

(12) 特許協力条約に基づいて公開された国際出願

(19) 世界知的所有権機関
国際事務局

(43) 国際公開日
2012年10月26日(26.10.2012)



(10) 国際公開番号
WO 2012/144594 A1

- (51) 国際特許分類:
C07D 331/02 (2006.01)
- (21) 国際出願番号: PCT/JP2012/060705
- (22) 国際出願日: 2012年4月20日(20.04.2012)
- (25) 国際出願の言語: 日本語
- (26) 国際公開の言語: 日本語
- (30) 優先権データ:
特願 2011-095015 2011年4月21日(21.04.2011) JP
- (71) 出願人(米国を除く全ての指定国について): 旭化成ケミカルズ株式会社(Asahi Kasei Chemicals Corporation) [JP/JP]; 〒1018101 東京都千代田区神田神保町一丁目105番地 Tokyo (JP).
- (72) 発明者; および
- (75) 発明者/出願人(米国についてのみ): 中村 光武 (NAKAMURA Akitake) [JP/JP]; 〒1018101 東京都千代田区神田神保町一丁目105番地 Tokyo (JP). 遠藤 剛 (ENDO Takeshi) [JP/JP]; 〒8200070 福岡県飯塚市堀池132-11-203 Fukuoka (JP).
- (74) 代理人: 長谷川 芳樹, 外(HASEGAWA Yoshiki et al.); 〒1000005 東京都千代田区丸の内二丁目1番1号丸の内 MY PLAZA (明治安田生命ビル) 9階 創英国際特許法律事務所 Tokyo (JP).
- (81) 指定国(表示のない限り、全ての種類の国内保護が可能): AE, AG, AL, AM, AO, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BH, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CL, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DK, DM, DO, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, GT, HN, HR, HU, ID, IL, IN, IS, JP, KE, KG, KM, KN, KP, KR, KZ, LA, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LY, MA, MD, ME, MG, MK, MN, MW, MX, MY, MZ, NA, NG, NI, NO, NZ, OM, PE, PG, PH, PL, PT, QA, RO, RS, RU, RW, SC, SD, SE, SG, SK, SL, SM, ST, SV, SY, TH, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, ZA, ZM, ZW.
- (84) 指定国(表示のない限り、全ての種類の広域保護が可能): ARIPO (BW, GH, GM, KE, LR, LS, MW, MZ, NA, RW, SD, SL, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), ユーラシア (AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, RU, TJ, TM), ヨーロッパ (AL, AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HR, HU, IE, IS, IT, LT, LU, LV, MC, MK, MT, NL, NO, PL, PT, RO, RS, SE, SI, SK, SM, TR), OAPI (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, ML, MR, NE, SN, TD, TG).
- 添付公開書類:
— 国際調査報告(条約第21条(3))



WO 2012/144594 A1

(54) Title: PROCESS FOR PREPARING EPISULFIDE COMPOUNDS

(54) 発明の名称: エピスルフィド化合物を製造する方法

(57) Abstract: A process for preparing episulfide compounds which includes a step of reacting an epoxy compound (B) with a thiaforming agent (C) (an agent capable of reacting with an epoxy compound to form an episulfide) in the presence of a polyhydroxyl compound (A) having two or more hydroxyl groups to convert the epoxy group of the epoxy compound (B) into an episulfide group.

(57) 要約: (A) 2個以上の水酸基を有する多価水酸化化合物の存在下で、(B) エポキシ化合物のエポキシ基を(C) チア化剤との反応によりチア化する工程を備える、エピスルフィド化合物を製造する方法。

明 細 書

発明の名称：エピスルフィド化合物を製造する方法

技術分野

[0001] 本発明は、エピスルフィド化合物を製造する方法に関する。

背景技術

[0002] エピスルフィド化合物は、プラスチックの原料化合物、接着剤、薬剤、殺虫剤及び除草剤、等の幅広い分野において用いられている。

[0003] 特に近年、エピスルフィド化合物が重合して形成されるプラスチックは、高屈折率、高アッペ数、高耐熱性及び高強度という特性を有していることから、光学材料の分野において、従来よりも優れた性能を有する材料として用いられている。

