンデカメチレンビス [2 - (4 - ビニルベンジル) - 2 H - テトラゾール] 、

5, 5' -ドデカメチレンビス [2 - (4 - ビニルベンジル) - 2 H - テトラゾール] 等が挙げられる。

[0039] 本発明のアゾール化合物は、化学式 (II) で示されるスチリル化合物と、化学式 (III) で示されるトリアゾール化合物または化学式 (IV) で示されるテトラゾール化合物とを反応させることにより得られる。

[0040] [化11]

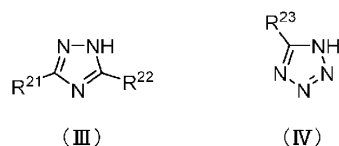


(II)

[0041] (式 (II) 中、X は、フッ素原子、塩素原子、臭素原子またはヨウ素原子を表す。)

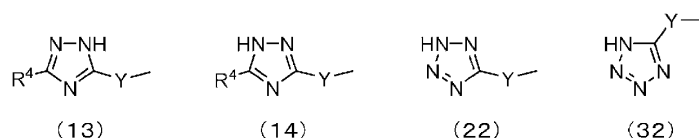
[0042]

[化12]



[0043] (式 (III) 中、 R^{21} および R^{22} は、同一または異なって、水素原子、炭素数 1 ～ 12 の直鎖状もしくは分岐鎖状のアルキル基、アリール基、アラルキル基、置換されていてもよいアミノ基、ヒドロキシ基、シアノ基、ハロゲン原子、炭素数 1 ～ 6 のアルキルチオ基、式 (13) で示される基または式 (14) で示される基を表す。式 (IV) 中、 R^{23} は、水素原子、炭素数 1 ～ 12 の直鎖状もしくは分岐鎖状のアルキル基、アリール基、アラルキル基、置換されていてもよいアミノ基、ヒドロキシ基、シアノ基、ハロゲン原子、炭素数 1 ～ 6 のアルキルチオ基、式 (22) で示される基または式 (32) で示される基を表す。但し、 R^{21} および R^{22} が同時に水素原子である場合、 R^{21} および R^{22} が同時に式 (13) で示される基である場合、 R^{21} および R^{22} が同時に式 (14) で示される基である場合、 R^{21} および R^{22} が式 (13) と式 (14) で示される基である場合を除く。)

[0044] [化13]



[0045] (式 (13) および式 (14) 中、 R^4 は、水素原子、炭素数 1 ～ 12 の直鎖状もしくは分岐鎖状のアルキル基、アリール基、アラルキル基、置換されていてもよいアミノ基、ヒドロキシ基、シアノ基、ハロゲン原子または炭素数 1 ～ 6 のアルキルチオ基を表し、式 (13)、式 (14)、式 (22) および式 (32) 中、Y は、フェニレン基、 $-NH-$ または $-(CH_2)_n-$ で示される基を表し、ここで、n は、0 ～ 12 の整数を表す。)

[0046] 式 (II) における X は、フッ素原子、塩素原子、臭素原子またはヨウ素原

子であり、反応性および原料の入手容易性の観点から、塩素原子または臭素原子が好ましい。

化学式 (III)、(IV) において、 R^{21} 、 R^{22} および R^{23} で示される炭素数 1 ～ 12 の直鎖状のアルキル基、炭素数 1 ～ 12 の分岐鎖状のアルキル基、アリール基、アラルキル基、置換されていてもよいアミノ基、ハロゲン原子、炭素数 1 ～ 6 のアルキルチオ基の具体例は化学式 (I) で示したものと同様であり、好ましいものも同様である。

[0047] 化学式 (II) で示されるスチリル化合物としては、例えば、

2-ビニルベンジルクロリド、
3-ビニルベンジルクロリド、
4-ビニルベンジルクロリド、
2-ビニルベンジルブロマイド、
3-ビニルベンジルブロマイド、
4-ビニルベンジルブロマイド、
2-ビニルベンジルアイオダイド、
3-ビニルベンジルアイオダイドおよび
4-ビニルベンジルアイオダイド等が挙げられる。

[0048] 例示したこれらのスチリル化合物は、市販の試薬を購入して使用できるほか、例えば、国際公開第 1998/028264 号明細書記載の合成方法に準拠して合成することができる。

[0049] 化学式 (III) で示されるトリアゾール化合物としては、例えば、

3-メチル-1H-1, 2, 4-トリアゾール、
3-エチル-1H-1, 2, 4-トリアゾール、
3-プロピル-1H-1, 2, 4-トリアゾール、
3-イソプロピル-1H-1, 2, 4-トリアゾール、
3-ブチル-1H-1, 2, 4-トリアゾール、
3-ヘキシル-1H-1, 2, 4-トリアゾール、
3-オクチル-1H-1, 2, 4-トリアゾール、

3-デシル-1H-1, 2, 4-トリアゾール、
3-ドデシル-1H-1, 2, 4-トリアゾール、
3, 5-ジメチル-1H-1, 2, 4-トリアゾール、
3, 5-ジイソプロピル-1H-1, 2, 4-トリアゾール、
3-エチル-5-オクチル-1H-1, 2, 4-トリアゾール、
5-メチル-3-オクチル-1H-1, 2, 4-トリアゾール、
3-フェニル-1H-1, 2, 4-トリアゾール、
3-メチル-5-フェニル-1H-1, 2, 4-トリアゾール、
3-エチル-5-フェニル-1H-1, 2, 4-トリアゾール、
3, 5-ジフェニル-1H-1, 2, 4-トリアゾール、
3-ベンジル-1H-1, 2, 4-トリアゾール、
5-プロピル-3-ベンジル-1H-1, 2, 4-トリアゾール、
3-ベンジル-5-フェニル-1H-1, 2, 4-トリアゾール、
3-アミノ-1H-1, 2, 4-トリアゾール、
3-アミノ-5-エチル-1H-1, 2, 4-トリアゾール、
3-アミノ-5-フェニル-1H-1, 2, 4-トリアゾール、
3-アミノ-5-ベンジル-1H-1, 2, 4-トリアゾール、
3, 5-ジアミノ-1H-1, 2, 4-トリアゾール、
3-メチルチオ-1H-1, 2, 4-トリアゾール、
3-エチルチオ-5-イソプロピル-1H-1, 2, 4-トリアゾール、
3-イソプロピルチオ-1H-1, 2, 4-トリアゾール、
3-ヘキシルチオ-1H-1, 2, 4-トリアゾール、
3, 5-ビス(メチルチオ)-1H-1, 2, 4-トリアゾール、
3-メチルチオ-5-ヘキシルチオ-1H-1, 2, 4-トリアゾール、
3-アミノ-5-メチルチオ-1H-1, 2, 4-トリアゾール、
3-アミノ-5-イソプロピルチオ-1H-1, 2, 4-トリアゾール、
3-アミノ-5-ヘキシルチオ-1H-1, 2, 4-トリアゾール、
3-メチルアミノ-1H-1, 2, 4-トリアゾール、

3, 5-ビス(メチルアミノ)-1H-1, 2, 4-トリアゾール、
3-アミノ-5-メチルアミノ-1H-1, 2, 4-トリアゾール、
3-メチルアミノ-5-エチル-1H-1, 2, 4-トリアゾール、
3-メチルアミノ-5-フェニル-1H-1, 2, 4-トリアゾール、
3-メチルアミノ-5-ベンジル-1H-1, 2, 4-トリアゾール、
3-フェニルアミノ-1H-1, 2, 4-トリアゾール、
3, 5-ビス(フェニルアミノ)-1H-1, 2, 4-トリアゾール、
3-アミノ-5-フェニルアミノ-1H-1, 2, 4-トリアゾール、
3-フェニルアミノ-5-エチル-1H-1, 2, 4-トリアゾール、
3-フェニルアミノ-5-フェニル-1H-1, 2, 4-トリアゾール、
3-フェニルアミノ-5-ベンジル-1H-1, 2, 4-トリアゾール、
3-アセトアミド-1H-1, 2, 4-トリアゾール、
3, 5-ビス(アセトアミド)-1H-1, 2, 4-トリアゾール、
3-アミノ-5-アセトアミド-1H-1, 2, 4-トリアゾール、
3-アセトアミド-5-エチル-1H-1, 2, 4-トリアゾール、
3-アセトアミド-5-フェニル-1H-1, 2, 4-トリアゾール、
3-アセトアミド-5-ベンジル-1H-1, 2, 4-トリアゾール、
3-グアニジノ-1H-1, 2, 4-トリアゾール、
3, 5-ビス(グアニジノ)-1H-1, 2, 4-トリアゾール、
3-アミノ-5-グアニジノ-1H-1, 2, 4-トリアゾール、
3-グアニジノ-5-エチル-1H-1, 2, 4-トリアゾール、
3-グアニジノ-5-フェニル-1H-1, 2, 4-トリアゾール、
3-グアニジノ-5-ベンジル-1H-1, 2, 4-トリアゾール、
3-ヒドロキシ-1H-1, 2, 4-トリアゾール、
3-ヒドロキシ-5-エチル-1H-1, 2, 4-トリアゾール、
3-ヒドロキシ-5-フェニル-1H-1, 2, 4-トリアゾール、
3-ヒドロキシ-5-ベンジル-1H-1, 2, 4-トリアゾール、
3-シアノ-1H-1, 2, 4-トリアゾール、

3-シアノ-5-エチル-1H-1, 2, 4-トリアゾール、
3-シアノ-5-フェニル-1H-1, 2, 4-トリアゾール、
3-シアノ-5-ベンジル-1H-1, 2, 4-トリアゾール、
3-クロロ-1H-1, 2, 4-トリアゾール、
3-クロロ-5-エチル-1H-1, 2, 4-トリアゾール、
3-ブロモ-5-フェニル-1H-1, 2, 4-トリアゾール、
3-ヨード-5-ベンジル-1H-1, 2, 4-トリアゾール、
3, 3'-(1, 4-フェニレン)ビス(1H-1, 2, 4-トリアゾール)
)、
3, 3'-(1, 4-フェニレン)ビス(5-メチル-1H-1, 2, 4-
トリアゾール)、
3, 3'-(1, 2-フェニレン)ビス(5-エチル-1H-1, 2, 4-
トリアゾール)、
3, 3'-(1, 4-フェニレン)ビス(5-イソプロピル-1H-1, 2
, 4-トリアゾール)、
3, 3'-(1, 3-フェニレン)ビス(5-ブチル-1H-1, 2, 4-
トリアゾール)、
3, 3'-(1, 4-フェニレン)ビス(5-フェニル-1H-1, 2, 4-
トリアゾール)、
3, 3'-(1, 4-フェニレン)ビス(5-アミノ-1H-1, 2, 4-
トリアゾール)、
3, 3'-(1, 4-フェニレン)ビス(5-ヒドロキシ-1H-1, 2,
4-トリアゾール)、
3, 3'-(1, 4-フェニレン)ビス(5-エチルチオ-1H-1, 2,
4-トリアゾール)、
5-アミノ-3, 3'-(1, 4-フェニレン)ビス(1H-1, 2, 4-
トリアゾール)、
3, 3'-イミノビス(1H-1, 2, 4-トリアゾール)、

3, 3' -イミノビス (5-メチル-1H-1, 2, 4-トリアゾール)、
3, 3' -イミノビス (5-ヘキシル-1H-1, 2, 4-トリアゾール)
、
3, 3' -イミノビス (5-フェニル-1H-1, 2, 4-トリアゾール)
、
3, 3' -イミノビス (5-ベンジル-1H-1, 2, 4-トリアゾール)
、
3, 3' -イミノビス (5-アミノ-1H-1, 2, 4-トリアゾール)、
3, 3' -イミノビス (5-ヒドロキシ-1H-1, 2, 4-トリアゾール)
)、
3, 3' -イミノビス (5-メチルチオ-1H-1, 2, 4-トリアゾール)
)、
5-アミノ-3, 3' -イミノビス (1H-1, 2, 4-トリアゾール)、
3, 3' -ビ-1H-1, 2, 4-トリアゾール、
3, 3' -ビス (5-メチル-1H-1, 2, 4-トリアゾール)、
3, 3' -ビス (5-エチル-1H-1, 2, 4-トリアゾール)、
3, 3' -ビス (5-ペンチル-1H-1, 2, 4-トリアゾール)、
3, 3' -ビス (5-p-トリル-1H-1, 2, 4-トリアゾール)、
3, 3' -ビス (5-ベンジル-1H-1, 2, 4-トリアゾール)、
3, 3' -ビス (5-アミノ-1H-1, 2, 4-トリアゾール)、
3, 3' -ビス (5-ヒドロキシ-1H-1, 2, 4-トリアゾール)、
3, 3' -ビス (5-ヘキシルチオ-1H-1, 2, 4-トリアゾール)、
5-アミノ-5' -メチル-3, 3' -ビ-1H-1, 2, 4-トリアゾール、
3, 3' -メチレンビス (1H-1, 2, 4-トリアゾール)、
3, 3' -メチレンビス (5-メチル-1H-1, 2, 4-トリアゾール)
、
3, 3' -メチレンビス (5-イソブチル-1H-1, 2, 4-トリアゾール)

ル)、
3, 3' -メチレンビス (5-フェニル-1 H-1, 2, 4-トリアゾール)
)、
3, 3' -メチレンビス (5-フェネチル-1 H-1, 2, 4-トリアゾール)
)、
3, 3' -メチレンビス (5-アミノ-1 H-1, 2, 4-トリアゾール)
、
3, 3' -メチレンビス (5-ヒドロキシ-1 H-1, 2, 4-トリアゾール)
)、
3, 3' -メチレンビス (5-メチルチオ-1 H-1, 2, 4-トリアゾール)
)、
5-アミノ-5' -エチル-3, 3' -メチレンビス (1 H-1, 2, 4-トリアゾール)、
3, 3' -エチレンビス (1 H-1, 2, 4-トリアゾール)、
3, 3' -エチレンビス (5-プロピル-1 H-1, 2, 4-トリアゾール)
)、
3, 3' -エチレンビス (5-ヘキシル-1 H-1, 2, 4-トリアゾール)
)、
3, 3' -エチレンビス (5-m-トリル-1 H-1, 2, 4-トリアゾール)
)、
3, 3' -エチレンビス (5-アミノ-1 H-1, 2, 4-トリアゾール)
、
3, 3' -エチレンビス (5-ヒドロキシ-1 H-1, 2, 4-トリアゾール)
)、
3, 3' -エチレンビス (5-イソプロピルチオ-1 H-1, 2, 4-トリアゾール)、
5-アミノ-3, 3' -エチレンビス (1 H-1, 2, 4-トリアゾール)
、

3, 3' -トリメチレンビス (1 H-1, 2, 4-トリアゾール)、
5-メチル-3, 3' -トリメチレンビス (1 H-1, 2, 4-トリアゾール)、
3, 3' -トリメチレンビス (5-ブチル-1 H-1, 2, 4-トリアゾール)、
3, 3' -トリメチレンビス (5-フェニル-1 H-1, 2, 4-トリアゾール)、
3, 3' -トリメチレンビス (5-アミノ-1 H-1, 2, 4-トリアゾール)、
3, 3' -トリメチレンビス (5-プロピルチオ-1 H-1, 2, 4-トリアゾール)、
5-アミノ-5' -ベンジル-3, 3' -トリメチレンビス (1 H-1, 2, 4-トリアゾール)、
3, 3' -テトラメチレンビス (1 H-1, 2, 4-トリアゾール)、
3, 3' -テトラメチレンビス (5-エチル-1 H-1, 2, 4-トリアゾール)、
3, 3' -テトラメチレンビス (5-ヘキシル-1 H-1, 2, 4-トリアゾール)、
3, 3' -テトラメチレンビス (5-ベンジル-1 H-1, 2, 4-トリアゾール)、
3, 3' -テトラメチレンビス (5-アミノ-1 H-1, 2, 4-トリアゾール)、
3, 3' -テトラメチレンビス (5-ヒドロキシ-1 H-1, 2, 4-トリアゾール)、
3, 3' -テトラメチレンビス (5-ブチルチオ-1 H-1, 2, 4-トリアゾール)、
5-アミノ-3, 3' -テトラメチレンビス (1 H-1, 2, 4-トリアゾール)、

- 3, 3' -ペンタメチレンビス (1 H-1, 2, 4-トリアゾール)、
- 3, 3' -ペンタメチレンビス (5-プロピル-1 H-1, 2, 4-トリアゾール)、
- 3, 3' -ペンタメチレンビス (5-アミノ-1 H-1, 2, 4-トリアゾール)、
- 3, 3' -ペンタメチレンビス (5-ヒドロキシ-1 H-1, 2, 4-トリアゾール)、
- 3, 3' -ペンタメチレンビス (5-ペンチルチオ-1 H-1, 2, 4-トリアゾール)、
- 5-アミノ-5' -フェニル-3, 3' -ペンタメチレンビス (1 H-1, 2, 4-トリアゾール)、
- 3, 3' -ヘキサメチレンビス (1 H-1, 2, 4-トリアゾール)、
- 3, 3' -ヘキサメチレンビス (5-ペンチル-1 H-1, 2, 4-トリアゾール)、
- 3, 3' -ヘキサメチレンビス (5-アミノ-1 H-1, 2, 4-トリアゾール)、
- 5-ヒドロキシ-3, 3' -ヘキサメチレンビス (1 H-1, 2, 4-トリアゾール)、
- 5-フェニル-3, 3' -ヘキサメチレンビス (1 H-1, 2, 4-トリアゾール)、
- 5-アミノ-5' -メチルチオ-3, 3' -ヘキサメチレンビス (1 H-1, 2, 4-トリアゾール)、
- 3, 3' -ヘプタメチレンビス (1 H-1, 2, 4-トリアゾール)、
- 3, 3' -ヘプタメチレンビス (5-tert-ブチル-1 H-1, 2, 4-トリアゾール)、
- 3, 3' -ヘプタメチレンビス (5-フェニル-1 H-1, 2, 4-トリアゾール)、
- 3, 3' -ヘプタメチレンビス (5-アミノ-1 H-1, 2, 4-トリアゾール)

ール)、

5-アミノ-5'-ヒドロキシ-3, 3'-ヘプタメチレンビス(1H-1, 2, 4-トリアゾール)、

3, 3'-オクタメチレンビス(1H-1, 2, 4-トリアゾール)、

3, 3'-オクタメチレンビス(5-イソブチル-1H-1, 2, 4-トリアゾール)、

3, 3'-オクタメチレンビス(5-アミノ-1H-1, 2, 4-トリアゾール)、

3, 3'-オクタメチレンビス(5-ヒドロキシ-1H-1, 2, 4-トリアゾール)、

5-プロピルチオ-3, 3'-オクタメチレンビス(1H-1, 2, 4-トリアゾール)、

3, 3'-ノナメチレンビス(1H-1, 2, 4-トリアゾール)、

3, 3'-ノナメチレンビス(5-イソペンチル-1H-1, 2, 4-トリアゾール)、

5-フェニル-3, 3'-ノナメチレンビス(1H-1, 2, 4-トリアゾール)、

3, 3'-ノナメチレンビス(5-アミノ-1H-1, 2, 4-トリアゾール)、

3, 3'-ノナメチレンビス(5-メチルチオ-1H-1, 2, 4-トリアゾール)、

3, 3'-デカメチレンビス(1H-1, 2, 4-トリアゾール)、

3, 3'-デカメチレンビス(5-メチル-1H-1, 2, 4-トリアゾール)、

3, 3'-デカメチレンビス(5-アミノ-1H-1, 2, 4-トリアゾール)、

5-エチル-3, 3'-デカメチレンビス(1H-1, 2, 4-トリアゾール)、

3, 3' -ウンデカメチレンビス (1 H-1, 2, 4-トリアゾール)、
3, 3' -ウンデカメチレンビス (5-プロピル-1 H-1, 2, 4-トリアゾール)、
3, 3' -ウンデカメチレンビス (5-アミノ-1 H-1, 2, 4-トリアゾール)、
3, 3' -ウンデカメチレンビス (5-メチルチオ-1 H-1, 2, 4-トリアゾール)、
3, 3' -ドデカメチレンビス (1 H-1, 2, 4-トリアゾール)、
3, 3' -ドデカメチレンビス (5-エチル-1 H-1, 2, 4-トリアゾール)、
3, 3' -ドデカメチレンビス (5-アミノ-1 H-1, 2, 4-トリアゾール)、
3, 3' -ウンデカメチレンビス (5-ヒドロキシ-1 H-1, 2, 4-トリアゾール) 等が挙げられる。