[0004] 一般に、エピスルフィド化合物を製造する方法としては、エポキシ化合物とチア化剤とを反応させる方法が挙げられる。

[0005] しかしながら、この方法によりエピスルフィド化合物を製造すると、エピスルフィド化合物の高い反応性に起因する重合物の形成、更にはエピスルフィド化合物とチア化剤との反応が起こることから、高い収率でエピスルフィド化合物を得ることが困難という問題があった。また、エポキシ化合物とチア化剤との反応が遅いため、反応時間が長く、生産性の点でも改善が求められていた。

[0006] これらの問題を解決するため、いくつかの方法が提案されている。例えば非特許文献1では、新規なチア化剤を用いる方法が提案されている。非特許文献2では、金属触媒を用いた方法が提案されている。非特許文献3では、シリカに担持された酸触媒を用いた方法が提案されている。特許文献1では、極性溶媒のみを反応溶媒として用いる方法が提案されている。

先行技術文献

特許文献

[0007] 特許文献1：特開2001-163872号公報

非特許文献

[0008] 非特許文献1: J. Chem. Soc., Chem. Comm. 1975, 621-622.

非特許文献2: Synth. Commun. 2004, 34, 2823-2827.

非特許文献3: J. Mol. Cat. A: Chem. 2007, 273, 114-117.

発明の概要

発明が解決しようとする課題

[0009] しかしながら、非特許文献1に記載されている新規なチア化剤は、一般に普及しているものではなく、入手困難な高価なものであるため、エピスルフィド化合物を製造するコストを高くする傾向にある。

[0010] 非特許文献2に記載されている金属触媒を用いた製造方法では、金属触媒がエピスルフィド化合物と反応し、収率を低下させる場合がある。また、製造したエピスルフィド化合物の用途によっては、金属触媒を除去する必要がある。そのため、エピスルフィド化合物を製造するコストが高くなる傾向にある。さらに、金属触媒を用いることから、環境負荷の低減の点では比較的不利な方法である。

[0011] 非特許文献3に記載されているシリカに担持された酸触媒を用いた場合、エポキシ化合物とチア化剤との反応終了後、容易に触媒を除去し、再利用出来る可能性があるため、環境負荷が小さいと考えられる。しかしながら、この方法で用いられる触媒は一般的に普及しているものでなく、入手困難な高価なものであるため、この方法によれば、エピスルフィド化合物を製造するコストが高くなる傾向にある。

[0012] 特許文献1に記載されている極性溶媒のみを反応溶媒として用いる方法は、純換収率が59~66.6%であることが開示されているものの、未だ収率に改善の余地がある。

[0013] 本発明は、上記事情を鑑みなされたものであり、反応時間が短く、収率が

高く、経済性に優れ、しかも環境負荷が小さい、エピスルフィド化合物を製造する方法を提供することを目的とする。

課題を解決するための手段

[0014] 本発明者は、(A) 2個以上の水酸基を有する多価水酸基化合物の存在下、(B) エポキシ化合物のエポキシ基を(C) チア化剤との反応によりチア化する工程を備える、エピスルフィド化合物を製造する方法は、反応時間が短く、収率が高く、経済性に優れ、環境負荷が小さいことを見出し、本発明をなすに至った。

[0015] 即ち、本発明は以下の通りである。

[1]

(A) 2個以上の水酸基を有する多価水酸基化合物の存在下で、(B) エポキシ化合物のエポキシ基を(C) チア化剤との反応によりチア化する工程を備える、エピスルフィド化合物を製造する方法。

[2]

(A) 多価水酸基化合物の水酸基価が300～1870 mg/gである、項[1]記載の方法。

[3]

(A) 多価水酸基化合物の水酸基価が1870 mg/gを超え3000 mg/g以下である、項[1]記載の方法。

[4]

(A) 多価水酸基化合物が、水酸基を2個有する化合物である、項[1]記載の方法。

[5]

(A) 多価水酸基化合物が、水酸基を3個以上有する化合物である、項[1]記載の方法。

[6]

(A) 多価水酸基化合物の炭素数が3～20である、項[1]記載の方法。

。

[7]

(A) 多価水酸基化合物が、水酸基を 2 個有し、炭素数が 3 ~ 20 であり、水酸基価が 300 ~ 1870 mg / g である化合物である、項 [1] 記載の方法。

[8]

(A) 多価水酸基化合物が、水酸基を 3 個有し、炭素数が 4 ~ 20 であり、水酸基価が 300 ~ 1870 mg / g である化合物である、項 [1] 記載の方法。

[9]

(A) 多価水酸基化合物が、水酸基を 4 個以上有し、水酸基価が 300 ~ 1870 mg / g である化合物である、項 [1] 記載の方法。

[10]

(A) 多価水酸基化合物が、鎖状、分岐状又は環状の脂肪族炭化水素基を有する化合物であり、かつ、(A) 多価水酸基化合物に含有される 2 個以上の水酸基が、前記脂肪族炭化水素基中の互いに異なる炭素原子に 1 個ずつ結合している、項 [1] 記載の方法。

[11]

(C) チア化剤が、チオシアン酸塩及びチオ尿素類からなる群より選ばれる少なくとも 1 種の化合物を含む、項 [1] 記載の方法。

[12]

下記式 (1) で表される、(B) エポキシ化合物と (C) チア化剤との混合指標 α が 1 ~ 10 である、項 [1] 記載の方法。

$$\text{混合指標 } \alpha = \alpha_t / \alpha_e \quad (1)$$

α_t : チア化剤に含まれる、エピスルフィド基の生成に用いられ得る硫黄原子の物質質量 (mol)

α_e : エポキシ化合物に含まれるエポキシ基の物質質量 (mol)

[13]

下記式 (2) で表される、(A) 多価水酸基化合物と (C) チア化剤との

混合指標 β が 0.010~0.500 である、項 [1] 記載の方法。

$$\text{混合指標 } \beta = \beta_t / \beta_o \quad (2)$$

β_t : チア化剤の質量 (g)

β_o : 多価水酸基化合物の質量 (g)

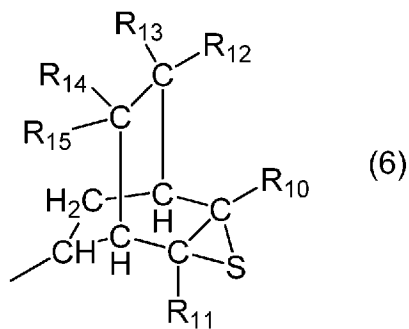
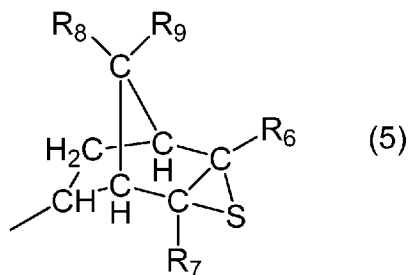
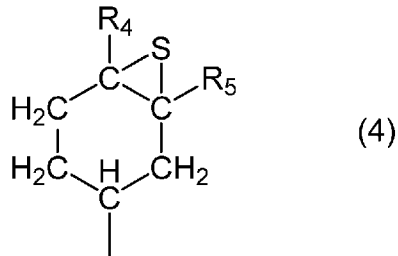
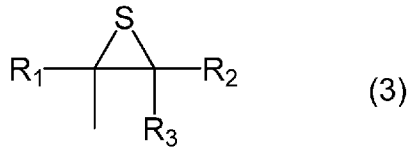
[14]

(B) エポキシ化合物のエポキシ当量が、55~700 g/eq. である、項 [1] 記載の方法。

[15]

(B) エポキシ化合物が、下記式 (3)、(4)、(5) 又は (6) で表される部分構造を有する、項 [1] 記載の方法。

[化1]



[式中、 R_1 、 R_2 、 R_3 、 R_4 、 R_5 、 R_6 、 R_7 、 R_8 、 R_9 、 R_{10} 、 R_{11} 、 R_{12} 、 R_{13} 、 R_{14} 、及び R_{15} はそれぞれ独立に、水素原子又は炭素数1～10の有機基を示す。]

[16]

(B) エポキシ化合物のエポキシ基をチア化する前記工程の反応液から未反応のエポキシ化合物を回収する工程と、

回収されたエポキシ化合物を含む (B) エポキシ化合物のエポキシ基を (C) チア化剤との反応によりチア化する工程と、
を更に備える、項 [1] 記載の方法。

[1 7]