[0050] 例示したこれらのトリアゾール化合物は、市販の試薬を購入して使用できるほか、例えば、J. Org. Chem., 44巻, 4160頁 (1979年)、米国特許第5098920号明細書、Chem. Eur. J., 18巻, 16742頁 (2012年)、J. Applied. Chem., 82巻, 276頁 (2009年)、米国特許第2744116号明細書記載の合成方法に準拠して合成することができる。

[0051] 化学式 (IV) で示されるテトラゾール化合物としては、例えば、

1 H-テトラゾール、
5-メチル-1 H-テトラゾール、
5-エチル-1 H-テトラゾール、
5-プロピル-1 H-テトラゾール、
5-イソプロピル-1 H-テトラゾール、
5-ブチル-1 H-テトラゾール、
5-tert-ブチル-1 H-テトラゾール、

5-ペンチル-1 H-テトラゾール、
5-ヘキシル-1 H-テトラゾール、
5-オクチル-1 H-テトラゾール、
5-デシル-1 H-テトラゾール、
5-ドデシル-1 H-テトラゾール、
5-フェニル-1 H-テトラゾール、
5-(p-トリル)-1 H-テトラゾール、
5-ベンジル-1 H-テトラゾール、
5-フェネチル-1 H-テトラゾール、
5-メチルチオ-1 H-テトラゾール、
5-エチルチオ-1 H-テトラゾール、
5-プロピルチオ-1 H-テトラゾール、
5-イソプロピルチオ-1 H-テトラゾール、
5-ブチルチオ-1 H-テトラゾール、
5-ペンチルチオ-1 H-テトラゾール、
5-ヘキシルチオ-1 H-テトラゾール、
5-アミノ-1 H-テトラゾール、
5-メチルアミノ-1 H-テトラゾール、
5-エチルアミノ-1 H-テトラゾール、
5-フェニルアミノ-1 H-テトラゾール、
5-アセトアミド-1 H-テトラゾール、
5-グアニジノ-1 H-テトラゾール、
5-ヒドロキシ-1 H-テトラゾール、
5-シアノ-1 H-テトラゾール、
5-ブロモ-1 H-テトラゾール、
5, 5'-(1, 4-フェニレン)ビス(1 H-テトラゾール)、
5, 5'-(1, 2-フェニレン)ビス(1 H-テトラゾール)、
5, 5'-(1, 3-フェニレン)ビス(1 H-テトラゾール)、

5, 5' -イミノビス (1 H-テトラゾール)、
5, 5' -ビ (1 H-テトラゾール)、
5, 5' -メチレンビス (1 H-テトラゾール)、
5, 5' -エチレンビス (1 H-テトラゾール)、
5, 5' -トリメチレンビス (1 H-テトラゾール)、
5, 5' -テトラメチレンビス (1 H-テトラゾール)、
5, 5' -ペンタメチレンビス (1 H-テトラゾール)、
5, 5' -ヘキサメチレンビス (1 H-テトラゾール)、
5, 5' -ヘプタメチレンビス (1 H-テトラゾール)、
5, 5' -オクタメチレンビス (1 H-テトラゾール)、
5, 5' -ノナメチレンビス (1 H-テトラゾール)、
5, 5' -デカメチレンビス (1 H-テトラゾール)、
5, 5' -ウンデカメチレンビス (1 H-テトラゾール)、
5, 5' -ドデカメチレンビス (1 H-テトラゾール) 等が挙げられる。

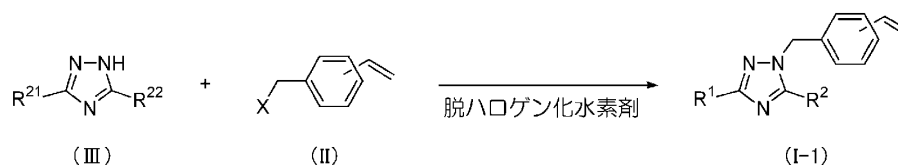
[0052] 例示したこれらのテトラゾール化合物は、市販の試薬を購入して使用できるほか、例えば、中国特許第109503505号明細書、国際公開第2015/084830号明細書記載の合成方法に準拠して合成することができる。

[0053] 本発明のアゾール化合物は、例えば、化学式 (II) で示されるスチリル化合物と化学式 (III) で示されるトリアゾール化合物または化学式 (IV) で示されるテトラゾール化合物とを、脱ハロゲン化水素剤の存在下、適量の反応溶媒中において適宜の反応温度および反応時間にて反応させることにより、合成することができる。以下の反応スキーム (A) では、Aが式 (1) の基であるアゾール化合物 (I-1) を得る反応スキームを示す。

[0054]

[化14]

反応スキーム (A)



[0055] (式 (I-1) 中の R^1 および R^2 、式 (II) 中の X 並びに式 (III) 中の R^{21} および R^{22} は、前記と同様である。)

[0056] 前記の反応溶媒としては、化学式 (II) で示されるスチリル化合物と、化学式 (III) で示されるトリアゾール化合物または化学式 (IV) で示されるテトラゾール化合物に対して不活性な溶剤であれば特に限定されず、例えば、ヘキサン、トルエン、キシレン等の炭化水素系溶剤；ジエチルエーテル、テトラヒドロフラン、ジオキサン、シクロペンチルメチルエーテル等のエーテル系溶剤；酢酸エチル、酢酸ブチル等のエステル系溶剤；メタノール、エタノール等のアルコール系溶剤；N, N-ジメチルホルムアミド、N, N-ジメチルアセトアミド、N-メチルピロリドン等のアミド系溶剤；アセトン、メチルエチルケトン、メチルイソブチルケトン、シクロヘキサノン等のケトン系溶剤；アセトニトリル、ジメチルスルホキシドやヘキサメチルホスホロアミド等を挙げることができる。

[0057] 前記の脱ハロゲン化水素剤としては、例えば、ナトリウムメトキシド、ナトリウムエトキシド、カリウムメトキシド、カリウムt-ブトキシド等のアルカリ金属アルコキシド；炭酸ナトリウム、炭酸カリウム等の炭酸アルカリ塩；トリエチルアミンやジアザビスクロウンデセン等の有機塩基や水素化ナトリウム等を挙げることができる。

[0058] 本反応において、化学式 (III) で示されるトリアゾール化合物または化学式 (IV) で示されるテトラゾール化合物の使用量 (仕込量) に対する、化学式 (II) で示されるスチリル化合物の使用量 (仕込量) は、反応温度や反応時間の他、使用する原料や反応溶媒の種類、反応スケール等の要因を考慮して、0.8～2.4 当量であることが好ましい。

また、脱ハロゲン化水素剤は、本反応により副生するハロゲン化水素を中和する為に使用されるので、その使用量 (仕込量) は、化学式 (II) で示されるスチリル化合物の使用量に対して等モル以上であればよい。

[0059] 前記の反応温度は、化学式 (III) で示されるトリアゾール化合物または化学式 (IV) で示されるテトラゾール化合物のアゾール環の-NHと、化学式 (II) で示されるスチリル化合物が反応する温度範囲であれば特に限定されないが、0～150℃の範囲が好ましく、5～100℃の範囲がより好ましい。

[0060] 前記の反応時間は、設定した反応温度に応じて適宜決定されるが、30分～48時間の範囲が好ましく、1～24時間の範囲がより好ましい。

[0061] (カップリング剤)

本発明のカップリング剤は、前記化学式 (I) で示されるアゾール化合物を成分とする。

本発明のカップリング剤を使用するに当たっては、従来のカップリング剤の場合と同様の表面処理方法を採用することができる。

この表面処理方法としては、例えば、(a) 適宜量のカップリング剤を有機溶剤により希釈した処理液を基材にスプレー塗布する方法、(b) 同カップリング剤を水-有機溶剤により希釈した処理液を基材にスプレー塗布する方法、(c) 同カップリング剤を水により希釈した処理液を基材にスプレー塗布する方法、(d) 同カップリング剤を有機溶剤により希釈した処理液に基材を浸漬する方法、(e) 同カップリング剤を水-有機溶剤により希釈した処理液に基材を浸漬する方法、(f) 同カップリング剤を水により希釈した処理液に基材を浸漬する方法等を挙げることができる。

- [0062] 前記の有機溶剤としては、例えば、
ベンゼン、トルエン、キシレン、ヘプタン、ヘキサン、シクロヘキサン、*n*-
オクタン等の炭化水素系溶剤；
ジクロロメタン、ジクロロエタン、四塩化炭素、クロロホルム、クロロベン
ゼン、ジクロロベンゼン、トリクロロベンゼン等のハロゲン化炭化水素系溶
剤；
アセトン、メチルエチルケトン、メチルイソブチルケトン等のケトン系溶剤
；
ジエチルエーテル、テトラヒドロフラン、ジオキサン、エチレングリコール
モノメチルエーテル（メチルセロソルブ）、エチレングリコールモノエチル
エーテル（エチルセロソルブ）、エチレングリコールモノブチルエーテル、
ジエチレングリコールモノブチルエーテル等のエーテル系溶剤；
メタノール、エタノール、1-プロパノール、2-プロパノール、*n*-ブチ
ルアルコール、2-ブチルアルコール、*tert*-ブチルアルコール、エチ
レングリコール、ジエチレングリコール、プロピレングリコール等のアルコ
ール系溶剤などを挙げることができる。
- [0063] 本発明に使用される基材としては、例えば、金属、無機材料、樹脂材料等
から形成された粒状、針状、繊維状、織物状、板状、箔状、無定形等の基材
を挙げることができる。
- [0064] 前記の金属としては、例えば、銅、アルミニウム、チタン、ニッケル、錫
、鉄、銀、金およびこれらの合金等が挙げられ、これらの金属からなる板や
箔、めっき膜などを基材とすることができる。
- 前記合金の具体例としては、銅合金では、銅を含む合金であれば特に限定
されず、例えば、Cu-Ag系、Cu-Te系、Cu-Mg系、Cu-Sn
系、Cu-Si系、Cu-Mn系、Cu-Be-Co系、Cu-Ti系、C
u-Ni-Si系、Cu-Zn-Ni系、Cu-Cr系、Cu-Zr系、C
u-Fe系、Cu-Al系、Cu-Zn系、Cu-Co系等の合金が挙げら
れる。

また、その他の合金では、アルミニウム合金（A l－S i 合金）、ニッケル合金（N i－C r 合金）、鉄合金（F e－N i 合金、ステンレス、鋼）等が挙げられる。

これらの金属の中では、銅および銅合金が好ましい。

[0065] 前記の無機材料としては、例えば、シリコン、セラミックや、フィラーとして使用される無機材料およびガラス等が挙げられる。

具体的には、シリコン、炭化ケイ素、シリカ、ガラス、珪藻土、珪酸カルシウム、タルク、硝子ビーズ、セリサイト活性白土、ベントナイト、アルミノケイ酸塩、マイカ等のケイ素化合物、アルミナ、酸化亜鉛、酸化鉄、酸化マグネシウム、酸化錫、酸化チタン等の酸化物、水酸化マグネシウム、水酸化アルミニウム、塩基性炭酸マグネシウム等の水酸化物、炭酸カルシウム、炭酸亜鉛、ハイドロタルサイト、炭酸マグネシウム等の炭酸塩、硫酸バリウム、石膏等の硫酸塩、チタン酸バリウム等のチタン酸塩、窒化アルミ、窒化ケイ素等の窒化物、炭素繊維等が挙げられる。

これらの無機材料の中では、シリコン、セラミック（アルミナ、炭化ケイ素、窒化アルミ、窒化ケイ素およびチタン酸バリウム等）およびガラスが好ましい。

[0066] 前記の樹脂材料としては、ナイロン、アクリレート樹脂、エポキシ樹脂、ポリベンゾオキサゾール樹脂、シリコーン樹脂、ポリイミド樹脂、ビスマレイミド樹脂、マレイミド樹脂、シアネート樹脂、ポリフェニレンエーテル樹脂、ポリフェニレンオキサイド樹脂、ポリブタジエン樹脂、オレフィン樹脂、フッ素含有樹脂、ポリエーテルイミド樹脂、ポリエーテルエーテルケトン樹脂、液晶樹脂等が挙げられ、これらを混合したり、互いに変性したりして、組み合わせたものであってもよい。

これらの樹脂材料の中では、ポリフェニレンエーテル樹脂、ポリフェニレンオキサイド樹脂、液晶樹脂、アクリレート樹脂、エポキシ樹脂、オレフィン樹脂、ポリベンゾオキサゾール樹脂、シリコーン樹脂およびポリイミド樹脂が好ましい。

[0067] 本発明のカップリング剤を含む処理液による表面処理を基材に施すことにより、基材の表面の親油性が高まって、樹脂等に対する親和性（接着性、密着性）を向上させることができる。

なお、この処理による効果をより発揮させるために、表面処理した基材を更に加熱処理してもよい。

[0068] （絶縁性組成物）

本発明のカップリング剤を、樹脂材料または無機材料に含有させることにより絶縁性組成物とすることができる。

また、化学式（Ⅰ）で示されるアゾール化合物を有機溶剤等に溶解して、樹脂材料または無機材料と混合することにより絶縁性組成物を得ることもできる。

[0069] 絶縁性組成物中の化学式（Ⅰ）で示されるアゾール化合物の含有量は、0.001～10重量%であることが好ましく、0.01～5重量%であることがより好ましい。化学式（Ⅰ）で示されるアゾール化合物の含有量が絶縁性組成物中0.001重量%以上であると、接着性の向上効果が十分得られ、この濃度が10重量%を超える場合には、接着性の向上効果がほぼ頭打ちとなるため、経済的な観点から、化学式（Ⅰ）で示されるアゾール化合物の含有量は10重量%以下とするのが好ましい。

前記絶縁性組成物は公知の方法により作製することができる。例えば、化学式（Ⅰ）で示されるアゾール化合物を有機溶剤に溶解させ、固形または液状の樹脂材料に混合することにより、絶縁性組成物を作製することができる。また、化学式（Ⅰ）で示されるアゾール化合物を液状の樹脂材料に直接添加して混合して、絶縁性組成物を作製してもよい。

[0070] 本発明の絶縁性組成物は、高い接着強度を有する絶縁材料を与えるので、各種電気・電子部品等や、プリント配線板等の電子デバイスに好適に用いることができる。

[0071] ところで、日本国特開2009-19266号公報には、金属表面にシランカップリング剤を含む液を塗布する工程と、前記液を塗布した金属表面を

、25～150℃の温度で且つ5分以内で乾燥を行う工程と、乾燥させた金属表面を水洗する工程を含むことを特徴とするシランカップリング剤皮膜の形成方法に関する発明が記載されている。

また、前記金属表面には、予め表面処理として、浸漬めっき液により錫等の接着性金属層を形成してよいとされている。

本発明の表面処理液は、前記のシランカップリング剤を含む液に変えて用いることができるものである。なお、この特許公報に記載された事項は、引用により本明細書の一部を成すものとする。

[0072] (表面処理液)

本発明の表面処理液は、前記の化学式(1)で示されるアゾール化合物を含有する。

本発明の表面処理液は、当該アゾール化合物と、水および／または可溶化剤とを混合することにより調製される。

表面処理液の調製に用いられる水としては、イオン交換水や蒸留水等の純水が好ましい。

また、表面処理液の調製に用いられる可溶化剤としては、酸、アルカリ、有機溶剤が挙げられる。これらの可溶化剤は1種を単独で用いてもよく、2種以上を組み合わせて用いてもよい。

なお、本発明の表面処理液には、当該アゾール化合物の溶解(溶液化)を促進させるために、可溶化剤と水を用いるのが好ましい。

[0073] 前記の酸としては、例えば、塩酸、硫酸、硝酸、リン酸等の無機酸や、ギ酸、酢酸、プロピオン酸、酪酸、2-エチル酪酸、吉草酸、カプロン酸、エナン酸、カプリル酸、ペラルゴン酸、カプリン酸、ラウリン酸、ミリスチン酸、パルミチン酸、マルガリン酸、オレイン酸、ステアリン酸、グリコール酸、乳酸、グルコン酸、グリセリン酸、マロン酸、コハク酸、レブリン酸、安息香酸、シュウ酸、酒石酸、リンゴ酸、ベンゼンスルホン酸、トシル酸、メタンスルホン酸、5-スルホサリチル酸、4-ヒドロキシベンゼンスルホン酸、3-メチル-4-ヒドロキシベンゼンスルホン酸、4-アミノベン

ゼンスルホン酸、カンファースルホン酸、ベンゼンジスルホン酸、ベンゼントリスルホン酸、スルファミン酸、アミノ酸等の有機酸等が挙げられる。これらの酸は、1種を単独で使用してもよく、2種以上を併用して用いてもよい。

[0074] 前記のアルカリとしては、例えば、水酸化ナトリウム、水酸化カリウム等のアルカリ金属の水酸化物や、アンモニア、メチルアミン、ジメチルアミン、トリメチルアミン、エチルアミン、ジエチルアミン、トリエチルアミン、プロピルアミン、イソプロピルアミン、ブチルアミン、ペンチルアミン、ヘキシルアミン、ヘプチルアミン、オクチルアミン、ノニルアミン、アリルアミン、エチレンジアミン、ジエチレントリアミン、トリエチレンテトラミン、モノエタノールアミン、ジエタノールアミン、トリエタノールアミン、モノプロパノールアミン、ジプロパノールアミン、トリプロパノールアミン、モノイソプロパノールアミン、ジイソプロパノールアミン、トリーソプロパノールアミン、2-アミノ-1-プロパノール、N, N-ジメチルエタノールアミン、シクロヘキシルアミン、アニリン、ピロリジン、ピペリジン、ピペラジン、ピリジン等のアミン類等が挙げられる。これらのアルカリは、1種を単独で使用してもよく、2種以上を併用して用いてもよい。

[0075] 前記の有機溶剤としては、例えば、メタノール、エタノール、1-プロパノール、2-プロパノール、ブタノール、tert-ブチルアルコール、エチレングリコール、プロピレングリコール、1, 4-ブタンジオール、グリセリン、ジエチレングリコール、トリエチレングリコール、エチレングリコールモノメチルエーテル、エチレングリコールジメチルエーテル、エチレングリコールモノエチルエーテル、エチレングリコールジエチルエーテル、エチレングリコールモノブチルエーテル、プロピレングリコールモノメチルエーテル、プロピレングリコールモノエチルエーテル、プロピレングリコールモノブチルエーテル、ジエチレングリコールモノメチルエーテル、ジエチレングリコールジメチルエーテル、ジエチレングリコールモノエチルエーテル、ジエチレングリコールジエチルエーテル、ジエチレングリコールモノブチ