(B) エポキシ化合物のエポキシ基をチア化する前記工程の反応液から多価水酸基化合物を回収する工程と、

回収された多価水酸基化合物を含む (A) 多価水酸基化合物の存在下で、
(B) エポキシ化合物のエポキシ基を (C) チア化剤との反応によりチア化する工程と、

を更に備える、項 [1] 記載の方法。

[1 8]

(B) エポキシ化合物のエポキシ基をチア化する前記工程において (C) チア化剤の硫黄原子が酸素原子に置換されて生成した化合物から、チア化剤を再生する工程を更に備える、

項 [1] に記載の方法。

[1 9]

(B) エポキシ化合物のエポキシ基をチア化する前記工程の反応液から回収された未反応のチア化剤を含む (C) チア化剤との反応により (B) エポキシ化合物のエポキシ基をチア化する工程を更に備える、項 [1] に記載の方法。

[2 0]

再生されたチア化剤を含む (C) チア化剤との反応により (B) エポキシ化合物のエポキシ基をチア化する工程を更に備える、項 [1 8] に記載の方法。

発明の効果

[0016] 本発明によれば、反応時間が短く、収率が高く、経済性に優れ、しかも環境負荷が小さい、エピスルフィド化合物を製造する方法が提供される。

発明を実施するための形態

[0017] 以下、本発明を実施するための形態（以下、「本実施形態」という。）について詳細に説明する。ただし、本発明は、以下の本実施形態に限定されるものではなく、その要旨の範囲内で種々変形して実施することができる。

[0018] 本実施形態に係る製造方法は、(A) 2個以上の水酸基を有する多価水酸基化合物の存在下で、(B) エポキシ化合物のエポキシ基を(C) チア化剤との反応によりチア化する工程を備える。以下、(A) 多価水酸基化合物、(B) エポキシ化合物、(C) チア化剤及びその他の成分の詳細について説明する。

[0019] ((A) 多価水酸基化合物)

本実施形態の(A) 多価水酸基化合物は、2個以上の水酸基を有する化合物である。1種の多価水酸基化合物を単独で用いてもよいし、複数種の多価水酸基化合物を組み合わせて用いてもよい。

[0020] (A) 多価水酸基化合物の水酸基価は、300 mg/g以上であることが好ましく、より好ましくは500 mg/g以上であり、さらに好ましくは700 mg/g以上である。水酸基価が300 mg/g以上であると、エピスルフィド化合物同士の重合物、及びエピスルフィド化合物とチア化剤との反応物の生成が抑制でき、収率がより高くなる傾向にある。水酸基価が500 mg/g以上であると、反応時間がより短くなり、経済性に優れる傾向にある。同様の観点から、水酸基価はさらに好ましくは700 mg/g以上である。

[0021] 多価水酸基化合物の水酸基価は、1870 mg/g以下であることが好ましく、より好ましくは1830 mg/g以下であり、さらに好ましくは1810 mg/g以下である。水酸基価が1870 mg/g以下であると、反応系内のチア化剤の濃度を高めることができ、製造工程が簡素化でき、経済性に優れる傾向にある。水酸基価が1830 mg/g以下であると、エピスルフィド化合物同士の重合物、及びエピスルフィド化合物とチア化剤との反応物の生成が抑制でき、収率がより高くなる傾向にある。水酸基価が1810 mg/g以下であると、反応時間がより短くなり、経済性に優れる傾向にある。水酸基価が、1870 mg/gを超える場合、(A) 多価水酸基化合物の使用量が少なくとも、収率がより高く、又は反応時間がより短くなり、経済性に優れる傾向にあることから好ましい。また、入手容易であり、経済性

に優れる傾向にあることから、水酸基価は3000 mg/g以下であることが好ましい。

- [0022] (A) 多価水酸基化合物は2個以上の水酸基を有する。2個以上の水酸基を有する多価水酸基化合物を用いることにより、反応時間が短くなり、エピスルフィド化合物同士の重合物、及びエピスルフィド化合物とチア化剤との反応物の生成が抑制でき、収率が高められる。水酸基が2個の場合、多数の化合物が容易に入手できる傾向にあることから、収率や反応時間の観点で、
- (B) エポキシ化合物と最適な組み合わせを見いだせる可能性が高まることから、特に好ましい。多価水酸基化合物が水酸基を3個以上有することで、
- (A) 多価水酸基化合物の使用量が少なくとも、収率がより高く、又は反応時間がより短くなり、経済性に優れる傾向にあることから好ましい。多価水酸基化合物は、より好ましくは水酸基を4個以上有する。

- [0023] (A) 多価水酸基化合物の炭素数は、好ましくは3以上である。炭素数が3以上であると、反応時間が特に短くなり、経済性に優れる傾向にある。多価水酸基化合物の炭素数は20以下であることが好ましく、より好ましくは8以下であり、さらに好ましくは6以下である。炭素数が20以下であると、入手容易であり、経済性に優れる傾向にある。炭素数が8以下であると、反応時間が短くなり、エピスルフィド化合物同士の重合物、及びエピスルフィド化合物とチア化剤との反応物の生成が抑制でき、収率が高められる。炭素数が6以下であると、標準状態において多価水酸基化合物が液状となる傾向にあり、取扱いが容易である。

- [0024] (A) 多価水酸基化合物の水酸基価、水酸基の数、炭素数の組み合わせとしては、
- 水酸基が2個、炭素数が3~20、水酸基価が300~1870 mg/g、
- 水酸基が3個、炭素数が4~20、水酸基価が300~1870 mg/g、
- 又は、
- 水酸基が4個以上、水酸基価が300~1870 mg/g
- であることが、反応時間が特に短くなり、エピスルフィド化合物同士の重合

物、及びエピスルフィド化合物とチア化剤との反応物の生成が抑制でき、収率が特に高められる観点から好ましい。

[0025] (A) 多価水酸基化合物は、鎖状、分岐状又は環状の脂肪族炭化水素基を有する化合物であることが好ましい。入手容易であり、経済性に優れる傾向にあることから、鎖状又は環状の脂肪族炭化水素基を有する化合物であることがより好ましく、さらに好ましくは鎖状脂肪族炭化水素基を有する化合物である。さらに、(A) 多価水酸基化合物に含有される水酸基は、脂肪族炭化水素基の炭素原子に結合していることが好ましい。

[0026] (A) 多価水酸基化合物は、2個以上の水酸基が異なる炭素原子に1個ずつ結合していることが好ましい。2個以上の水酸基が異なる炭素原子に1個ずつ結合していることで、化合物としての安定性が高まる傾向にある。

[0027] (A) 多価水酸基化合物は、例えば、メタンジオール、エチレングリコール、1, 2-プロパンジオール、1, 3-プロパンジオール、1, 2-シクロプロパンジオール、グリセリン、1, 2-ブタンジオール、1, 3-ブタンジオール、1, 4-ブタンジオール、2, 3-ブタンジオール、2-メチル-1, 3-プロパンジオール、1, 2-シクロブタンジオール、1, 3-シクロブタンジオール、1, 2, 3-ブタントリオール、1, 2, 4-ブタントリオール、1, 2, 3, 4-ブタンテトラオール、1, 2, 3-シクロブタントリオール、1, 2, 3, 4-シクロブタンテトラオール、1, 2-ペンタンジオール、1, 3-ペンタンジオール、1, 4-ペンタンジオール、1, 5-ペンタンジオール、2, 3-ペンタンジオール、2, 4-ペンタンジオール、1, 2, 3-ペンタントリオール、1, 2, 4-ペンタントリオール、1, 2, 5-ペンタントリオール、1, 3, 4-ペンタントリオール、1, 3, 5-ペンタントリオール、1, 2, 3, 4-ペンタンテトラオール、1, 2, 3, 5-ペンタンテトラオール、1, 2, 4, 5-ペンタンテトラオール、1, 2, 3, 4, 5-ペンタンペンタオール、1, 2, 3-シクロペンタントリオール、1, 2, 4-シクロペンタントリオール、1, 2-ヘキサジオール、1, 3-ヘキサジオール、1, 4-ヘキサジオール