ルエーテル、トリエチレングリコールジメチルエーテル、トリエチレングリコールジエチルエーテル、テトラヒドロフルフリルアルコール、フルフリルアルコール、アセトン、テトラヒドロフラン、ジオキサン、アセトニトリル、2-ピロリドン、ホルムアミド、ジメチルホルムアミド、ジメチルアセトアミド、ジメチルスルホキシド、スルホラン、炭酸ジメチル、エチレンカーボネート、N-メチルピロリドン、γ-ブチロラクトン、1,3-ジメチル-2-イミダゾリジノン等が挙げられる。これらの有機溶剤は、1種を単独で使用してもよく、2種以上を併用して用いてもよい。

[0076] 可溶化剤と水を使用する場合の表面処理液の調製方法については、当該アゾール化合物と水を混合した後に可溶化剤を加えてもよいし、当該アゾール化合物と、水および可溶化剤の混合液を混合してもよいし、当該アゾール化合物と可溶化剤を混合した後に水を加えてもよい。

[0077] 可溶化剤の含有量としては、表面処理液中0.1～99重量%であることが好ましく、0.5～99重量%であることがより好ましく、1～99重量%であることがさらに好ましい。

[0078] 本発明のアゾール化合物は分子中にアゾール環を有しているため、アゾール環が前記基材（金属、樹脂材料、無機材料）の表面と相互作用し化学結合を形成するので、異なる材料同士の接着性を向上できる。

例えば、銅と樹脂材料との接着を例に挙げると、本発明の実施において用いるアゾール化合物のアゾール環が、樹脂および銅と相互作用して、化学結合を形成し、重合性基（ $-C_6H_4-CH=CH_2$ ）が樹脂と相互作用して、化学結合を形成する。

従って、銅と表面処理液を接触させることにより、該銅の表面にはアゾール環との結合により、化学式（1）で示されるアゾール化合物に由来する化成皮膜が形成されて、この化成皮膜の表面に樹脂材料からなる樹脂層を形成させた場合には、銅の表面に直に樹脂層を形成させる場合に比べて、銅と樹脂材料との接着性を高めることができる。

[0079] 本発明の実施においては、表面処理液中における化学式（1）で示される

アゾール化合物の濃度が、 $0.0001 \sim 1.0000 \text{ mol/L}$ であることが好ましく、 $0.0010 \sim 0.5000 \text{ mol/L}$ であることがより好ましく、 $0.0100 \sim 0.1000 \text{ mol/L}$ であることがさらに好ましい。

[0080] 表面処理液の安定性や化成皮膜の均一性を向上させるために、表面処理液には、フッ化物イオン、塩化物イオン、臭化物イオン、ヨウ化物イオン等のハロゲン化物イオンや銅イオン、鉄イオン、亜鉛イオンなどの金属イオンを生成する物質を含むこともできる。

[0081] ハロゲン化物イオンは、化成皮膜の平坦部を均一に形成する効果を示す。ハロゲン化物イオンを生成する物質としては、例えば、フッ化リチウム、フッ化ナトリウム、フッ化カリウム、フッ化マグネシウム、フッ化カルシウム、塩化リチウム、塩化ナトリウム、塩化カリウム、塩化マグネシウム、塩化カルシウム、臭化リチウム、臭化ナトリウム、臭化カリウム、臭化マグネシウム、臭化カルシウム、ヨウ化リチウム、ヨウ化ナトリウム、ヨウ化カリウム、ヨウ化マグネシウム、ヨウ化カルシウム、フッ化アンモニウム、塩化アンモニウム、臭化アンモニウム、ヨウ化アンモニウム、塩化第一銅、塩化第二銅、臭化第一銅、臭化第二銅等が挙げられる。ハロゲン化合物は他の成分の不純物として含まれていてもよい。

[0082] 表面処理液中におけるハロゲン化物イオンの含有量は、特に限定されず、例えば、 0.10 mol/L 以下（特に $0 \sim 0.10 \text{ mol/L}$ ）が好ましく、 0.050 mol/L 以下（特に $0 \sim 0.050 \text{ mol/L}$ ）であることがより好ましく、 0.020 mol/L 以下（特に $0 \sim 0.020 \text{ mol/L}$ ）であることがさらに好ましく、 0.010 mol/L 以下（特に $0 \sim 0.010 \text{ mol/L}$ ）であることが特に好ましい。

[0083] 銅イオンは、アゾール化合物と錯体を形成し、化成皮膜の強度を高めたり、金属と樹脂との接着強度を高めたりすることができる。銅イオンの価数は、1価でも2価でもよい。銅イオンを生成する物質としては、例えば、金属銅、硫酸銅（およびその水和物（特に五水和物））、ギ酸銅（およびその水

和物（特に四水和物））、硝酸銅、塩化第一銅、塩化第二銅、酢酸銅（およびその水和物（特に一水和物））、水酸化銅、酸化銅、硫化銅、炭酸銅、臭化第一銅、臭化第二銅、リン酸銅、安息香酸銅が挙げられる。

また、表面処理液中の銅イオンは、表面処理液による銅回路の処理時に、銅回路に含まれる金属銅や酸化銅から溶出した銅イオンを含んでいてもよい。

[0084] 表面処理液中における銅イオンの含有量は、特に限定されず、例えば、 1.00 mol/L 以下（特に 0 mol/L 以上 1.00 mol/L 以下）が好ましく、 0.50 mol/L 以下（特に 0 mol/L 以上 0.50 mol/L 以下）がより好ましく、 0.10 mol/L 以下（特に 0 mol/L 以上 0.10 mol/L 以下）がさらに好ましく、 0.010 mol/L 以下（特に 0 mol/L 以上 0.010 mol/L 以下）が特に好ましい。

[0085] また、本発明の効果を損なわない範囲において、公知のカップリング剤を併用してもよい。公知のカップリング剤としては、チオール基（メルカプト基）、ビニル基、エポキシ基、（メタ）アクリル基、アミノ基、クロロプロピル基等を有するシラン系カップリング剤（シランカップリング剤）が挙げられる。

[0086] このようなシラン系カップリング剤の例としては、例えば、
3-メルカプトプロピルトリメトキシシラン、
3-メルカプトプロピルメチルジメトキシシラン等のメルカプトシラン化合物、
ビニルトリクロルシラン、
ビニルトリメトキシシラン、
ビニルトリエトキシシラン等のビニルシラン化合物、
p-スチリルトリメトキシシラン等のスチリルシラン化合物、
2-(3,4-エポキシシクロヘキシル)エチルトリメトキシシラン、
3-グリシドキシプロピルトリメトキシシラン、
3-グリシドキシプロピルメチルジエトキシシラン、

3-グリシドキシプロピルトリエトキシシラン等のエポキシシラン化合物、
3-アクリロキシプロピルトリメトキシシラン等のアクリロキシシラン化合物、
3-メタクリロキシプロピルメチルジメトキシシラン、
3-メタクリロキシプロピルトリメトキシシラン、
3-メタクリロキシプロピルメチルジエトキシシラン、
3-メタクリロキシプロピルトリエトキシシラン等のメタクリロキシシラン化合物、
N-2-(アミノエチル)-3-アミノプロピルメチルジメトキシシラン、
N-2-(アミノエチル)-3-アミノプロピルトリメトキシシラン、
N-2-(アミノエチル)-3-アミノプロピルトリエトキシシラン、
3-アミノプロピルトリメトキシシラン、
3-アミノプロピルトリエトキシシラン、
3-トリエトキシシリル-N-(1, 3-ジメチル-ブチリデン)プロピルアミン、
N-フェニル-3-アミノプロピルトリメトキシシラン、
N-(ビニルベンジル)-2-アミノエチル-3-アミノプロピルトリメトキシシラン等のアミノシラン化合物、
3-ウレイドプロピルトリエトキシシラン等のウレイドシラン化合物、
3-クロロプロピルトリメトキシシラン等のクロロプロピルシラン化合物、
ビス(トリエトキシシリルプロピル)テトラスルフィド等のスルフィドシラン化合物、および
3-イソシアナトプロピルトリエトキシシラン等のイソシアナトシラン化合物等を挙げることができる。

その他、アルミニウム系カップリング剤、チタン系カップリング剤、ジルコニウム系カップリング剤等も挙げることができる。

[0087] (本発明の表面処理液の処理方法)

本発明の表面処理液を基材の表面に接触させる方法としては、特に制限は

なく、前述のカップリング剤の場合と同様に、スプレー、浸漬や塗布等の手段を採用することができる。

表面処理液と基材を接触させる時間（処理時間）については、1秒～10分とすることが好ましく、5秒～3分とすることがより好ましい。処理時間が1秒未満の場合には基材表面に形成される化成皮膜の膜厚が薄くなり、材質の異なる材料間の接着力が十分に得られ難く、一方10分より長くしても、化成皮膜の膜厚に大差はないため、生産性の観点から、10分以内で処理するのが好ましい。

また、表面処理液を基材表面に接触させる際の処理液の温度については、5～50℃とすることが好ましいが、前記の処理時間との関係において、適宜設定すればよい。

[0088] 本発明の表面処理液と基材を接触させた後は、水洗してから乾燥してもよいし、水洗せずに乾燥させてもよい。

乾燥は、室温～150℃の温度とすることが好ましい。

なお、水洗に用いる水としては、イオン交換水や蒸留水等の純水が好ましいが、水洗の方法や時間には特に制限なく、スプレーや浸漬等の手段による適宜の時間で構わない。

[0089] なお、化成皮膜の膜厚は、0.5～1,000nmであることが好ましく、1～200nmであることがより好ましく、1～100nmであることがさらに好ましい。膜厚が0.5nm以上であると材料間の接着性が十分に高められ、1,000nm以下であると化成皮膜の耐薬品性を維持できる。

[0090] 本発明において、乾燥後の化成皮膜に対し、プラズマ、レーザー、イオンビーム、オゾン、加熱、加湿等の処理を行い、化成皮膜の表面を改質させてもよい。あるいは、プラズマ、レーザー、イオンビーム、パーミス・ブラシなどの機械研磨やドリル等加工方法を用いて、金属表面の樹脂・イオン残渣除去を目的とした洗浄を行ってもよい。

[0091] 銅または銅合金（以下、両者を指して、単に銅ということがある）の表面を処理する場合、本発明の表面処理液を銅の表面に接触させる前に、当該銅

の表面に、酸洗処理、アルカリ処理、粗化処理、耐熱処理、防錆処理または化成処理から選択される少なくとも1つの前処理を行ってもよい。

[0092] 前記の酸洗処理とは、銅の表面に付着した油脂成分を除去する為と、銅の表面の酸化皮膜を除去する為に行うものである。この酸洗処理には、塩酸系溶液、硫酸系溶液、硝酸系溶液、硫酸－過酸化水素系溶液、有機酸系溶液、無機酸－有機溶媒系溶液、有機酸－有機溶媒系溶液等の溶液を用いることができる。

[0093] 前記のアルカリ処理とは、銅の表面に付着した油脂成分を除去する為や、前工程の残渣（例えば、銅回路形成用ドライフィルムレジストなど）を除去する為に行うものである。このアルカリ処理には、水酸化ナトリウム、水酸化カリウムなどのアルカリ金属の水酸化物や、アンモニア、エタノールアミン、モノプロパノールアミン、テトラメチルアンモニウムヒドロキシド等のアミン類、炭酸ナトリウム、炭酸水素ナトリウム、炭酸カリウム、炭酸水素カリウム、炭酸アンモニウム、炭酸水素アンモニウム、酢酸ナトリウム、酢酸カリウム、リン酸ナトリウム、リン酸水素二ナトリウム、リン酸カリウム、リン酸水素二カリウム等を含む水溶液や有機溶媒系溶液等の溶液を用いることができる。

[0094] 前記の粗化処理とは、アンカー効果による銅と樹脂の接着性を高める為に行うものであり、銅の表面に凹凸形状が付与され、銅と樹脂材料との接着性を高めることができる。この粗化処理においては、マイクロエッチング法、電気めっき法、無電解めっき法、酸化法（ブラックオキシaid、ブラウンオキシaid）、酸化・還元法、ブラシ研磨法、ジェットスクラブ法等の方法を採用することができる。

[0095] マイクロエッチング法においては、例えば、有機酸－第二銅イオン系、硫酸－過酸化水素系、過硫酸塩系、塩化銅系や塩化鉄系の各エッチング剤を使用することができる。電気めっき法においては、銅の表面に微細な銅粒子を析出させることにより、銅の表面に凹凸を形成させる。

[0096] 前記の耐熱処理においては、銅の表面に、ニッケル、ニッケルーリン、亜

鉛、亜鉛－ニッケル、銅－亜鉛、銅－ニッケル、銅－ニッケル－コバルトまたはニッケル－コバルトから選択される少なくとも1種の皮膜が形成される。この皮膜の形成は公知の電気めっきによる方法を採用して行うことができるが、電気めっきに限定されるものではなく、蒸着その他の手段を使用しても何ら差し支えない。

[0097] 前記の防錆処理とは、銅の表面が酸化腐食することを防止する為に行うものであり、銅の表面に、亜鉛または亜鉛合金組成のめっき皮膜や、電解クロメートのめっき皮膜を形成させる方法を採用することができる。また、ベンゾトリアゾール系防錆剤など有機化合物系の防錆剤を含む処理液を銅の表面に接触させてもよい。

[0098] 前記の化成処理においては、錫の不動態皮膜を形成する方法や、酸化銅の不動態皮膜を形成する方法を採用することができる。

[0099] 本発明の表面処理液を銅の表面に接触させる前および／または後に、銅イオンを含む水溶液を前記銅の表面に接触させてもよい。この銅イオンを含む水溶液は、銅の表面に形成される化成皮膜の造膜性を高める機能や、銅の表面に形成される化成皮膜の厚みを均一にさせる機能を有する。銅イオンの価数は、特に限定されず、1価または2価の銅イオンである。

銅イオンを含む水溶液の銅イオン源としては、水に溶解する銅塩であれば特に限定されず、硫酸銅、硝酸銅、塩化銅、ギ酸銅、酢酸銅などの銅塩が挙げられる。銅塩を水に可溶化するために、アンモニアや塩酸などを添加してもよい。

[0100] 本発明の表面処理液を銅の表面に接触させる前および／または後に、酸性水溶液またはアルカリ性水溶液を前記銅の表面に接触させてもよい。この酸性水溶液またはアルカリ性水溶液も、前記の銅イオンを含む水溶液と同様に、銅の表面に形成される化成皮膜の厚みを均一にさせる機能を有する。

酸性水溶液およびアルカリ性水溶液は、特に限定されないが、酸性水溶液としては、硫酸、硝酸、塩酸等の鉱酸を含む水溶液や、ギ酸、酢酸、乳酸、グリコール酸、アミノ酸などの有機酸を含む水溶液等が挙げられる。アルカ

り性水溶液としては、水酸化ナトリウム、水酸化カリウムなどのアルカリ金属の水酸化物や、アンモニア、エタノールアミン、モノプロパノールアミン、テトラメチルアンモニウムヒドロキッド等のアミン類、炭酸ナトリウム、炭酸水素ナトリウム、炭酸カリウム、炭酸水素カリウム、炭酸アンモニウム、炭酸水素アンモニウム、酢酸ナトリウム、酢酸カリウム、リン酸ナトリウム、リン酸水素二ナトリウム、リン酸カリウム、リン酸水素二カリウム等を含む水溶液が挙げられる。

[0101] 本発明の表面処理液を銅の表面に接触させる前および／または後に、公知のカップリング剤を含む水溶液を前記銅の表面に接触させてもよい。

[0102] 本発明の表面処理剤を銅の表面に接触させる前および／または後に、アゾール化合物を含有する溶液を前記銅の表面に接触させてもよい。このアゾール化合物を含有する溶液は、銅の表面に形成される化成皮膜の強度を高める機能を有する。

アゾール化合物としては特に限定されず、市販のイミダゾール化合物、トリアゾール化合物、テトラゾール化合物などが挙げられる。これらのアゾール化合物としては、イミダゾール、2-メチルイミダゾール、1, 2, 3-トリアゾール、1, 2, 4-トリアゾール、3-アミノ-1, 2, 4-トリアゾール、3-アミノ-5-メチル-1, 2, 4-トリアゾール、5-メチルテトラゾール、5-アミノテトラゾール、5-フェニルテトラゾールなどが挙げられる。

アゾール化合物を含有する溶液には、アゾール化合物の他に、水および／または可溶化剤を含有する。可溶化剤としては、前述の可溶化剤（酸、アルカリ、有機溶剤）が挙げられる。

アゾール化合物を含有する溶液には、さらに添加剤を含有してもよい。添加剤としては、例えば、銅化合物、ハロゲン化合物やその他の添加剤（例えば、硫酸アンモニウム、ギ酸アンモニウム、酢酸アンモニウム、塩化アンモニウム、炭酸アンモニウム、硝酸アンモニウム等のアンモニウム塩）等が挙げられる。

- [0103] 本発明の表面処理液を銅の表面に接触させた後に、例えばベンゾトリアゾール系の防錆剤などの公知の有機化合物系防錆剤を含む処理液を接触させてもよい。
- [0104] 本発明の表面処理液は、前記の金属、無機材料および樹脂材料からなる群から選択される少なくとも1つの基材の表面を処理するために用いることができる。本発明の表面処理液を用いて基材の表面を処理することで、基材表面に化成皮膜を形成し、他の材料との接着性を高めることができる。
- [0105] 本発明において、前記の金属、無機材料、樹脂材料からなる群から選択される2つの材料を本発明の表面処理液を用いて接着させることができる。本発明の表面処理液により形成される化成皮膜の層を介して2つの材料を接着することで、互いの親和性を向上させることができるため、材質の異なる材料同士であってもより強固に接着することができる。
- [0106] (本発明の表面処理液を用いた接着方法)
- 2つの材料の接着方法としては、公知の方法により行うことができる。金属、無機材料または樹脂材料からなる基材の表面に本発明の表面処理液を接触させて化成皮膜を形成し、形成した化成皮膜の一部または全体に他の基材を塗布、圧着、混合等の手段や、接着剤、接着シート（フィルム）の利用あるいはこれらの手段を組み合わせることで接着する方法が挙げられる。
- また、金属、無機材料、樹脂材料から選択される2つの基材の表面に、本発明の表面処理液を接触させて、2つの基材の表面にそれぞれ化成皮膜を形成し、2つの基材を塗布、圧着、混合等の手段や、接着剤、接着シート（フィルム）の利用あるいはこれらの手段を組み合わせることで接着する方法が挙げられる。
- [0107] 本発明の表面処理液を用いることにより、前記のように2つの材料、特に材質の異なる2つの材料を接着させることができるので、各種電気・電子部品や半導体ウェハ、プリント配線板等の電子デバイスに好適に利用することができる。
- [0108] なお、本発明において、金属、特に銅または銅合金から形成される基材に

対して、本発明の表面処理液は好適に用いることができる。例えば、銅回路（銅配線層）と、半硬化または硬化したプリプレグやソルダーレジスト、半硬化または硬化したドライフィルムレジスト（絶縁樹脂層）との間の接着性（密着性）を高めることを目的とする銅または銅合金の表面処理に好適であり、銅配線層に接して絶縁樹脂層を有するプリント配線板において、銅配線層と絶縁樹脂層との間の接着性を高めることができる。

[0109] 半導体ウェハにおける利用例では、半導体ウェハ上に形成された半導体回路と保護膜（例えば、感光性ポジ型、感光性ネガ型、非感光性のバッファークコートやバンプ保護膜などの絶縁性保護膜）との間の接着性（密着性）を高めることを目的とする半導体回路の表面処理に好適である。