ル、1, 5-ヘキサンジオール、1, 6-ヘキサンジオール、2, 3-ヘキサンジオール、2, 4-ヘキサンジオール、2, 5-ヘキサンジオール、3, 4-ヘキサンジオール、

[0028] 1, 2-シクロヘキサンジオール、1, 3-シクロヘキサンジオール、1, 4-シクロヘキサンジオール、1, 2, 3-ヘキサントリオール、1, 2, 4-ヘキサントリオール、1, 2, 5-ヘキサントリオール、1, 2, 6-ヘキサントリオール、1, 3, 4-ヘキサントリオール、1, 3, 5-ヘキサントリオール、1, 3, 6-ヘキサントリオール、1, 4, 5-ヘキサントリオール、1, 4, 6-ヘキサントリオール、2, 3, 4-ヘキサントリオール、2, 3, 5-ヘキサントリオール、1, 2, 3, 4-ヘキサントテトラオール、1, 2, 3, 5-ヘキサントテトラオール、1, 2, 3, 6-ヘキサントテトラオール、1, 3, 4, 5-ヘキサントテトラオール、1, 3, 4, 6-ヘキサントテトラオール、1, 2, 3, 4, 5-ヘキサントペンタオール、1, 2, 3, 4, 6-ヘキサントペンタオール、1, 2, 3, 4, 5, 6-ヘキサントヘキサオール、1, 2, 3-シクロヘキサントリオール、1, 2, 4-シクロヘキサントリオール、1, 3, 6-シクロヘキサントリオール、1, 2, 3, 4-シクロヘキサントテトラオール、1, 2, 3, 5-シクロヘキサントテトラオール、1, 2, 3, 4, 5-シクロヘキサントペンタオール、1, 2, 3, 4, 5, 6-シクロヘキサントヘキサオール、1, 2-ヘプタンジオール、1, 3-ヘプタンジオール、1, 4-ヘプタンジオール、1, 5-ヘプタンジオール、1, 6-ヘプタンジオール、1, 7-ヘプタンジオール、2, 3-ヘプタンジオール、2, 4-ヘプタンジオール、2, 5-ヘプタンジオール、2, 6-ヘプタンジオール、3, 4-ヘプタンジオール、3, 5-ヘプタンジオール、

[0029] ビシクロ- [2, 2, 1] ヘプタンジオール、1, 2, 3-ヘプタントリオール、1, 2, 4-ヘプタントリオール、1, 2, 5-ヘプタントリオール、1, 2, 6-ヘプタントリオール、1, 2, 7-ヘプタントリオール、1, 3, 4-ヘプタントリオール、1, 3, 5-ヘプタントリオール、1,

3, 6-ヘプタントリオール、1, 3, 7-ヘプタントリオール、1, 3, 8-ヘプタントリオール、1, 4, 5-ヘプタントリオール、1, 4, 6-ヘプタントリオール、1, 4, 7-ヘプタントリオール、1, 5, 6-ヘプタントリオール、2, 3, 4-ヘプタントリオール、2, 3, 5-ヘプタントリオール、2, 3, 6-ヘプタントリオール、3, 4, 5-ヘプタントリオール、1, 2, 3, 4-ヘプタンテトラオール、1, 2, 3, 5-ヘプタンテトラオール、1, 2, 3, 6-ヘプタンテトラオール、1, 2, 3, 7-ヘプタンテトラオール、1, 3, 4, 5-ヘプタンテトラオール、1, 3, 4, 6-ヘプタンテトラオール、1, 3, 4, 7-ヘプタンテトラオール、1, 4, 5, 6-ヘプタンテトラオール、1, 4, 5, 7-ヘプタンテトラオール、1, 5, 6, 7-ヘプタンテトラオール、1, 2, 3, 4, 5-ヘプタンペンタオール、1, 2, 3, 4, 6-ヘプタンペンタオール、1, 2, 3, 4, 7-ヘプタンペンタオール、1, 3, 4, 5, 6-ヘプタンペンタオール、1, 3, 4, 5, 7-ヘプタンペンタオール、1, 4, 5, 6, 7-ヘプタンペンタオール、1, 2, 3, 4, 5, 6-ヘプタンヘキサオール、1, 2, 3, 4, 5, 7-ヘプタンヘキサオール、1, 2, 3, 4, 5, 6, 7-ヘプタンヘプタノール、1, 2, 3-シクロヘプタントリオール、1, 2, 4-シクロヘプタントリオール、1, 2, 5-シクロヘプタントリオール、1, 3, 4-シクロヘプタントリオール、1, 3, 5-シクロヘプタントリオール、