また、半導体ウェハ上に再配線層を形成するパッケージ基板（WL-CSP、FO-WLP、PLP）や2.5次元（2.5D）または3次元（3D）インターポザー基板において、銅回路再配線層と絶縁材料との接着性（密着性）を高めることを目的とする銅回路再配線層の表面処理に好適である。

前記の保護膜や絶縁材料としては、例えば、ポリイミド樹脂やポリベンゾオキサゾール樹脂、シリコン樹脂などが挙げられる。

[0110] 前記のプリント配線板は、本発明の表面処理液と銅配線の表面を接触させて、その後水洗・乾燥した後、銅配線表面に絶縁樹脂層を形成させることにより作製することができる。この接触の方法については、前述のとおりであり、表面処理液中への銅配線の浸漬または該処理液による銅配線へのスプレー等が簡便かつ確実であり好ましい。

また、前記の水洗の方法についても特に制限はないが、洗浄水中への銅配線の浸漬または洗浄水による銅配線表面へのスプレーが簡便かつ確実であり好ましい。

前記の絶縁樹脂層の形成には、公知の方法、例えば半硬化の樹脂材料を貼り付ける方法や溶剤を含む液状の樹脂材料を塗布する手段等を採用することができる。次いで、上下の配線を導通させる為に、ビアホールを形成する。

このプロセスを繰り返すことにより、多層プリント配線板を作製できる。

[0111] 前記のプリント配線板の回路形成方法において、本発明の表面処理液を使用するセミアディティブ工法の例を以下に示す。

(a) 絶縁性基板またはスルーホール貫通孔及びビア孔を有する絶縁性基板の第1面及び第1面とは反対側の第2面並びにスルーホール貫通孔及びビア孔内壁に第1導電層を有する絶縁性基板を準備する工程、

(b) 第1面および第2面に光架橋性樹脂層及びマスク層を形成して、第1面および第2面並びにスルーホール貫通孔及びビア孔内壁の第1導電層を光架橋性樹脂層及びマスク層で覆う工程、

(c) 第1面及び第2面並びにスルーホール貫通孔及びビア孔周辺の光架橋性樹脂層をパターン露光する工程、

(d) 第1面及び第2面並びにスルーホール貫通孔及びビア孔周辺のマスク層を除去する工程、

(e) 光架橋性樹脂層除去液を使用して、第1面及び第2面、並びにスルーホール貫通孔及びビア孔周辺の未硬化光架橋性樹脂層を現像除去し、第1面上の第1導電層及び第2面上の第1導電層並びにスルーホール貫通孔及びビア孔周辺の第1導電層を露出する工程、

(f) 第1面上及び第2面上並びにスルーホール貫通孔及びビア孔内壁に露出している第1導電層上に電解めっき処理により第2導電層を形成する工程、

(g) 第1面上及び第2面上並びにスルーホール貫通孔及びビア孔周辺の硬化光架橋性樹脂層を除去して、第1面上及び第2面上並びにスルーホール貫通孔及びビア孔内壁の第1及び第2導電層を露出する工程、

(h) 露出する第1導電層をフラッシュエッチングして除去する工程、

(i) 第1面上及び第2面上並びにスルーホール貫通孔及びビア孔内壁の第1及び第2導電層に無電解めっき及び電解めっき処理により第3導電層を形成する工程、

(j) 第1面上及び第2面上並びにスルーホール貫通孔及びビア孔内壁の第

1、第2及び第3導電層上に絶縁樹脂層を積層する工程、
を少なくとも1つ以上含む回路基板の製造方法において、第1面上及び第2面上並びにスルーホール貫通孔及びビア孔内壁の第1、第2及び第3導電層、絶縁樹脂基板、エッチングレジスト層やめっきレジスト層に使用する光架橋性樹脂層、絶縁樹脂層の内の少なくとも1つ以上の金属層もしくはレジスト層に本発明の表面処理液を接触させ、プリント配線板を製造する。

[0112] さらに、前記のプリント配線板の回路形成方法において、本発明の表面処理液を使用するサブトラクティブ工法の例を以下に示す。

(a) 絶縁性基板またはスルーホール貫通孔及びビア孔を有する絶縁性基板の第1面及び第1面とは反対側の第2面並びにスルーホール貫通孔及びビア孔内壁に第1導電層を有する絶縁性基板を準備する工程、

(b) 第1面および第2面に光架橋性樹脂層及びマスク層を形成して、第1面および第2面並びにスルーホール貫通孔及びビア孔内壁の第1導電層を光架橋性樹脂層及びマスク層で覆う工程、

(c) 第1面及び第2面並びにスルーホール貫通孔及びビア孔周辺の光架橋性樹脂層をパターン露光する工程、

(d) 第1面及び第2面並びにスルーホール貫通孔及びビア孔周辺のマスク層を除去する工程、

(e) 光架橋性樹脂層除去液を使用して、第1面及び第2面、並びにスルーホール貫通孔及びビア孔周辺の未硬化光架橋性樹脂層を現像除去し、第1面上の第1導電層及び第2面上の第1導電層並びにスルーホール貫通孔及びビア孔周辺の第1導電層を露出する工程、

(f) 第1面上及び第2面上並びにスルーホール貫通孔及びビア孔内壁に露出している第1導電層をエッチングして除去する工程、

(g) 第1面上及び第2面上並びにスルーホール貫通孔及びビア孔周辺の硬化光架橋性樹脂層を除去して、第1面上及び第2面上並びにスルーホール貫通孔及びビア孔内壁の第1及び第2導電層を露出する工程、

(h) 第1面上及び第2面上並びにスルーホール貫通孔及びビア孔内壁の第

1 及び第2導電層に無電解めっき及び電解めっき処理により第3導電層を形成する工程、

(i) 第1面上及び第2面上並びにスルーホール貫通孔及びビア孔内壁の第1、第2及び第3導電層上に絶縁樹脂層を積層する工程、

を少なくとも1つ以上含む回路基板の製造方法において、第1面上及び第2面上並びにスルーホール貫通孔及びビア孔内壁の第1、第2及び第3導電層、絶縁樹脂基板、エッチングレジスト層やめっきレジスト層に使用する光架橋性樹脂層、絶縁樹脂層の内の少なくとも1つ以上の金属層もしくはレジスト層に本発明の表面処理液を接触させ、プリント配線板を製造する。

[0113] 前記の銅配線や導電層については、無電解めっき法、電解めっき法、蒸着法、スパッタ法、ダマシン法等のような方法で作製されたものでもよく、インナービアホール、スルーホール、接続端子等を含んだものでもよい。

[0114] また、本発明に係る「銅」とは、プリント配線板、リードフレーム等の電子デバイス、装飾品、建材等に用いられる箔（電解銅箔、圧延銅箔、樹脂付銅箔、キャリア付銅箔、無電解銅箔、スパッタ銅箔、薄銅箔）、めっき膜（無電解銅めっき膜、電解銅めっき膜）、蒸着法、スパッタ法、ダマシン法等により形成された薄膜や、粒、針、繊維、線、棒、管、板等の用途・形態において用いられるものである。なお、近年の高周波の電気信号が流れる銅配線の場合には、銅の表面は平均粗さが0.1 μm 以下の平滑面であることが好ましい。銅の表面に、前処理として、ニッケル、亜鉛、クロム、錫等のめっきを施してもよい。

[0115] また例えば、ワイヤボンディング実装する際のリードフレームにおける利用例では、本発明の表面処理液は、リードフレーム作成工程の金属表面もしくは、半導体チップをマウント（ダイボンディング・プレベッキング工程の前後）した後のフレーム金属表面、ワイヤボンディング実装した後のフレーム金属表面、樹脂封止（樹脂モールド、ベッキング工程の前後）するまでの工程のフレーム金属表面において封止樹脂や半導体チップマウント時の接着剤との接着性（密着性）を高めることを目的とするリードフレームの表面処

理に好適である。

[0116] また例えば、フリップチップ実装する際のリードフレームにおける利用例では、本発明の表面処理液は、リードフレーム作成工程の金属表面もしくは、接合材料（はんだ、Auめっき、Snめっきなど）を仮置きした後のリードフレーム金属表面、半導体チップをマウント（位置合わせ、チップマウント・ベキング工程の前後）した後のフレーム金属表面、本硬化後（リフロー加熱、熱圧着、超音波、プラズマなどの工程前後）のリードフレーム金属表面、樹脂封止するまでの工程のリードフレーム金属表面において、封止樹脂や半導体チップマウント時の接着剤との接着性（密着性）を高めることを目的とするリードフレームの表面処理に好適である。

[0117] また例えば、半導体チップを近接配置するための集積技術を高めた微細配線基板における利用例では、本発明の表面処理液は、2.5次元（2.5D）有機基板あるいはガラス基板、半導体を基板に内蔵した部品内蔵基板（EPS基板）、コアレス基板において、銅回路配線層と絶縁材料との接着性（密着性）を高めることを目的とする銅回路配線層の表面処理にも好適である。

[0118] また例えば、本発明の金属の表面処理液は、パターン配線を内蔵し上下層をレーザービア加工し、ビアフィルめっきを行う場合や、上下層の導通はめっきで形成した銅ピラーを使用し、絶縁層はモールド樹脂を使用するMISを用いた回路埋め込み基板（ETSS基板）を用いる場合において、銅回路配線層と絶縁材料との接着性（密着性）を高めることを目的とする銅回路配線層の表面処理に好適である。

[0119] また、本発明の表面処理液で処理されるキャリア付銅箔とは、セミアディティブ法、サブトラクティブ法、パートリーアディティブ法又はモディファイドセミアディティブ法の何れかの方法によって回路を形成する工程を含むプリント配線板に使用される極薄電解銅箔であり、銅箔キャリアと、銅箔キャリア上に積層された剥離層と、剥離層の上に積層された極薄銅層とを備えたものである。銅の表面に、酸洗処理、粗化处理、耐熱処理、防錆処理また

は化成処理からなる群から選択される少なくとも 1 つの前処理を施してもよい。

[0120] (樹脂組成物)

本発明のアゾール化合物は、樹脂組成物の原料として使用することができる。

この樹脂組成物中における本発明のアゾール化合物の含有量は、0.001～100重量%の割合であることが好ましい。

[0121] 本発明のアゾール化合物を重合させると硬化物が得られるが、この重合時に、本発明のアゾール化合物とは別の硬化性化合物を共存させることにより、本発明のアゾール化合物と、別の硬化性化合物が共重合した硬化物を得ることができる。

別の硬化性化合物としては、分子内に炭素－炭素二重結合を有するエン化合物（以下、「第1の硬化性化合物」と云うことがある）、分子内にエポキシ基、オキセタン環またはビニル基を有する化合物（以下、「第2の硬化性化合物」と云うことがある）が挙げられる。

[0122] (第1の樹脂組成物)

第1の樹脂組成物は、本発明のアゾール化合物を必須成分として含有し、必要により、第1の硬化性化合物（分子内に炭素－炭素二重結合を有するエン化合物）を含有する。

第1の硬化性化合物としては、重合性モノマーと、重合性モノマーが一部重合した構造を有する重合性オリゴマー（半硬化物）の両者を包含する。

[0123] この重合性モノマーとしては、例えば、

- (1) (メタ)アクリル酸アルキルエステル系モノマー、
- (2) 水酸基含有モノマー、
- (3) カルボキシル基含有モノマー、
- (4) アミノ基含有モノマー、
- (5) アセトアセチル基含有モノマー、
- (6) イソシアネート基含有モノマー、

- (7) グリシジル基含有モノマー、
- (8) 1つの芳香環を含有するモノマー、
- (9) アルコキシ基およびオキシアalkylene基を含有するモノマー、
- (10) アルコシアルキル(メタ)アクリルアミド系モノマー、
- (11) (メタ)アクリルアミド系モノマー、
- (12) 単官能性不飽和化合物、
- (13) 多官能性不飽和化合物等が挙げられる。

[0124] (1) (メタ)アクリル酸アルキルエステル系モノマーとしては、例えば

、
メチル(メタ)アクリレート、
エチル(メタ)アクリレート、
n-ブチル(メタ)アクリレート、
i s o-ブチル(メタ)アクリレート、
t e r t-ブチル(メタ)アクリレート、
n-プロピル(メタ)アクリレート、
n-ヘキシル(メタ)アクリレート、
2-エチルヘキシル(メタ)アクリレート、
n-オクチル(メタ)アクリレート、
イソデシル(メタ)アクリレート、
ラウリル(メタ)アクリレート、
セチル(メタ)アクリレート、
ステアリル(メタ)アクリレート、
シクロヘキシル(メタ)アクリレート、
イソボルニル(メタ)アクリレート、
ポリイソボルニル(メタ)アクリレート等が挙げられる。

[0125] (2) 水酸基含有モノマーとしては、例えば、

2-ヒドロキシエチル(メタ)アクリレート、
4-ヒドロキシブチル(メタ)アクリレート、

5-ヒドロキシペンチル（メタ）アクリレート、
6-ヒドロキシヘキシル（メタ）アクリレート、
8-ヒドロキシオクチル（メタ）アクリレート等の（メタ）アクリル酸ヒドロキシアシルエステル；
カプロラクトン変性2-ヒドロキシエチル（メタ）アクリレート等のカプロラクトン変性モノマー；
ジエチレングリコール（メタ）アクリレート、
ポリエチレングリコール（メタ）アクリレート等のオキシアシル変性モノマー；
その他、2-アクリロイロキシエチル2-ヒドロキシエチルフタル酸、
N-メチロール（メタ）アクリルアミド、
ヒドロキシエチルアクリルアミド等の1級水酸基含有モノマー；
2-ヒドロキシプロピル（メタ）アクリレート、
2-ヒドロキシブチル（メタ）アクリレート、
3-クロロ2-ヒドロキシプロピル（メタ）アクリレート、
プロピレングリコールジグリシジルエーテル-エポキシジ（メタ）アクリレート、
フェノールグリシジルエーテル-エポキシ（メタ）アクリレート、
ビスフェノールAジグリシジルエーテル-エポキシジ（メタ）アクリレート等の2級水酸基含有モノマー；
2, 2-ジメチル2-ヒドロキシエチル（メタ）アクリレート等の3級水酸基含有モノマー等が挙げられる。

[0126] （3）カルボキシル基含有モノマーとしては、例えば、
（メタ）アクリル酸、アクリル酸ダイマー、クロトン酸、マレイン酸、無水マレイン酸、フマル酸、シトラコン酸、グルタコン酸、イタコン酸、アクリルアミドN-グリコール酸、ケイ皮酸等が挙げられる。

[0127] （4）アミノ基含有モノマーとしては、例えば、
tert-ブチルアミノエチル（メタ）アクリレート、

エチルアミノエチル（メタ）アクリレート、
ジメチルアミノエチル（メタ）アクリレート、
ジエチルアミノエチル（メタ）アクリレート等が挙げられる。

[0128] （５）アセトアセチル基含有モノマーとしては、例えば、
２－（アセトアセトキシ）エチル（メタ）アクリレート、
アリルアセトアセテート等が挙げられる。

[0129] （６）イソシアネート基含有モノマーとしては、例えば、
２－アクリロイルオキシエチルイソシアネート、
２－メタクリロイルオキシエチルイソシアネートや
それらのアルキレンオキサイド付加物等が挙げられる。

[0130] （７）グリシジル基含有モノマーとしては、例えば、
（メタ）アクリル酸グリシジルの他、
エチレングリコールジグリシジルエーテル－エポキシ（メタ）アクリレート
、
レゾルシンジグリシジルエーテル－エポキシ（メタ）アクリレート、
ビス（４－ヒドロキシフェニル）スルフィドジグリシジルエーテル－エポキ
シ（メタ）アクリレート、
フェノールノボラック型エポキシ樹脂－（メタ）アクリレート、
クレゾールノボラック型エポキシ樹脂－（メタ）アクリレート、
ビスフェノール（例えば、ビスフェノールＡ、ビスフェノールＦ）型エポキ
シ樹脂－（メタ）アクリレート、
ビスフェノール（例えば、３，３′，５，５′－テトラメチルビスフェノール）
型エポキシ樹脂－（メタ）アクリレート、
１，３，５－トリス（２，３－エポキシプロピル）イソシアヌレート－（メ
タ）アクリレート等のエポキシ化合物と（メタ）アクリル酸との反応生成物
であるエポキシ（メタ）アクリレート類、
４－ヒドロキシブチル（メタ）アクリレートグリシジルエーテル等のグリシ
ジル（メタ）アクリレート類等が挙げられる。

- [0131] (8) 1つの芳香環を含有するモノマーとしては、例えば、
フェニル（メタ）アクリレート、
ベンジル（メタ）アクリレート、
フェノキシエチル（メタ）アクリレート、
フェノキシジエチレングリコール（メタ）アクリレート、
2-ヒドロキシ-3-フェノキシプロピル（メタ）アクリレート、
スチレン、
 α -メチルスチレン等が挙げられる。
- [0132] (9) アルコキシ基およびオキシアルキレン基を含有するモノマーとしては、例えば、
2-メトキシエチル（メタ）アクリレート、
2-エトキシエチル（メタ）アクリレート、
3-メトキシブチル（メタ）アクリレート、
2-ブトキシエチル（メタ）アクリレート、
2-ブトキシジエチレングリコール（メタ）アクリレート、
メトキシジエチレングリコール（メタ）アクリレート、
メトキシトリエチレングリコール（メタ）アクリレート、
エトキシジエチレングリコール（メタ）アクリレート、
メトキシジプロピレングリコール（メタ）アクリレート、
メトキシポリエチレングリコール（メタ）アクリレート、
オクトキシポリエチレングリコール-ポリプロピレングリコールモノ（メタ）アクリレート、
ラウロキシポリエチレングリコールモノ（メタ）アクリレート、
ステアロキシポリエチレングリコールモノ（メタ）アクリレート等が挙げられる。
- [0133] (10) アルコキシアルキル（メタ）アクリルアミド系モノマーとしては、例えば、
メトキシメチル（メタ）アクリルアミド、

エトキシメチル（メタ）アクリルアミド、
プロポキシメチル（メタ）アクリルアミド、
イソプロポキシメチル（メタ）アクリルアミド、
n-ブトキシメチル（メタ）アクリルアミド、
イソブトキシメチル（メタ）アクリルアミド等が挙げられる。

[0134] (11) (メタ)アクリルアミド系モノマーとしては、例えば、
(メタ)アクリロイルモルホリン、
ジメチル（メタ）アクリルアミド、
ジエチル（メタ）アクリルアミド、
(メタ)アクリルアミドN-メチロール（メタ）アクリルアミド等が挙げられる。

[0135] (12) 単官能性不飽和化合物としては、例えば、ビフェニル構造含有（メタ）アクリレート系化合物が挙げられ、より具体的には、
o-ビフェニル（メタ）アクリレート、
m-ビフェニル（メタ）アクリレート、
p-ビフェニル（メタ）アクリレート等のビフェニル（メタ）アクリレート；
o-ビフェニルオキシメチル（メタ）アクリレート、
m-ビフェニルオキシメチル（メタ）アクリレート、
p-ビフェニルオキシメチル（メタ）アクリレート、
o-ビフェニルオキシエチル（メタ）アクリレート、
m-ビフェニルオキシエチル（メタ）アクリレート、
p-ビフェニルオキシエチル（メタ）アクリレート、
o-ビフェニルオキシプロピル（メタ）アクリレート、
m-ビフェニルオキシプロピル（メタ）アクリレート、
p-ビフェニルオキシプロピル（メタ）アクリレート等のビフェニルオキシアルキル（メタ）アクリレート；
(o-ビフェニルオキシ)ジエチレングリコール（メタ）アクリレート、