[0030] 1, 2, 3, 4-シクロヘプタンテトラオール、1, 2, 3, 5-シクロヘプタンテトラオール、1, 3, 4, 5-シクロヘプタンテトラオール、1, 3, 4, 6-シクロヘプタンテトラオール、1, 2, 3, 4, 5-シクロヘプタンペンタオール、1, 2, 3, 4, 6-シクロヘプタンペンタオール、1, 2, 3, 4, 5, 6-シクロヘプタンヘキサオール、1, 2, 3, 4, 5, 6, 7-シクロヘプタンヘプタオール、ビスクロー [2, 2, 1] ヘプタントリオール、ビスクロー [2, 2, 1] ヘプタンテトラオール、ビスクロー [2, 2, 1] ヘプタンペンタオール、ビスクロー [2, 2, 1] ヘプ

タンヘキサオール、ビスクロー [2, 2, 1] ヘプタンヘプタオール、1, 2-オクタンジオール、1, 3-オクタンジオール、1, 4-オクタンジオール、1, 5-オクタンジオール、1, 6-オクタンジオール、1, 7-オクタンジオール、1, 8-オクタンジオール、2, 3-オクタンジオール、2, 4-オクタンジオール、2, 5-オクタンジオール、2, 6-オクタンジオール、2, 7-オクタンジオール、3, 4-オクタンジオール、3, 5-オクタンジオール、3, 6-オクタンジオール、4, 5-オクタンジオール、

[0031] ビスクロー [2, 2, 2] オクタンジオール、1, 2, 3-シクロオクタントリオール、1, 2, 4-シクロオクタントリオール、1, 2, 5-シクロオクタントリオール、1, 3, 4-シクロオクタントリオール、1, 3, 5-シクロオクタントリオール、1, 3, 6-シクロオクタントリオール、1, 4, 5-シクロオクタントリオール、1, 4, 6-シクロオクタントリオール、1, 2, 3, 4-シクロオクタンテトラオール、1, 2, 3, 5-シクロオクタンテトラオール、1, 2, 3, 6-シクロオクタンテトラオール、1, 3, 4, 5-シクロオクタンテトラオール、1, 3, 4, 6-シクロオクタンテトラオール、1, 3, 4, 7-シクロオクタンテトラオール、1, 4, 5, 6-シクロオクタンテトラオール、1, 2, 3, 4, 5-シクロオクタンヘプタオール、1, 2, 3, 4, 6-シクロオクタンヘプタオール、1, 2, 3, 4, 7-シクロオクタンヘプタオール、1, 3, 4, 5, 6-シクロオクタンヘプタオール、1, 3, 4, 5, 7-シクロオクタンヘプタオール、1, 4, 5, 6, 7-シクロオクタンヘプタオール、1, 2, 3, 4, 5, 6-シクロオクタンヘキサオール、1, 2, 3, 4, 5, 7-シクロオクタンヘキサオール、1, 2, 3, 4, 5, 6, 7-シクロオクタンヘプタオール、1, 2, 3, 4, 5, 6, 7, 8-シクロオクタンオクタオール、

[0032] ビスクロー [2, 2, 2] オクタントリオール、ビスクロー [2, 2, 2] オクタンテトラオール、ビスクロー [2, 2, 2] オクタンペンタオール、