(*m*-ビフェニルオキシ) ジエチレングリコール (メタ) アクリレート、
(*p*-ビフェニルオキシ) ジエチレングリコール (メタ) アクリレート、
(*o*-ビフェニルオキシ) ジプロピレングリコール (メタ) アクリレート、
(*m*-ビフェニルオキシ) ジプロピレングリコール (メタ) アクリレート、
(*p*-ビフェニルオキシ) ジプロピレングリコール (メタ) アクリレート、
(*o*-ビフェニルオキシ) ポリエチレングリコール (メタ) アクリレート、
(*m*-ビフェニルオキシ) ポリエチレングリコール (メタ) アクリレート、
(*p*-ビフェニルオキシ) ポリエチレングリコール (メタ) アクリレート、
(*o*-ビフェニルオキシ) ポリプロピレングリコール (メタ) アクリレート
、
(*m*-ビフェニルオキシ) ポリプロピレングリコール (メタ) アクリレート
、
(*p*-ビフェニルオキシ) ポリプロピレングリコール (メタ) アクリレート
等の
ビフェニルオキシポリアルキレングリコール (メタ) アクリレートが挙げら
れる。

[0136] (13) 多官能性不飽和化合物としては、例えば、2官能モノマー、3官能以上のモノマーや、ウレタン (メタ) アクリレート類、ポリウレタン (メタ) アクリレート類、チオウレタン (メタ) アクリレート類、ポリチオウレタン (メタ) アクリレート類、前出のエポキシ (メタ) アクリレート類、エステル (メタ) アクリレート類、ポリエステル (メタ) アクリレート類、ポリエーテル (メタ) アクリレート類等が挙げられる。

[0137] そして、2官能モノマーの具体例としては、例えば、
エチレングリコールジ (メタ) アクリレート、
ジエチレングリコールジ (メタ) アクリレート、
トリエチレングリコールジ (メタ) アクリレート、
テトラエチレングリコールジ (メタ) アクリレート、
ポリエチレングリコールジ (メタ) アクリレート、

プロピレングリコールジ（メタ）アクリレート、
ジプロピレングリコールジ（メタ）アクリレート、
トリプロピレングリコールジ（メタ）アクリレート、
ポリプロピレングリコールジ（メタ）アクリレート、
ブチレングリコールジ（メタ）アクリレート、
ネオペンチルグリコールジ（メタ）アクリレート、
エチレンオキサイド変性ビスフェノールA型ジ（メタ）アクリレート、
プロピレンオキサイド変性ビスフェノールA型ジ（メタ）アクリレート、
1，6－ヘキサンジオールジ（メタ）アクリレート、
1，6－ヘキサンジオールエチレンオキサイド変性ジ（メタ）アクリレート
、
グリセリンジ（メタ）アクリレート、
ペンタエリスリトールジ（メタ）アクリレート、
エチレングリコールジグリシジルエーテルジ（メタ）アクリレート、
ジエチレングリコールジグリシジルエーテルジ（メタ）アクリレート、
フタル酸ジグリシジルエステルジ（メタ）アクリレート、
ヒドロキシピバリン酸変性ネオペンチルグリコールジ（メタ）アクリレート
、
イソシアヌル酸エチレンオキサイド変性ジアクリレート、
2－（メタ）アクリロイルオキシエチルアシッドホスフェートジエステル等
が挙げられる。

[0138] また、3官能以上のモノマーの具体例としては、例えば、

トリメチロールプロパントリ（メタ）アクリレート、
ジトリメチロールプロパンテトラ（メタ）アクリレート、
ペンタエリスリトールトリ（メタ）アクリレート、
ペンタエリスリトールテトラ（メタ）アクリレート、
ジペンタエリスリトールトリ（メタ）アクリレート、
ジペンタエリスリトールテトラ（メタ）アクリレート、

ジペンタエリスリトールペンタ（メタ）アクリレート、
ジペンタエリスリトールヘキサ（メタ）アクリレート、
トリ（メタ）アクリロイルオキシエトキシトリメチロールプロパン、
グリセリンポリグリシジルエーテルポリ（メタ）アクリレート、
トリス（2－（メタ）アクリロイルオキシエチル）イソシアヌレート、
イソシアヌル酸エチレンオキサイド変性トリ（メタ）アクリレート、
エチレンオキサイド変性ジペンタエリスリトールペンタ（メタ）アクリレート、
エチレンオキサイド変性ジペンタエリスリトールヘキサ（メタ）アクリレート、
エチレンオキサイド変性ペンタエリスリトールトリ（メタ）アクリレート、
エチレンオキサイド変性ペンタエリスリトールテトラ（メタ）アクリレート、
コハク酸変性ペンタエリスリトールトリ（メタ）アクリレート等が挙げられる。

[0139] 前述の重合性モノマー以外にも、

ジビニルベンゼン、ピペリレン、イソプレン、ペンタジエン、ビニルシクロヘキセン、クロロプレン、ブタジエン、メチルブタジエン、シクロペンタジエン、メチルペンタジエン、アクリロニトリル、メタクリロニトリル、酢酸ビニル、プロピオン酸ビニル、ステアリン酸ビニル、塩化ビニル、塩化ビニリデン、アルキルビニルエーテル、ビニルトルエン、ビニルピリジン、ビニルピロリドン、イタコン酸ジアルキルエステル、フマル酸ジアルキルエステル、アリルアルコール、塩化アクリロイル、メチルビニルケトン、N－アクリルアミドメチルトリメチルアンモニウムクロライド、アリルトリメチルアンモニウムクロライド、ジメチルアリルビニルケトン、2－クロルエチルビニルエーテル、トリアリルイソシアヌレート、テトラアリルグリコールウリルや、
N－ビニルピロリドン、N－ビニルカプロラクタム、エチレングリコールジ

アリルカーボネート、トリメリット酸トリアリルエステル、
トリフルオロエチル（メタ）アクリレート、
トリブロモベンジル（メタ）アクリレート、
パーフルオロオクチルエチル（メタ）アクリレート、
含硫黄（メタ）アクリレート、
含硫黄多官能（メタ）アクリレート、
（メタ）アクリロイルオキシプロピルトリス（メトキシ）シラン等が挙げられる。

[0140] 第1の樹脂組成物は、本発明のアゾール化合物を必須成分として含有し、必要により、前述の第1の硬化性化合物を含有するが、この第1の硬化性化合物としては、前述の重合性モノマーと重合性オリゴマーを組み合わせ使用してよく、重合性モノマーとしては、先に例示した重合性モノマーを組み合わせ使用してよく（種類の異なる重合性モノマーを組み合わせ使用してよく）、重合性オリゴマーについても、種類の異なる重合性オリゴマーを組み合わせ使用してよい。

[0141] 第1の樹脂組成物中における、本発明のアゾール化合物と第1の硬化性化合物の各々の含有量の割合については、第1の硬化性化合物の含有量が、本発明のアゾール化合物の含有量に対して、0～1000倍量（重量比）の範囲における適宜の割合とすることが好ましく、0.01～100倍量（重量比）の範囲における適宜の割合とすることがより好ましい。

[0142] 第1の樹脂組成物において、チオール化合物を硬化剤として含有してもよい。チオール化合物としては、例えば、
エタンジチオール、プロパンジチオール、ヘキサメチレンジチオール、デカメチレンジチオール、トリレン-2，4-ジチオール、2，2-ビス（メルカプトメチル）-1，3-プロパンジチオール、2-（メルカプトメチル）-2-メチル-1，3-プロパンジチオール、2-エチル-2-（メルカプトメチル）-1，3-プロパンジチオール等の脂肪族チオール化合物；
ベンゼンジチオール、トルエンジチオール、キシレンジチオール（p-キシ

レンジチオール)等の芳香族チオール化合物；

化学式 (VI) で示される 1, 4-ジチアン環含有ポリチオール化合物等の環状スルフィド化合物；

3-チアペンタン-1, 5-ジチオール、4-メルカプトメチル-3, 6-ジチア-1, 8-オクタンジチオール等のメルカプトアルキルスルフィド化合物；

ペンタエリスリトールテトラキス (3-メルカプトプロピオネート) 等のメルカプトプロピオン酸エステル；

エポキシ樹脂末端メルカプト化合物；

3, 6-ジオキサー-1, 8-オクタンジチオール、化学式 (VII) で示されるメルカプトアルキルエーテルジスルフィド化合物、

2, 2'-[[2, 2-ビス[(2-メルカプトエトキシ)メチル]-1, 3-プロパンジイル]ビス(オキシ)]ビスエタンチオール、

3, 3'-[[2, 2-ビス[(3-メルカプトプロポキシ)メチル]-1, 3-プロパンジイル]ビス(オキシ)]ビス-1-プロパンチオール、

3-[[2, 2-ビス[(3-メルカプトプロポキシ)メチル]ブトキシ]-1-プロパンチオール、

3-(3-メルカプトプロポキシ)-2, 2-ビス[(3-メルカプトプロポキシ)メチル]-1-プロパノール、

2, 2-ビス[(3-メルカプトプロポキシ)メチル]-1-ブタノール等のメルカプトアルキルエーテル化合物；

1, 3, 4, 6-テトラキス(2-メルカプトエチル)グリコールウリル、

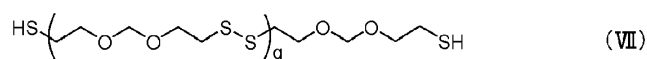
1, 3, 4, 6-テトラキス(3-メルカプトプロピル)グリコールウリルが挙げられ、これらを組み合わせて使用してもよい。

[0143] [化15]



[0144] (式 (VI) 中、p は、同一または異なって、1～5の整数を表す。)

[0145] [化16]



[0146] (式 (VII) 中、 q は、1 ～ 20 の整数を表す。)

[0147] 第1の樹脂組成物中において、チオール化合物の含有量は、硬化性化合物（本発明のアゾール化合物と第1の硬化性化合物の合計）100重量部に対し、0.1～100重量部であることが好ましく、0.5～20重量部であることがより好ましい。

[0148] 第1の樹脂組成物を重合（硬化）させる方法としては、光硬化および熱硬化させる方法が挙げられる。

光硬化させる方法としては、活性エネルギー線を照射する方法、好ましくは光重合開始剤を併用する方法が挙げられる。活性エネルギー線としては、光、放射線、電磁波や電子線等が挙げられ、電子線または紫外～赤外の波長域の光が好ましい。光源としては、例えば、紫外線の照射の場合には超高压水銀光源またはメタルハライド光源を、可視光線の照射の場合にはメタルハライド光源またはハロゲン光源を、赤外線の照射の場合にはハロゲン光源を、各々使用することができる。また、近年、利用が広がっている、種々の波長の発光に対応したレーザーやLED等の光源を使用してもよい。

活性エネルギー線の照射量は、光源の種類などに応じて適宜設定することができる。

[0149] 光重合開始剤は、光ラジカル重合開始剤および、光アニオン重合開始剤から選択することができ、何れも樹脂組成物中に含有させればよい。なお、光硬化においては、生産効率や硬化物の特性を高める為に、熱重合（熱硬化）の手段を併用してもよい。

[0150] 光ラジカル重合開始剤としては、一般に使用される光ラジカル重合開始剤であれば特に制限無く使用可能であるが、例えば、アセトフェノン、ジエトキシアセトフェノン、2,2-ジメトキシ-2-フェニルアセトフェノン、2,2-ジエトキシ-2-フェニルアセトフェノン

、1, 1-ジクロロアセトフェノン、2-ヒドロキシ-2-メチル-1-フェニルプロパン-1-オン、アセトフェノンジメチルケタール、ベンジルジメチルケタール、4-(2-ヒドロキシエトキシ)フェニル-(2-ヒドロキシ-2-プロピル)ケトン、1-ヒドロキシシクロヘキシルフェニルケトン、2-メチル-2-モルホリノ(4-チオメチルフェニル)プロパン-1-オン、2-ベンジル-2-ジメチルアミノ-1-(4-モルホリノフェニル)ブタノン、2-ヒドロキシ-2-メチル-1-[4-(1-メチルビニル)フェニル]プロパノンオリゴマー等のアセトフェノン類；ベンゾイン、ベンゾインメチルエーテル、ベンゾインエチルエーテル、ベンゾインプロピルエーテル、ベンゾインイソプロピルエーテル、ベンゾインイソブチルエーテル等のベンゾイン類；ベンゾフェノン、ヒドロキシベンゾフェノン、o-ベンゾイル安息香酸メチル、4-フェニルベンゾフェノン、4-ベンゾイル-4'-メチル-ジフェニルサルファイド、4, 4'-ビス(メチルアミノ)ベンゾフェノン、3, 3', 4, 4'-テトラ(t-ブチルパーオキシカルボニル)ベンゾフェノン、2, 4, 6-トリメチルベンゾフェノン、4-ベンゾイル-N, N-ジメチル-N-[2-(1-オキソ-2-プロペニルオキシ)エチル]ベンゼンメタナミニウムブロミド、(4-ベンゾイルベンジル)トリメチルアンモニウムクロリド等のベンゾフェノン類；2-イソプロピルチオキサントン、4-イソプロピルチオキサントン、2, 4-ジエチルチオキサントン、2, 4-ジクロロチオキサントン、1-クロロ-4-プロポキシチオキサントン、2-(3-ジメチルアミノ-2-ヒドロキシ)-3, 4-ジメチル-9H-チオキサントン-9-オンメソクロリド等のチオキサントン類；2, 4, 6-トリメチルベンゾイル-ジフェニルフォスフィンオキサイド、ビス(2, 6-ジメトキシベンゾイル)-2, 4, 4-トリメチル-ペンチルフォスフィンオキサイド、ビス(2, 4, 6-トリメチルベンゾイル)-フェニルフォスフィンオキサイド等のアシルフォスフィンオキサイド類；メチルフェニルグリオキシレート等が挙げられる。これらは単独で、又は2種以上を組み合わせて使用してもよい。

[0151] 光アニオン重合開始剤としては、一般に使用されるものであれば、特に制限なく使用可能であり、オニウム塩類やカーバメート類等が挙げられる。

オニウム塩類としては、例えば、1, 2-ジイソプロピル-3-(ビス(ジメチルアミノ)メチレン)グアニジウム 2-(3-ベンゾイルフェニル)プロピオナート、1, 2-ジシクロヘキシル-4, 4, 5, 5-テトラメチルピグアニジウム n-ブチルトリフェニルボレート等が挙げられ、カーバメート類としては、例えば、2-ニトロフェニルメチルピペリジーン-1-カルボキシレート、1-(アントラキノーン-2-イル)エチルイミダゾールカルボキシレート、1-(3-(2-ヒドロキシフェニル)-2-プロペノイル)ピペリジン、9-アントラニルメチルジエチルカーバメート等が挙げられる。

[0152] 第1の樹脂組成物中において、光重合開始剤の含有量は、硬化性化合物（本発明のアゾール化合物と第1の硬化性化合物の合計）100重量部に対し、0.1～20重量部であることが好ましく、0.2～15重量部であることがより好ましく、0.5～10重量部であることがさらに好ましい。

[0153] また、第1の樹脂組成物には光ラジカル重合開始剤の助剤を含んでいてもよい。助剤として、例えば、

トリエタノールアミン、トリイソプロパノールアミン、4, 4'-ジメチルアミノベンゾフェノン（ミヒラーケトン）、4, 4'-ジエチルアミノベンゾフェノン、2-ジメチルアミノエチル安息香酸、4-ジメチルアミノ安息香酸エチル、4-ジメチルアミノ安息香酸（n-ブトキシ）エチル、4-ジメチルアミノ安息香酸イソアミル、4-ジメチルアミノ安息香酸2-エチルヘキシル、2, 4-ジエチルチオキサンソン、2, 4-ジイソプロピルチオキサンソン等が挙げられる。

[0154] 加えて、第1の樹脂組成物には、感光波長領域を拡大し感度を高めるべく、増感剤を含んでいてもよい。増感剤としては、例えば、

ベンゾフェノン、p, p'-テトラメチルジアミノベンゾフェノン、p, p'-テトラエチルアミノベンゾフェノン、2-クロロチオキサントン、アン

トロン、9-エトキシアントラセン、アントラセン、ピレン、ペリレン、フェノチアジン、チオキサントン、ベンジル、アクリジンオレンジ、ベンゾフラビン、セトフラビン-T、9, 10-ジフェニルアントラセン、9-フルオレノン、アセトフェノン、フェナントレン、2-ニトロフルオレン、5-ニトロアセナフテン、ベンゾキノン、2-クロロ-4-ニトロアニリン、N-アセチル-p-ニトロアニリン、p-ニトロアニリン、N-アセチル-4-ニトロ-1-ナフチルアミン、ピクラミド、アントラキノン、2-エチルアントラキノン、2-tert-ブチルアントラキノン、1, 2-ベンズアントラキノン、3-メチル-1, 3-ジアザー1, 9-ベンズアンスロン、ジベンザルアセトン、1, 2-ナフトキノン、3, 3'-カルボニルビス(5, 7-ジメトキシカルボニルクマリン)、コロネン等が挙げられる。

[0155] 第1の樹脂組成物中において、増感剤の含有量は、例えば、硬化性化合物(本発明のアゾール化合物と第1の硬化性化合物の合計)100重量部に対し、0.1~20重量部であることが好ましく、0.2~15重量部であることがより好ましく、0.5~10重量部であることがさらに好ましい。

[0156] 一方、第1の樹脂組成物を熱硬化させる方法としては、熱重合開始剤を併用する方法が挙げられる。熱重合開始剤は、熱ラジカル重合開始剤および、熱アニオン重合開始剤から選択することができ、何れも樹脂組成物中に含有させればよい。

熱硬化の条件については、加熱温度/加熱時間を適宜設定することができるが、60~130℃/30~240分間の範囲に設定することが好ましく、70~125℃/30~120分間の範囲に設定することがより好ましい。

加熱手段としては、熱風循環、赤外線加熱、高周波加熱等の方法が挙げられる。また、硬化装置としては、密閉式硬化炉や連続硬化が可能なトンネル炉等を用いることができる。

[0157] 熱ラジカル重合開始剤としては、一般に使用されるものであれば、特に制限なく使用可能であり、例えば、ジイソプロピルパーオキシジカーボネート

、ベンゾイルパーオキシド、*t*-ブチルパーオキシイソブチレート、*t*-ヘキシルパーオキシイソプロピルモノカーボネート、*t*-ヘキシルパーオキシ2-エチルヘキサノエート、1, 1, 3, 3-テトラメチルブチルパーオキシ2-エチルヘキサノエート、*t*-ブチルパーオキシピバレート、*t*-ヘキシルパーオキシピバレート、*t*-ブチルパーオキシネオデカノエート、*t*-ヘキシルパーオキシネオデカノエート、1, 1, 3, 3-テトラメチルブチルパーオキシネオデカノエート、1, 1-ビス(*t*-ヘキシルパーオキシ)シクロヘキサン、ベンゾイルパーオキシド、3, 5, 5-トリメチルヘキサノイルパーオキシド、ラウロイルパーオキシド等の過酸化物、アゾビスイソブチロニトリル、2, 2'-アゾビス(2-メチルブチロニトリル)、ジメチル2, 2'-アゾビス(2-メチルプロピオネート)等のアゾ系化合物が挙げられ、これらを組み合わせて使用してもよい。

[0158] 熱アニオン重合開始剤としては、一般に使用されるものであれば、特に制限なく使用可能であり、例えば、アミン類、イミダゾール類等が挙げられ、これらを組み合わせて使用してもよい。

アミン類としては、ジエチレントリアミン、トリエチレントトラミン、イソホロンジアミン、キシリレンジアミン、ジアミノジフェニルメタン、1, 3, 4, 6-テトラキス(3-アミノプロピル)グリコールウリル等が挙げられ、

イミダゾール類としては、2-メチルイミダゾール、2-エチル-4-メチルイミダゾール、2-フェニルイミダゾール等が挙げられる。

[0159] 第1の樹脂組成物中における、熱重合開始剤の含有量は、樹脂組成物全体(総量)に対して、0.001~20重量%の割合であることが好ましく、0.01~10重量%の割合であることがより好ましい。

[0160] なお、第1の樹脂組成物において、添加剤(改質剤)として、エポキシ樹脂(エポキシ化合物)を含有する場合、光カチオン重合開始剤または熱カチオン重合開始剤を使用してもよい。

光カチオン重合開始剤としては、一般に使用されるものであれば、特に制

限なく使用可能であり、オニウム塩類や有機金属錯体類等が挙げられる。

オニウム塩類としては、例えば、ジアゾニウム塩、スルホニウム塩、ヨードニウム塩が挙げられ、

有機金属錯体類としては、例えば、鉄-アレン錯体、チタノセン錯体、アリアルシラノール-アルミニウム錯体等が挙げられる。

市販の光カチオン重合開始剤としては、例えば、A D E K A 社製の「アデカオプトマー S P - 1 5 0 (商品名)」、「アデカオプトマー S P - 1 7 0 (商品名)」、ゼネラルエレクトリック社製の「U V E - 1 0 1 4 (商品名)」、サートマー社製の「C D - 1 0 1 2 (商品名)」、サンアプロ社製の「C P I - 1 0 0 P (商品名)」等が挙げられる。

光カチオン重合開始剤の対アニオンとしては、 SbF_6^- 、 AsF_6^- 、 $B(C_6F_5)_4^-$ 、 PF_6^- 等が挙げられる。

[0161] 熱カチオン重合開始剤としては、一般に使用されるものであれば、特に制限なく使用可能であり、例えば、第四級アンモニウム塩、ホスホニウム塩、スルホニウム塩等の各種オニウム塩類や、有機金属錯体類等が挙げられ、これらを組み合わせて使用してもよい。

市販のオニウム塩類としては、例えば、A D E K A 社製の「アデカオプトン C P - 6 6 (商品名)」、「アデカオプトン C P - 7 7 (商品名)」、三新化学工業社製の「サンエイド S I - 6 0 L (商品名)」、「サンエイド S I - 8 0 L (商品名)」、「サンエイド S I - 1 0 0 L (商品名)」、日本曹達社製の「C I シリーズ (商品名)」等が挙げられる。

また、有機金属錯体類としては、アルコキシシラン-アルミニウム錯体等が挙げられる。

[0162] 第 1 の樹脂組成物は、更に、本発明の効果を阻害しない限りにおいて、顔料（チタン白、シアニンブルー、ウォッチングレッド、ベンガラ、カーボンブラック、アニリンブラック、マンガンブルー、鉄黒、ウルトラマリンブルー、ハンザレッド、クロームイエロー、クロームグリーン等）、無機充填剤（炭酸カルシウム、カオリン、クレイ、タルク、マイカ、硫酸バ

リウム、リトボン、石コウ、ステアリン酸亜鉛、パーライト、石英、石英ガラス、熔融シリカ、球状シリカ等のシリカ粉等、球状アルミナ、破碎アルミナ、酸化マグネシウム、酸化ベリリウム、酸化チタン、酸化ジルコニウム等の酸化物類、窒化ホウ素、窒化ケイ素、窒化アルミニウム等の窒化物類、炭化ケイ素等の炭化物類、水酸化アルミニウム、水酸化マグネシウム等の水酸化物類、銅、銀、鉄、アルミニウム、ニッケル、チタン等の金属類や合金類、ダイヤモンド、カーボン等の炭素系材料等)、

熱可塑性樹脂および熱硬化性樹脂(高密度、中密度、低密度の各種ポリエチレン、ポリプロピレン、ポリブテン、ポリペンテン等の単独重合体、エチレン-プロピレン共重合体、ナイロン-6、ナイロン-6, 6等のポリアミド系樹脂、塩化ビニル系樹脂、ニトロセルロース系樹脂、塩化ビニリデン系樹脂、アクリル系樹脂(前述の重合性モノマーを除く硬化性化合物を包含する)、アクリルアミド系樹脂、スチレン系樹脂、ビニルエステル系樹脂、ポリエステル系樹脂、フェノール樹脂(フェノール化合物)、エポキシ樹脂(エポキシ化合物)、シリコン系樹脂、フッ素系樹脂、アクリルゴム、ウレタンゴムなどの各種エラストマー樹脂、メタクリル酸メチル-ブタジエンスチレン系グラフト共重合体やアクリロニトリル-ブタジエンスチレン系グラフト共重合体などのグラフト共重合体等)、

補強剤(ガラス繊維、炭素繊維等)、

垂れ止め剤(水添ヒマシ油、微粒子無水珪酸等)、

艶消し剤(微粉シリカ、パラフィンワックス等)、

研削剤(ステアリン酸亜鉛等)、

内部離型剤(ステアリン酸等の脂肪酸、ステアリン酸カルシウムの脂肪酸金属塩、ステアリン酸アミド等の脂肪酸アミド、脂肪酸エステル、ポリオレフィンワックス、パラフィンワックス等)、

希釈剤(n-ブチルアルコール、メチルエチルケトン(MEK)、プロピレングリコールモノメチルエーテルアセテート(PGMEA)、トルエン等の有機溶剤、水、有機溶剤と水の混合液)、

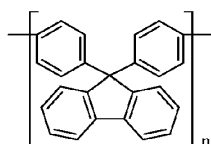
カップリング剤（N－（2－アミノエチル）－3－アミノプロピルトリメトキシシラン、3－グリシドキシプロピルトリメトキシシラン等のシランカップリング剤等）、

連鎖移動剤（ペンタエリスリトールテトラキス（3－メルカプトプロピオネート）等のチオール化合物等）、

界面活性剤、レベリング剤、消泡剤、香料、難燃化剤、染料等の添加剤（改質剤）を含有してもよい。

[0163] 前記の熱可塑性樹脂および熱硬化性樹脂には、化学式（VIII）に代表されるカルド構造（炭素原子に4つの芳香環が結合した骨格構造）を有する樹脂（化合物）が包含される。

[0164] [化17]



(VIII)

[0165] （式（VIII）中、nは重合度を表す。）

[0166] カルド構造を有する化合物としては、9，9－ビス（4－グリシジルオキシフェニル）フルオレン、9，9－ビス（4－ヒドロキシフェニル）フルオレン、9，9－ビス（4－ヒドロキシー3－メチルフェニル）フルオレン、9，9－ビス〔4－（2－（メタ）アクリロイルオキシエトキシ）フェニル〕フルオレン、9，9－ビス〔4－（3－（メタ）アクリロイルオキシ2－ヒドロキシプロポキシ）フェニル〕フルオレン、9，9－ビス（シアノメチル）フルオレン、9，9－ビス（3－アミノプロピル）フルオレン等のモノマーが挙げられる。

[0167] 第1の樹脂組成物中において、添加剤（改質剤）の含有量は、樹脂組成物全体（総量）に対して、0.01～50重量%の割合で含有してもよい。

[0168] 第1の樹脂組成物の調製方法に特に制限はなく、例えば、本発明のアゾール化合物と、第1の硬化性化合物、光重合開始剤および／または熱重合開始

剤、添加剤（改質剤）を混合し、あるいは、希釈剤（有機溶剤）に本発明のナフタレン化合物を溶解または分散させた溶液と、第1の硬化性化合物、光重合開始剤および／または熱重合開始剤、添加剤（改質剤）を混合することにより調製することができる。

混合の手段としては、公知の方法を採用することができる。

[0169] （第2の樹脂組成物）

第2の樹脂組成物は、本発明のアゾール化合物を必須成分として含有し、必要により、第2の硬化性化合物（分子内にエポキシ基、オキセタン環またはビニル基を有する化合物）を含有する。

第2の硬化性化合物としては、重合性モノマーと、重合性モノマーが一部重合した構造を有する重合性オリゴマー（半硬化物）の両者を包含する。

[0170] この重合性モノマーの例としては、公知のエポキシ化合物（注：エポキシ樹脂と称されることがある）、オキセタン化合物、エポキシ・オキセタン化合物（分子内にオキシラン環とオキセタン環を有する）、ビニル系モノマー等が挙げられる。

[0171] エポキシ化合物としては、分子内にオキシラン環（エポキシ基／グリシジル基）を有するものであれば、特に制限なく使用可能であり、例えば、ビスフェノールA、ビスフェノールF、ビスフェノールAD、カテコール、レゾルシノール等の多価フェノールまたはグリセリンやポリエチレングリコール等の多価アルコールとエピクロルヒドリンを反応させて得られるポリグリシジルエーテル類；
p-ヒドロキシ安息香酸、 β -ヒドロキシナフトエ酸等のヒドロキシカルボン酸とエピクロルヒドリンを反応させて得られるグリシジルエーテルエステル類；
フタル酸、テレフタル酸等のポリカルボン酸とエピクロルヒドリンを反応させて得られるポリグリシジルエステル類；
1, 3, 4, 6-テトラグリシジルグリコールウリル等の分子内に2つ以上のエポキシ基を有するグリシジルグリコールウリル化合物；

3' , 4' -エポキシシクロヘキシルメチル 3, 4 -エポキシシクロヘキサンカルボキシレート等の脂環式エポキシ化合物 ;

トリグリシジルイソシアヌレート、ヒダントイン型エポキシ化合物等の含窒素環状エポキシ化合物 ;

更に、エポキシ化フェノールノボラック樹脂、エポキシ化クレゾールノボラック樹脂、エポキシ化ポリオレフィン、環式脂肪族エポキシ樹脂、ウレタン変性エポキシ樹脂の他、

炭素-炭素二重結合およびグリシジル基を有する有機化合物と、SiH基を有するケイ素化合物とのヒドロシリル化付加反応によるエポキシ変性オルガノポリシロキサン化合物（例えば、日本国特開2004-99751号公報や日本国特開2006-282988号公報に開示されたエポキシ変性オルガノポリシロキサン化合物）等が挙げられ、これらを組み合わせて使用してもよい。

[0172] オキセタン化合物としては、分子内にオキセタン環（オキセタニル基／オキセタン基）を有するものであれば、特に制限なく使用可能であり、例えば、

3-エチル-3-ヒドロキシメチルオキセタン、

3-(メタ)アリルオキシメチル-3-エチルオキセタン、

(3-エチル-3-オキセタニルメトキシ)メチルベンゼン、

4-フルオロ-[1-(3-エチル-3-オキセタニルメトキシ)メチル]ベンゼン、

4-メトキシ-[1-(3-エチル-3-オキセタニルメトキシ)メチル]ベンゼン、

[1-(3-エチル-3-オキセタニルメトキシ)エチル]フェニルエーテル、

イソブトキシメチル(3-エチル-3-オキセタニルメチル)エーテル、

イソボルニルオキシエチル(3-エチル-3-オキセタニルメチル)エーテル、

イソボルニル（3-エチル-3-オキセタニルメチル）エーテル、
2-エチルヘキシル（3-エチル-3-オキセタニルメチル）エーテル、
エチルジエチレングリコール（3-エチル-3-オキセタニルメチル）エーテル、
ジシクロペンタジエン（3-エチル-3-オキセタニルメチル）エーテル、
ジシクロペンテニルオキシエチル（3-エチル-3-オキセタニルメチル）エーテル、
ジシクロペンテニル（3-エチル-3-オキセタニルメチル）エーテル、
テトラヒドロフルフリル（3-エチル-3-オキセタニルメチル）エーテル、
、
2-ヒドロキシエチル（3-エチル-3-オキセタニルメチル）エーテル、
2-ヒドロキシプロピル（3-エチル-3-オキセタニルメチル）エーテル、
、
ブトキシエチル（3-エチル-3-オキセタニルメチル）エーテル、
ボルニル（3-エチル-3-オキセタニルメチル）エーテル、
3, 7-ビス（3-オキセタニル）-5-オキサノナン、
3, 3'-（1, 3-（2-メチレニル）プロパンジイルビス（オキシメチレン））ビス-（3-エチルオキセタン）、
1, 4-ビス〔（3-エチル-3-オキセタニルメトキシ）メチル〕ベンゼン、
1, 2-ビス〔（3-エチル-3-オキセタニルメトキシ）メチル〕エタン、
、
1, 3-ビス〔（3-エチル-3-オキセタニルメトキシ）メチル〕プロパン、
エチレングリコールビス（3-エチル-3-オキセタニルメチル）エーテル、
、
ジシクロペンテニルビス（3-エチル-3-オキセタニルメチル）エーテル、
、

トリエチレングリコールビス（3-エチル-3-オキセタニルメチル）エーテル、
テトラエチレングリコールビス（3-エチル-3-オキセタニルメチル）エーテル、
トリシクロデカンジイルジメチレン（3-エチル-3-オキセタニルメチル）エーテル、
トリメチロールプロパントリス（3-エチル-3-オキセタニルメチル）エーテル、
1, 4-ビス（3-エチル-3-オキセタニルメトキシ）ブタン、
1, 6-ビス（3-エチル-3-オキセタニルメトキシ）ヘキサン、
ペンタエリスリトールトリス（3-エチル-3-オキセタニルメチル）エーテル、
ペンタエリスリトールテトラキス（3-エチル-3-オキセタニルメチル）エーテル、
ポリエチレングリコールビス（3-エチル-3-オキセタニルメチル）エーテル、
ジペンタエリスリトールヘキサキス（3-エチル-3-オキセタニルメチル）エーテル、
ジペンタエリスリトールペンタキス（3-エチル-3-オキセタニルメチル）エーテル、
ジペンタエリスリトールテトラキス（3-エチル-3-オキセタニルメチル）エーテル、
カプロラクトン変性ジペンタエリスリトールヘキサキス（3-エチル-3-オキセタニルメチル）エーテル、
カプロラクトン変性ジペンタエリスリトールペンタキス（3-エチル-3-オキセタニルメチル）エーテル、
ジトリメチロールプロパンテトラキス（3-エチル-3-オキセタニルメチル）エーテル、

EO変性ビスフェノールAビス（3-エチル-3-オキセタニルメチル）エーテル、

PO変性ビスフェノールAビス（3-エチル-3-オキセタニルメチル）エーテル、

EO変性水添ビスフェノールAビス（3-エチル-3-オキセタニルメチル）エーテル、

PO変性水添ビスフェノールAビス（3-エチル-3-オキセタニルメチル）エーテル、

EO変性ビスフェノールF（3-エチル-3-オキセタニルメチル）エーテル等が挙げられる。

[0173] エポキシ・オキセタン化合物としては、分子内にオキシラン環（同上）とオキセタン環（同上）を有するものであれば、特に制限なく使用可能であり、例えば、米国特許第3457193号明細書、日本国特開2005-002191号公報、日本国特開2007-270070号公報、日本国特開2010-111713号公報または日本国特開2011-208089号公報に記載されているものが挙げられる。これらの文献に記載されたエポキシ・オキセタン化合物を参照することにより、本明細書の開示に含む。

[0174] ビニル系モノマーとしては、カチオン重合可能なビニル系モノマーであれば、特に限定なく使用可能であり、例えば、スチレン類、アルケニルエーテル類、インデン、N-ビニルカルバゾールが挙げられ、スチレン類、アルケニルエーテル類が好ましい。

スチレン類としては、例えば、スチレン、o-メチルスチレン、m-メチルスチレン、p-メチルスチレン、o-メトキシスチレン、m-メトキシスチレン、p-メトキシスチレン、o-クロロスチレン、m-クロロスチレン、p-クロロスチレン等が挙げられる。

アルケニルエーテル類としては、例えば、メチルビニルエーテル、エチルビニルエーテル、プロピルビニルエーテル、イソプロピルビニルエーテル、n-ブチルビニルエーテル、sec-ブチルビニルエーテル、tert-ブ

チルビニルエーテル、イソブチルビニルエーテル、n-アミルビニルエーテル、イソアミルビニルエーテル等のアルキルビニルエーテル類；トリフルオロメチルビニルエーテル、ペンタフルオロエチルビニルエーテル、2, 2, 2-トリフルオロエチルビニルエーテル等のフルオロアルキルビニルエーテル類；2-メトキシエチルビニルエーテル、2-エトキシエチルビニルエーテル、2-テトラヒドロピラニルビニルエーテル、2-テトラヒドロフラニルビニルエーテル等のアルコキシアルキルビニルエーテル類；シクロペンチルビニルエーテル、シクロヘキシルビニルエーテル、シクロヘプチルビニルエーテル、シクロオクチルビニルエーテル、2-ビシクロ[2. 2. 1]ヘプチルビニルエーテル、2-ビシクロ[2. 2. 2]オクチルビニルエーテル、8-トリシクロ[5. 2. 1. 0^{2, 6}]デカニルビニルエーテル、1-アダマンチルビニルエーテル、2-アダマンチルビニルエーテル等のシクロアルキルビニルエーテル類；フェニルビニルエーテル、4-メチルフェニルビニルエーテル、4-トリフルオロメチルフェニルビニルエーテル、4-フルオロフェニルビニルエーテル等のアリールビニルエーテル類；ベンジルビニルエーテル、4-フルオロベンジルビニルエーテル等のアリールアルキルビニルエーテル類等が挙げられる。

[0175] 第2の樹脂組成物は、本発明のアゾール化合物を必須成分として含有し、必要により、前述の第2の硬化性化合物を含有するが、この第2の硬化性化合物としては、前述の重合性モノマーと重合性オリゴマーを組み合わせ使用してよく、重合性モノマーとしては、先に例示した重合性モノマーを組み合わせ使用してよく（種類の異なる重合性モノマーを組み合わせ使用してよく）、重合性オリゴマーについても、種類の異なる重合性オリゴマーを組み合わせ使用してよい。

第2の樹脂組成物中における、本発明のアゾール化合物と第2の硬化性化合物の各々の含有量の割合については、第2の硬化性化合物の含有量が、本発明のアゾール化合物の含有量に対して、0～1000倍量（重量比）の範囲における適宜の割合とすることが好ましく、0.01～100倍量（重量

比)の範囲における適宜の割合とすることがより好ましい。

- [0176] 第2の樹脂組成物を重合(硬化)させる方法としては、光硬化および熱硬化させる方法が挙げられる。

光硬化させる方法としては、活性エネルギー線を照射する方法、好ましくは光重合開始剤を併用する方法が挙げられる。活性エネルギー線としては、光、放射線、電磁波や電子線等が挙げられ、電子線または紫外～赤外の波長域の光が好ましい。光源としては、例えば、紫外線の照射の場合には超高圧水銀光源またはメタルハライド光源を、可視光線の照射の場合にはメタルハライド光源またはハロゲン光源を、赤外線の照射の場合にはハロゲン光源を、各々使用することができる。また、近年、利用が広がっている、種々の波長の発光に対応したレーザーやLED等の光源を使用してもよい。

活性エネルギー線の照射量は、光源の種類などに応じて適宜設定することができる。

- [0177] 光重合開始剤としては、光カチオン重合開始剤を採用することができ、必要に応じて、光ラジカル重合開始剤を併用することができ、これらを樹脂組成物中に含有させればよい。なお、光硬化においては、生産効率や硬化物の特性を高める為に、熱硬化の手段を併用してもよい。

- [0178] 光カチオン重合開始剤としては、一般に用いられるものであれば特に制限無く用いることができ、オニウム塩類や有機金属錯体類等が挙げられる。光カチオン重合開始剤としては、前述の光カチオン重合開始剤を使用できる。

第2の樹脂組成物における光カチオン重合開始剤の含有量は、0.001～20重量%の割合であることが好ましく、0.01～10重量%の割合であることがより好ましい。

- [0179] 光ラジカル重合開始剤としては、前述の光ラジカル重合開始剤を使用できる。

第2の樹脂組成物における光ラジカル重合開始剤の含有量は、0.001～20重量%の割合であることが好ましく、0.01～10重量%の割合であることがより好ましい。

[0180] また、第2の樹脂組成物を光硬化させる際には、前述の増感剤を用いることができる。

[0181] 一方、第2の樹脂組成物を熱硬化させる際には、熱重合開始剤を用いることができる。熱重合開始剤としては、熱カチオン重合開始剤を採用することができ、これを樹脂組成物中に含有させればよい。

加熱手段としては、熱風循環、赤外線加熱、高周波加熱等の方法が挙げられる。また、硬化装置としては、密閉式硬化炉や連続硬化が可能なトンネル炉等を用いることができる。

加熱（硬化）温度および加熱（硬化）時間については、被照射物である樹脂組成物の組成や形状（厚み）を考慮して、適宜設定されればよい。

[0182] 熱カチオン重合開始剤としては、一般に用いられるものであれば特に制限無く用いることができ、第四級アンモニウム塩、ホスホニウム塩およびスルホニウム塩等の各種オニウム塩類、ならびに有機金属錯体類等が挙げられる。熱カチオン重合開始剤としては、前述の熱カチオン重合開始剤を使用できる。

第2の樹脂組成物における熱カチオン重合開始剤の含有量は、0.001～20重量%の割合であることが好ましく、0.01～10重量%の割合であることがより好ましい。

[0183] 第2の樹脂組成物は、更に、本発明の効果を阻害しない限りにおいて、前述の添加剤（改質剤）を、必要により、第2の樹脂組成物全体（総量）に対して、0.01～50重量%の割合で含有してもよい。

[0184] 第2の樹脂組成物の調製方法に特に制限はなく、前述の各成分を所定量計り取って攪拌混合することにより調製することができる。例えば、予備混合の後、ロール混練機、ニーダーや押出機等を用いて、混合あるいは熔融混練することにより調製することができる。必要により、有機溶剤（粘度調整用希釈剤）を用いてもよい。

[0185] 本発明のアゾール化合物を含有する樹脂組成物（以下、「第1の樹脂組成物」と「第2の樹脂組成物」を包含する。）は、低熱膨張性、耐熱性、機械

的強度に優れた硬化物を与えることが期待される。よって、本発明のアゾール化合物を含有する樹脂組成物は、コーティング材、インク、接着剤、粘着剤、ガスバリアフィルム、カラーフィルタ、光学フィルム、光学レンズおよびタッチパネル等を製造する際に使用される材料として好適なものである。

[0186] 前記のコーティング材の用途としては、タッチパネル、プラスチック容器、プラスチックシート、プラスチックフィルム、フィルム型液晶素子、液晶表示装置に使用される偏光板、光学部品、建築内装材（床材、壁材、人工大理石等）などの保護（ハードコート）等が挙げられる。

[0187] 前記のインクとしては、着色インク、印刷インク、UVインク、インクジェット用インク等が挙げられる。これらのインクは、オフセット印刷、フレキソ印刷、グラビア印刷、スクリーン印刷、インクジェット印刷等に使用される。

[0188] 前記の接着剤の用途としては、半導体用、光学用、光学部品用、光導波路結合用、光導波路周辺部材固定用、CD/DVD貼り合せ用等が挙げられる。

[0189] 前記の粘着剤の用途としては、粘（接）着テープ、粘（接）着シート、粘（接）着ラベル等が挙げられる。

[0190] 前記のガスバリアフィルムの用途としては、電子ペーパー、フレキシブルディスプレイ、有機EL素子、有機太陽電池等が挙げられる。

[0191] 前記のカラーフィルタの用途としては、カラー液晶表示装置（カラーフィルタオンアレイ（COA））、カラー撮像素子、有機EL表示装置等が挙げられる。

[0192] 前記の光学フィルムとしては、偏光板の保護フィルム、プリズムシート用支持フィルムや導光フィルム等の液晶表示装置用フィルム、ハードコートフィルム、加飾フィルムや透明導電性フィルム等の機能性フィルム、太陽電池用の耐候（光）性フィルム、LED照明・有機EL照明用フィルム、フレキシブルエレクトロニクス用透明耐熱フィルム等が挙げられる。

[0193] 前記の光学レンズとしては、顕微鏡、内視鏡、望遠鏡、カメラ、眼鏡等の

レンズ、レーザービームプリンターのレンズ、センサー用レンズ、プリズムレンズ、光ディスクのピックアップレンズ等が挙げられる。

[0194] 前記のタッチパネルの用途としては、パソコン、カーナビゲーション、携帯電話、電子辞書、O A ・ F A 機器等が挙げられる。

[0195] 本発明のアゾール化合物を含有する樹脂組成物は、更に、透明材料、光学材料、ダイシングテープ、絶縁材料（電線被覆等）、ソルダーレジストインク、プリント配線板、銅張積層板、樹脂付銅箔、プリプレグ、高電圧絶縁材、層間絶縁材、T F T 用パッシベーション膜、T F T 用ゲート絶縁膜、T F T 用層間絶縁膜、T F T 用透明平坦化膜、絶縁用パッキング、絶縁被覆材、塗料、U V 粉体塗料、成形材料（シート、フィルム、F R P 等）、シーリング材、液晶シール材、表示デバイス用シール材、高耐熱シール材、ポッティング材、封止材（半導体封止材、電気材料用封止材、有機E L やL E D 素子用封止材、各種太陽電池の封止材）、レジスト材（液状レジスト材、着色レジスト材、ドライフィルムレジスト材、ソルダーレジスト材、カラーフィルタレジスト材）、液晶セル用フォトスペーサー材、光造形、太陽電池用材料、燃料電池用材料、表示材料、記録材料、複写機用感光ドラム、電池用固体電解質等の電気・電子分野における材料の他、防振材料、防水材料、防湿材料、熱収縮ゴムチューブ、オーリング、ガス分離膜、コンクリート保護材、ライニング、土壌注入剤、蓄冷熱材、滅菌処理装置用シール材、酸素透過膜等の原料や部材としての利用や、他の樹脂あるいは樹脂組成物（熱可塑性、熱硬化性、光硬化性）に配合される添加剤（改質剤）としての利用が期待される。

実施例

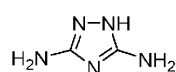
[0196] 以下、本発明を実施例によって具体的に説明するが、本発明はこれらに限定されるものではない。

なお、実施例および合成例において使用した主原料は、以下のとおりである。

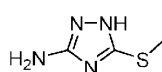
[0197] [主原料]

- ・ 3, 5-ジアミノ-1H-1, 2, 4-トリアゾール（東京化成工業社製。化学式（III-1）参照。）
- ・ 3-アミノ-5-メチルチオ-1H-1, 2, 4-トリアゾール（東京化成工業社製。化学式（III-2）参照。）
- ・ 3, 5-ジメチル-1H-1, 2, 4-トリアゾール（東京化成工業社製。化学式（III-3）参照。）
- ・ 3-クロロ-1H-1, 2, 4-トリアゾール（東京化成工業社製。化学式（III-4）参照。）
- ・ 5-アミノ-1H-テトラゾール（増田化学工業社製。化学式（IV-1）参照。）
- ・ 5-エチルチオ-1H-テトラゾール（東京化成工業社製。化学式（IV-2）参照。）
- ・ 5-フェニル-1H-テトラゾール（東京化成工業社製。化学式（IV-3）参照。）
- ・ 5-ベンジル-1H-テトラゾール（東京化成工業社製。化学式（IV-4）参照。）
- ・ 4-ビニルベンジルクロリド（東京化成工業社製。純度 95.9%。）
- ・ 1H-1, 2, 4-トリアゾール（東京化成工業社製）
- ・ 4-エチルベンジルクロリド（東京化成工業社製）

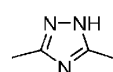
[0198] [化18]



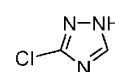
(III-1)



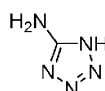
(III-2)



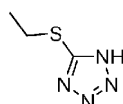
(III-3)



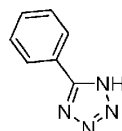
(III-4)



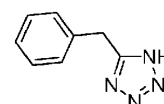
(IV-1)



(IV-2)



(IV-3)



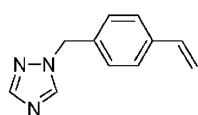
(IV-4)

[0199] 比較例（評価試験）で使用したアゾール化合物は、以下のとおりである。

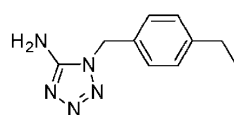
[アゾール化合物]

- ・化学式(41)で示されるアゾール化合物(1-(4-ビニルベンジル)-1H-1,2,4-トリアゾール):合成例1の方法にて合成した。
- ・化学式(42)で示されるアゾール化合物と化学式(43)で示されるアゾール化合物の混合物(5-アミノ-1-(4-エチルベンジル)-1H-テトラゾールと5-アミノ-2-(4-エチルベンジル)-2H-テトラゾール):合成例2の方法にて合成した。

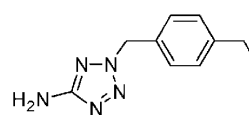
[0200] [化19]



(41)



(42)



(43)

[0201] [合成例1]

<1-(4-ビニルベンジル)-1H-1,2,4-トリアゾールの合成>

1H-1,2,4-トリアゾール10.0g(145mmol)およびN,N-ジメチルホルムアミド56mLからなる溶液を70℃に加熱し、28%ナトリウムメトキシドメタノール溶液28.7g(145mmol)を加え、1時間攪拌した後、40℃まで冷却しメタノールを減圧留去した。次いで、4-ビニルベンジルクロリド23.0g(145mmol)を加えて、55℃で17時間攪拌した。反応液を室温まで冷却した後、不溶物を濾去し、濾液を減圧留去し、褐色粘状物を得た。続いて、水200mLを加え、室温で1時間攪拌した後、固体を濾取し、n-ヘキサンで洗浄した後、乾燥して、淡黄色固体23.5g(126.7mmol、収率87.5%)を得た。

[0202] 得られた淡黄色固体の¹H-NMRスペクトルデータは、以下のとおりであった。

¹H-NMR (DMSO-d₆) δ: 5.26 (d, 1H), 5.40 (s, 2H), 5.83 (d, 1H), 6.72 (dd, 1H), 7.25 (d,

2 H), 7.46 (d, 2 H), 7.98 (s, 1 H), 8.66 (s, 1 H).

この¹H-NMRスペクトルデータより、得られた淡黄色固体は、化学式(41)で示される標題のアゾール化合物であるものと同定した。

[0203] [合成例2]

＜(5-アミノ-1-(4-エチルベンジル)-1H-テトラゾールと5-アミノ-2-(4-エチルベンジル)-2H-テトラゾール)の混合物の合成＞
5-アミノ-1H-テトラゾール10.0g(118mmol)およびN,N-ジメチルホルムアミド32mLからなる溶液を70℃に加熱し、20%ナトリウムエトキシドエタノール溶液40.1g(118mol)を加え、1時間攪拌した後、40℃まで冷却しエタノールを減圧留去した。次いで、4-エチルベンジルクロリド18.2g(118mmol)を加えて、60℃で16時間攪拌した。反応液を室温まで冷却した後、不溶物を濾去し、濾液を減圧留去し、固体を得た。続いて、水250mLを加え、室温で1時間攪拌した後、固体を濾取した。さらに、n-ヘキサン150mLを加え、室温で1時間攪拌した後、固体を濾取し、n-ヘキサンで洗浄した後、乾燥して、白色粉体20.7g(101.8mmol、収率86.6%)を得た。

[0204] 得られた白色粉体の¹H-NMRスペクトルデータは、以下のとおりであった。

¹H-NMR (DMSO-d₆) δ: 1.16 (m, 3 H), 2.57 (m, 2 H), 5.32 (s, 1.2 H), 5.56 (s, 0.8 H), 6.01 (s, 0.8 H), 6.82 (s, 1.2 H), 7.19 (m, 4 H).

この¹H-NMRスペクトルデータより、得られた白色粉体は、化学式(42)および化学式(43)で示される標題のアゾール化合物の混合物であるものと同定した。

[0205] ＜アゾール化合物(1)の合成＞

以下の実施例1～8のアゾール化合物を合成した。

[0206] [実施例 1]

<3, 5-ジアミノ-1-(4-ビニルベンジル)-1H-1, 2, 4-トリアゾールの合成>

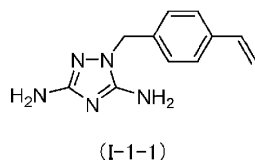
20%ナトリウムエトキシドエタノール溶液54.1g(159mmol)およびN,N-ジメチルアセトアミド46mLからなる溶液を45℃に加熱し、3, 5-ジアミノ-1H-1, 2, 4-トリアゾール15.8g(159mmol)を加え、70℃に昇温し1時間攪拌した後、50℃まで冷却しエタノールを減圧留去した。次いで、4-ビニルベンジルクロリド25.1g(158mmol)を加えて、50℃で20時間攪拌した。反応液を室温まで冷却した後、不溶物を濾去し、濾液を減圧留去し、褐色粘状物を得た。続いて、水200mLを加え、室温で1時間攪拌した後、固体を濾取した。さらに、酢酸エチル100mLを加え、室温で1時間攪拌した後、固体を濾取し、酢酸エチルで洗浄した後、乾燥して、淡黄色粉体17.8g(82.7mmol、収率52.3%)を得た。

[0207] 得られた淡黄色粉体の¹H-NMRスペクトルデータは、以下のとおりであった。

¹H-NMR (DMSO-d₆) δ: 4.72 (s, 2H), 4.84 (s, 2H), 5.23 (dd, 1H), 5.80 (dd, 1H), 6.00 (s, 2H), 6.70 (dd, 1H), 7.17 (d, 2H), 7.42 (d, 2H)。

この¹H-NMRスペクトルデータより、得られた淡黄色粉体は、化学式(I-1-1)で示される標題のアゾール化合物であるものと同定した。

[0208] [化20]



[0209] [実施例 2]

<3-アミノ-5-メチルチオ-1-(4-ビニルベンジル)-1H-1, 2, 4-トリアゾールと5-アミノ-3-メチルチオ-1-(4-ビニルベンジル)-1H-1, 2, 4-トリアゾールの混合物の合成>

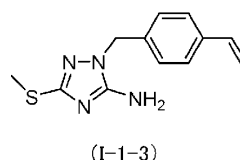
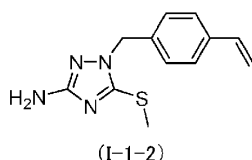
3-アミノ-5-メチルチオ-1H-1, 2, 4-トリアゾール 12.0 g (92 mmol) およびN, N-ジメチルホルムアミド 37 mL からなる溶液を 70℃ に加熱し、20% ナトリウムエトキシドエタノール溶液 31.4 g (92 mmol) を加え、1 時間撹拌した後、40℃ まで冷却しエタノールを減圧留去した。次いで、4-ビニルベンジルクロリド 14.6 g (92 mmol) を加えて、60℃ で 21 時間撹拌した。反応液を室温まで冷却した後、不溶物を濾去し、濾液を減圧留去し、褐色粘状物を得た。続いて、水 120 mL を加え、室温で 1 時間撹拌した後、固体を濾取した。さらに、n-ヘキサン 80 mL を加え、室温で 1 時間撹拌した後、固体を濾取し、n-ヘキサンで洗浄した後、乾燥して、褐色固体 18.5 g (75.1 mmol、収率 81.5%) を得た。

[0210] 得られた褐色固体の¹H-NMR スペクトルデータは、以下のとおりであった。

¹H-NMR (CDCl₃) δ : 2.52 (s, 1.8H), 2.61 (s, 1.2H), 4.52 (br, 2H), 5.03 (s, 0.8H), 5.06 (s, 1.2H), 5.26 (m, 1H), 5.75 (m, 1H), 6.69 (m, 1H), 7.19 (m, 2H), 7.38 (m, 2H)。

この¹H-NMR スペクトルデータより、得られた褐色固体は、化学式 (I-1-2) および化学式 (I-1-3) で示される標題のアゾール化合物であるものと同定した。

[0211] [化21]



[0212] [実施例3]

<3, 5-ジメチル-1-(4-ビニルベンジル)-1H-1, 2, 4-トリアゾールの合成>

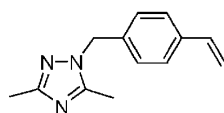
3, 5-ジメチル-1H-1, 2, 4-トリアゾール5.1g (52mmol) およびN, N-ジメチルホルムアミド20mLからなる溶液を70℃に加熱し、20%ナトリウムエトキシドエタノール溶液17.8g (52mmol) を加え、1時間攪拌した後、40℃まで冷却しエタノールを減圧留去した。次いで、4-ビニルベンジルクロリド8.3g (52mmol) を加えて、60℃で20時間攪拌した。反応液を室温まで冷却した後、不溶物を濾去し、濾液を減圧留去し、褐色液体を得た。続いて、水80mLを加え、室温で1時間攪拌した後、水層を除去した。さらに、n-ヘキサン40mLを加え、室温で1時間攪拌した後、ヘキサン層を除去し、減圧濃縮して、褐色液体6.2g (29.1mmol、収率55.4%)を得た。

[0213] 得られた褐色液体の¹H-NMRスペクトルデータは、以下のとおりであった。

¹H-NMR (CDCl₃) δ: 2.35 (s, 6H), 5.19 (s, 2H), 5.27 (d, 1H), 5.74 (d, 1H), 6.69 (dd, 1H), 7.12 (d, 2H), 7.38 (d, 2H).

この¹H-NMRスペクトルデータより、得られた褐色液体は、化学式(I-1-4)で示される標題のアゾール化合物であるものと同定した。

[0214] [化22]



(I-1-4)

[0215] [実施例4]

<3-クロロ-1-(4-ビニルベンジル)-1H-1, 2, 4-トリアゾールと5-クロロ-1-(4-ビニルベンジル)-1H-1, 2, 4-トリ

アゾールの混合物の合成＞

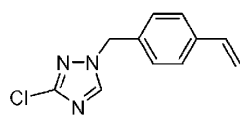
3-クロロ-1H-1,2,4-トリアゾール5.0g (48mmol) およびN,N-ジメチルホルムアミド17mLからなる溶液を70℃に加熱し、20%ナトリウムエトキシドエタノール溶液16.4g (48mmol)を加え、1時間攪拌した後、40℃まで冷却しエタノールを減圧留去した。次いで、4-ビニルベンジルクロリド7.6g (48mmol)を加えて、60℃で20時間攪拌した。反応液を室温まで冷却した後、不溶物を濾去し、濾液を減圧留去し、褐色粘状物を得た。続いて、水80mLを加え、室温で1時間攪拌した後、水層を除去した。さらに、n-ヘキサン40mLを加え、室温で1時間攪拌した後、ヘキサン層を除去し、減圧濃縮して、褐色粘状物9.2g (41.9mmol、収率86.9%)を得た。

[0216] 得られた褐色粘状物の¹H-NMRスペクトルデータは、以下のとおりであった。

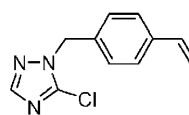
¹H-NMR (CDCl₃) δ : 5.25 (s, 1.6H), 5.29 (s, 0.4H), 5.32 (m, 1H), 5.80 (m, 1H), 6.71 (m, 1H), 7.25 (m, 2H), 7.43 (m, 2H), 7.86 (s, 0.2H), 7.91 (s, 0.8H)。

この¹H-NMRスペクトルデータより、得られた褐色粘状物は、化学式 (I-1-5) および化学式 (I-1-6) で示される標題のアゾール化合物であるものと同定した。

[0217] [化23]



(I-1-5)



(I-1-6)

[0218] [実施例5]

＜5-アミノ-1-(4-ビニルベンジル)-1H-テトラゾールと5-アミノ-2-(4-ビニルベンジル)-2H-テトラゾールの混合物の合成＞

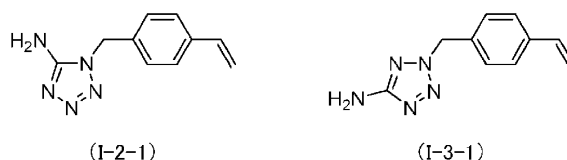
5-アミノ-1H-テトラゾール13.4g (158mmol) およびN, N-ジメチルアセトアミド50mLからなる溶液を70℃に加熱し、20%ナトリウムエトキシドエタノール溶液54.1g (159mmol) を加え、1時間攪拌した後、50℃まで冷却しエタノールを減圧留去した。次いで、4-ビニルベンジルクロリド25.1g (158mmol) を加えて、50℃で20時間攪拌した。反応液を室温まで冷却した後、不溶物を濾去し、濾液を減圧留去し、固体を得た。続いて、水120mLを加え、室温で1時間攪拌した後、固体を濾取し、水で洗浄した後、乾燥して、淡桃色粉体28.6g (142.1mmol、収率90.0%)を得た。

[0219] 得られた淡桃色粉体の¹H-NMRスペクトルデータは、以下のとおりであった。

¹H-NMR (DMSO-d₆) δ: 5.25 (dd, 0.45H), 5.28 (dd, 0.55H), 5.36 (s, 0.90H), 5.60 (s, 1.10H), 5.81 (dd, 0.45H), 5.85 (dd, 0.55H), 6.04 (s, 0.90H), 6.70 (dd, 0.55H), 6.72 (dd, 0.45H), 6.86 (s, 1.10H), 7.22 (d, 1.10H), 7.29 (d, 0.90H), 7.46 (d, 1.10H), 7.48 (d, 0.90H) .

この¹H-NMRスペクトルデータより、得られた淡桃色粉体は、化学式(I-2-1) および化学式(I-3-1) で示される標題のアゾール化合物の混合物であるものと同定した。

[0220] [化24]



[0221] [実施例6]

<5-エチルチオ-1-(4-ビニルベンジル)-1H-テトラゾールと5

－エチルチオ－2－（4－ビニルベンジル）－2H－テトラゾールの混合物の合成＞

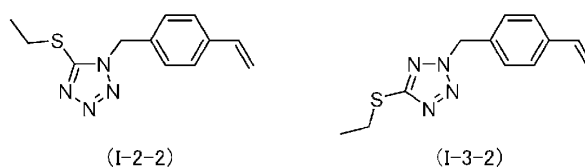
5－エチルチオ－1H－テトラゾール10.0g（77mmol）およびN，N－ジメチルホルムアミド37mLからなる溶液を70℃に加熱し、20%ナトリウムエトキシドエタノール溶液26.3g（77mol）を加え、1時間攪拌した後、40℃まで冷却しエタノールを減圧留去した。次いで、4－ビニルベンジルクロリド12.2g（77mmol）を加えて、55℃で20時間攪拌した。反応液を室温まで冷却した後、不溶物を濾去し、濾液を減圧留去し、褐色液体を得た。続いて、水100mLを加え、室温で1時間攪拌した後、水層を除去した。さらに、n－ヘキサン60mLを加え、室温で1時間攪拌した後、ヘキサン層を除去し、減圧濃縮して、褐色液体17.1g（69.4mmol、収率90.2%）を得た。

[0222] 得られた褐色液体の¹H－NMRスペクトルデータは、以下のとおりであった。

¹H－NMR（CDCl₃）δ：1.41（m，3H），3.18（q，1.2H），3.32（q，0.8H），5.28（d，1H），5.39（s，0.8H），5.68（s，1.2H），5.78（d，1H），6.69（m，1H），7.33（m，4H）。

この¹H－NMRスペクトルデータより、得られた褐色液体は、化学式（I-2-2）および化学式（I-3-2）で示される標題のアゾール化合物であるものと同定した。

[0223] [化25]



[0224] [実施例7]

＜5－フェニル－1－（4－ビニルベンジル）－1H－テトラゾールと5－

フェニル－２－（４－ビニルベンジル）－２Ｈ－テトラゾールの混合物の合成＞

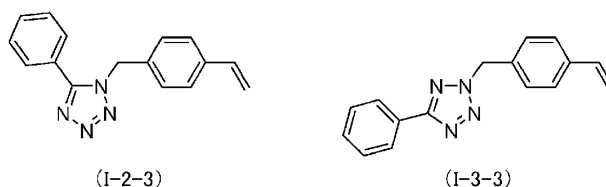
５－フェニル－１Ｈ－テトラゾール 12.0 g (82 mmol) および N，N－ジメチルホルムアミド 37 mL からなる溶液を 70℃ に加熱し、20% ナトリウムエトキシドエタノール溶液 28.0 g (82 mmol) を加え、1 時間攪拌した後、40℃ まで冷却しエタノールを減圧留去した。次いで、４－ビニルベンジルクロリド 13.0 g (82 mmol) を加えて、55℃ で 20 時間攪拌した。反応液を室温まで冷却した後、不溶物を濾去し、濾液を減圧留去し、赤褐色粘状物を得た。続いて、水 120 mL を加え、室温で 1 時間攪拌した後、水層を除去した。さらに、n－ヘキサン 40 mL を加え、室温で 1 時間攪拌した後、ヘキサン層を除去し、減圧濃縮して、赤褐色粘状物 20.3 g (77.4 mmol、収率 94.4%) を得た。

[0225] 得られた赤褐色粘状物の $^1\text{H-NMR}$ スペクトルデータは、以下のとおりであった。

$^1\text{H-NMR}$ (CDCl_3) δ : 5.27 (m, 1H), 5.75 (d, 1H), 5.78 (s, 2H), 6.69 (m, 1H), 7.48 (m, 7H), 8.13 (m, 2H).

この $^1\text{H-NMR}$ スペクトルデータより、得られた赤褐色粘状物は、化学式 (I-2-3) および化学式 (I-3-3) で示される標題のアゾール化合物であるものと同定した。

[0226] [化26]



[0227] [実施例 8]

＜５－ベンジル－１－（４－ビニルベンジル）－１Ｈ－テトラゾールと５－ベンジル－２－（４－ビニルベンジル）－２Ｈ－テトラゾールの混合物の合

成>

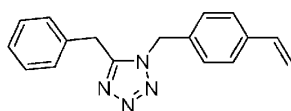
5-ベンジル-1H-テトラゾール 12.0 g (75 mmol) および N, N-ジメチルホルムアミド 37 mL からなる溶液を 70℃ に加熱し、20% ナトリウムエトキシドエタノール溶液 25.5 g (75 mmol) を加え、1 時間攪拌した後、40℃ まで冷却しエタノールを減圧留去した。次いで、4-ビニルベンジルクロリド 11.9 g (75 mmol) を加えて、55℃ で 20 時間攪拌した。反応液を室温まで冷却した後、不溶物を濾去し、濾液を減圧留去し、褐色液体を得た。続いて、水 120 mL を加え、室温で 1 時間攪拌した後、水層を除去した。さらに、n-ヘキサン 60 mL を加え、室温で 1 時間攪拌した後、ヘキサン層を除去し、減圧濃縮して、褐色液体 20.1 g (72.7 mmol、収率 97.0%) を得た。

[0228] 得られた褐色液体の $^1\text{H-NMR}$ スペクトルデータは、以下のとおりであった。

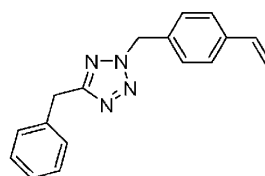
$^1\text{H-NMR}$ (CDCl_3) δ : 4.15 (s, 1H), 4.21 (s, 1H), 5.28 (m, 1H), 5.29 (s, 1H), 5.68 (s, 1H), 5.75 (d, 1H), 6.68 (m, 1H), 6.95 (m, 1H), 7.05 (m, 1H), 7.30 (m, 7H).

この $^1\text{H-NMR}$ スペクトルデータより、得られた褐色液体は、化学式 (I-2-4) および化学式 (I-3-4) で示される標題のアゾール化合物であるものと同定した。

[0229] [化27]



(I-2-4)



(I-3-4)

[0230] <接着性試験>

以下の実施例 9 ~ 11 及び比較例 2 ~ 3 で調製した表面処理液について、

下記の接着性の評価を行った。

[0231] [接着性の評価試験]

(1) 金属

金属として、電解銅箔（厚み：35 μm ）を用いた。

(2) 金属の表面処理

以下の工程 a～b に従って、前記銅箔の処理を行った。

a. 酸清浄（過硫酸カリウム系ソフトエッチング剤／30 秒（30℃））、水洗

b. 表面処理液を刷毛塗り、乾燥／1 分（100℃）

(3) 金属と樹脂の接着

処理した銅箔のS面にドライフィルムタイプのソルダーレジスト（SR1-A（太陽インキ製造社製、厚み15 μm ））をラミート／平面プレスした後、UV露光、ポストキュア（160℃／60分）を行って、絶縁樹脂層を備える銅張積層板を作製した。

(4) 接着性の評価

この銅張積層板について、リフロー加熱2回後（ピーク温度260℃、大気）、「JIS C6481（1996）」に従って、幅10mmの試験片を作製し、銅箔の引き剥がし強さ（ピール強度（kN/m））を測定した。

[0232] [実施例9]

カップリング剤成分として、実施例2で得られたアゾール化合物1gに、メタノール99gを加え、室温にて1時間攪拌し、表面処理液を調製した。

[0233] [実施例10～11]

実施例2で得られたアゾール化合物の代わりに、実施例5で得られたアゾール化合物又は実施例6で得られたアゾール化合物を使用した以外は、実施例9と同様にして、表面処理液を調製した。

[0234] [比較例1]

接着性の評価試験の(2) a. の工程のみを行った銅箔について、接着性の評価試験を行った。

[0235] [比較例 2 ～ 3]

実施例 2 で得られたアゾール化合物の代わりに、前記化学式 (4 1) で示されるアゾール化合物、前記化学式 (4 2) で示されるアゾール化合物と記化学式 (4 3) で示されるアゾール化合物との混合物を使用した以外は、実施例 9 と同様にして、表面処理液を調製した。

[0236] 上記で調製した表面処理液について、各々接着性の評価試験を行った。得られた試験結果を表 1 に示す。

[0237] [表1]

表 1

		カップリング剤	ピール強度(kN/m)
実施例	9	実施例2のアゾール化合物	0.61
	10	実施例5のアゾール化合物	0.24
	11	実施例6のアゾール化合物	0.14
比較例	1	なし	0.12
	2	アゾール化合物(41)	0.06
	3	アゾール化合物(42)と アゾール化合物(43)の混合物	0.03

[0238] 表 1 の結果より、本発明の表面処理液（実施例 9 ～ 1 1 の表面処理液）は、比較例 1 ～ 3 に比べてピール強度が高く、金属と樹脂との接着性（密着性）に優れることがわかった。

[0239] 本発明を詳細にまた特定の実施態様を参照して説明したが、本発明の精神と範囲を逸脱することなく様々な変更や修正を加えることができることは当業者にとって明らかである。本出願は、2023年5月30日出願の日本特許出願（特願2023-088281）に基づくものであり、その内容はここに参照として取り込まれる。

産業上の利用可能性

[0240] 本発明のアゾール化合物は、アゾール化合物の特徴である金属を防錆する

機能と、エポキシ樹脂やウレタン樹脂等の樹脂を硬化させる機能を付加したカップリング剤とすることができるので、種類の異なる素材が数多く組み合わせられて製造されるプリント配線板の如き複合材料への利用が期待される。

また、本発明によれば、金属、無機材料および樹脂材料の接着性（密着性）を高めることが期待できるので、基材の表面を粗化することなく、平滑な状態に保持することができる。従って、本発明は、多層プリント配線板の小型化、薄型化、高周波化、高密度化等の実現に大いに貢献し得るものであるから、産業上の利用可能性は多大である。

請求の範囲

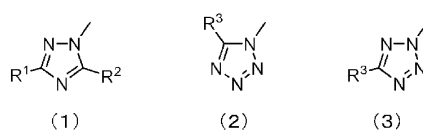
[請求項1] 化学式 (I) で示されるアゾール化合物。

[化1]



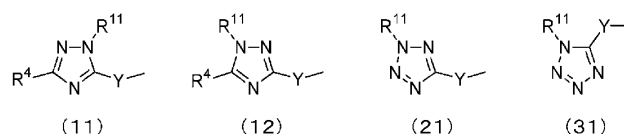
(式 (I) 中、Aは、式 (1) ~ (3) で示される基を表す。)

[化2]



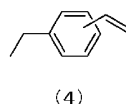
(式 (1) 中、R¹およびR²は、同一または異なって、水素原子、炭素数1~12の直鎖状もしくは分岐鎖状のアルキル基、アリール基、アラルキル基、置換されていてもよいアミノ基、ヒドロキシル基、シアノ基、ハロゲン原子、炭素数1~6のアルキルチオ基、式 (11) で示される基または式 (12) で示される基を表す。式 (2) および式 (3) 中、R³は、水素原子、炭素数1~12の直鎖状もしくは分岐鎖状のアルキル基、アリール基、アラルキル基、置換されていてもよいアミノ基、ヒドロキシル基、シアノ基、ハロゲン原子、炭素数1~6のアルキルチオ基、式 (21) で示される基または式 (31) で示される基を表す。但し、R¹およびR²が同時に水素原子である場合、R¹およびR²が同時に式 (11) で示される基である場合、R¹およびR²が同時に式 (12) で示される基である場合、R¹およびR²が式 (11) と式 (12) で示される基である場合を除く。)

[化3]



(式(11)および式(12)中、 R^4 は、水素原子、炭素数1～12の直鎖状もしくは分岐鎖状のアルキル基、アリール基、アラルキル基、置換されていてもよいアミノ基、ヒドロキシル基、シアノ基、ハロゲン原子または炭素数1～6のアルキルチオ基を表す。式(11)、式(12)、式(21)および式(31)中、 R^{11} は、水素原子または式(4)で示される基を表し、 Y は、フェニレン基、 $-NH-$ または $-(CH_2)_n-$ で示される基を表し、ここで、 n は、0～12の整数を表す。)

[化4]



[請求項2]

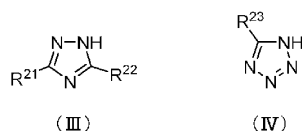
化学式(II)で示されるスチリル化合物と、化学式(III)で示されるトリアゾール化合物または化学式(IV)で示されるテトラゾール化合物とを反応させる請求項1記載のアゾール化合物の合成方法。

[化5]



(式(II)中、 X は、フッ素原子、塩素原子、臭素原子またはヨウ素原子を表す。)

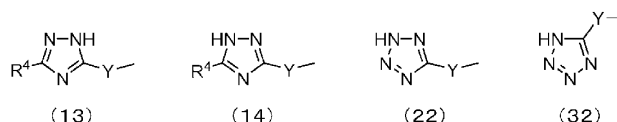
[化6]



(式(III)中、 R^{21} および R^{22} は、同一または異なって、水素原子、炭素数1～12の直鎖状もしくは分岐鎖状のアルキル基、アリール基、アラルキル基、置換されていてもよいアミノ基、ヒドロキシル基、シアノ基、ハロゲン原子、炭素数1～6のアルキルチオ基、式(1

3) で示される基または式 (14) で示される基を表す。式 (IV) 中、 R^{23} は、水素原子、炭素数 1 ~ 12 の直鎖状もしくは分岐鎖状のアルキル基、アリール基、アラルキル基、置換されていてもよいアミノ基、ヒドロキシル基、シアノ基、ハロゲン原子、炭素数 1 ~ 6 のアルキルチオ基、式 (22) で示される基または式 (32) で示される基を表す。但し、 R^{21} および R^{22} が同時に水素原子である場合、 R^{21} および R^{22} が同時に式 (13) で示される基である場合、 R^{21} および R^{22} が同時に式 (14) で示される基である場合、 R^{21} および R^{22} が式 (13) と式 (14) で示される基である場合を除く。)

[化7]



(式 (13) および式 (14) 中の R^4 、並びに式 (13)、式 (14)、式 (22) および式 (32) 中の Y は、前記と同様である。)

- [請求項3] 請求項1記載のアゾール化合物を成分とするカップリング剤。
- [請求項4] 請求項1記載のアゾール化合物を含有する表面処理液。
- [請求項5] 金属、無機材料および樹脂材料からなる群から選択される少なくとも1つの表面を処理するために用いる、請求項4に記載の表面処理液。
- [請求項6] 金属、無機材料および樹脂材料からなる群から選択される2つの材料を接着するために用いる、請求項4に記載の表面処理液。
- [請求項7] 前記金属が、銅、アルミニウム、チタン、ニッケル、錫、鉄、銀、金およびこれらの合金からなる群から選択される少なくとも1つである、請求項5または請求項6に記載の表面処理液。
- [請求項8] 請求項4に記載の表面処理液を金属、無機材料および樹脂材料からなる群から選択される少なくとも1つの表面に接触させる表面処理方法。

- [請求項9] 前記金属が、銅、アルミニウム、チタン、ニッケル、錫、鉄、銀、金およびこれらの合金からなる群から選択される少なくとも1つである、請求項8に記載の表面処理方法。
- [請求項10] 前記金属が、銅または銅合金である、請求項9に記載の表面処理方法。
- [請求項11] 前記表面処理液を銅または銅合金の表面に接触させる前に、銅イオンを含む水溶液を前記銅または銅合金の表面に接触させる、請求項10に記載の表面処理方法。
- [請求項12] 前記表面処理液を銅または銅合金の表面に接触させた後に、酸性水溶液またはアルカリ性水溶液を前記銅または銅合金の表面に接触させる、請求項10または請求項11に記載の表面処理方法。
- [請求項13] 請求項4に記載の表面処理液を、金属、無機材料および樹脂材料からなる群から選択される少なくとも1つに接触させて当該少なくとも一方に化成皮膜を形成し、前記化成皮膜を介して互いに接着する接着方法。
- [請求項14] 金属と樹脂材料の接着方法であって、
請求項4に記載の表面処理液を、金属および樹脂材料の少なくとも一方に接触させて当該少なくとも一方に化成皮膜を形成し、前記金属と前記樹脂材料とを前記化成皮膜を介して互いに接着する金属と樹脂材料の接着方法。
- [請求項15] 金属、無機材料および樹脂材料からなる群から選択される2つの材料が、請求項4に記載の表面処理液により形成された化成皮膜を介して接着されたプリント配線板。
- [請求項16] 金属、無機材料および樹脂材料からなる群から選択される2つの材料が、請求項4に記載の表面処理液により形成された化成皮膜を介して接着された半導体ウェハ。
- [請求項17] 請求項3に記載のカップリング剤と樹脂材料または無機材料とを含む絶縁性組成物。

- [請求項18] 請求項 1 7 に記載の絶縁性組成物を含有する絶縁材料。
- [請求項19] 請求項 1 7 に記載の絶縁性組成物から得られる絶縁層を有するプリント配線板。
- [請求項20] 請求項 1 7 に記載の絶縁性組成物から得られる絶縁層を有する半導体ウェハ。