ビシクロー [2, 2, 2] オクタンヘキサオール、ビシクロー [2, 2, 2] オクタンヘプタオール、ビシクロー [2, 2, 2] オクタンオクタオール、1, 2-ノナンジオール、1, 3-ノナンジオール、1, 4-ノナンジオール、1, 5-ノナンジオール、1, 6-ノナンジオール、1, 7-ノナンジオール、1, 8-ノナンジオール、1, 9-ノナンジオール、2, 3-ノナンジオール、2, 4-ノナンジオール、2, 5-ノナンジオール、2, 6-ノナンジオール、2, 7-ノナンジオール、2, 8-ノナンジオール、3, 4-ノナンジオール、3, 5-ノナンジオール、3, 6-ノナンジオール、3, 7-ノナンジオール、4, 5-ノナンジオール、4, 6-ノナンジオール、1, 2-シクロノナンジオール、1, 3-シクロノナンジオール、1, 4-シクロノナンジオール、1, 5-シクロノナンジオール、

[0033] 1, 2-デカンジオール、1, 3-デカンジオール、1, 4-デカンジオール、1, 5-デカンジオール、1, 6-デカンジオール、1, 7-デカンジオール、1, 8-デカンジオール、1, 9-デカンジオール、1, 10-デカンジオール、2, 3-デカンジオール、2, 4-デカンジオール、2, 5-デカンジオール、2, 6-デカンジオール、2, 7-デカンジオール、2, 8-デカンジオール、2, 9-デカンジオール、3, 4-デカンジオール、3, 5-デカンジオール、3, 6-デカンジオール、3, 7-デカンジオール、3, 8-デカンジオール、4, 5-デカンジオール、4, 6-デカンジオール、4, 7-デカンジオール、5, 6-デカンジオール、1, 2-シクロデカンジオール、1, 3-シクロデカンジオール、1, 4-シクロデカンジオール、1, 5-シクロデカンジオール、1, 6-シクロデカンジオール、ウンデカンジオール、ドデカンジオール、トリデカンジオール、テトラデカンジオール、ペンタデカンジオール、ヘキサデカンジオール、ヘプタデカンジオール、オクタデカンジオール、ノナデカンジオール、イコサンジオール、

[0034] ジエチレングリコール、トリエチレングリコール、テトラエチレングリコール、ペンタエチレングリコール、ヘキサエチレングリコール、ヘプタエチレ

ングリコール、オクタエチレングリコール、ノナエチレングリコール、デカエチレングリコール、ウンデカエチレングリコール、ドデカエチレングリコール、ポリエチレングリコール28、ポリエチレングリコール200、ポリエチレングリコール300、ポリエチレングリコール400、グリセルアルデヒド、エリトロース、トレオース、リボース、リキソース、キシロース、アラビノース、アピオース、アロース、タロース、グロース、グルコース、アルトロース、マンノース、ガラクトース、イドース、ジヒドロキシアセトン、エリトルロース、リブロース、キシルロース、プシコース、フルクトース、ソルボース、タガトース、セドヘプツロース、コリオース、スクロース、ラクツロース、ラクトース、マルトース、トレハロース、セロビオース、コージビオース、ニゲロース、イソマルトース、イソトレハロース、ネオトレハロース、ソホロース、ラミナリビオース、ゲンチビオース、ツラノース、マルツロース、パラチノース、ゲンチオビウロース、マンノビオース、メリビオース、メリビウロース、ネオラクトース、ガラクトスクロース、シラビオース、ルチノース、ルチヌロース、ビシアノース、キシロビオース及びプリメベロースからなる群より選ばれる少なくとも1種の化合物である。

- [0035] (A) 多価水酸基化合物は、メチル基、エチル基、ヒドロキシメチル基、ヒドロキシエチル基からなる群より選ばれる少なくとも1種の置換基を有する、エチレングリコール、プロパンジオール、シクロプロパンジオール、ブタンジオール、シクロブタンジオール、ペンタンジオール、シクロペンタンジオール、ヘキサジオール、シクロヘキサジオール、ヘプタンジオール、シクロヘプタンジオール、オクタンジオール、シクロオクタンジオール、ノナンジオール、シクロノナンジオール、デカンジオール、シクロデカンジオール、ウンデカンジオール、ドデカンジオール、トリデカンジオール、テトラデカンジオール、ペンタデカンジオール、ヘキサデカンジオール、ヘプタデカンジオール、オクタデカンジオール、ノナデカンジオール及びイコサンジオールからなる群より選ばれる少なくとも1種の化合物であってもよい。

[0036] 上記の中でも、反応時間を短縮し、エピスルフィド化合物同士の重合物及びエピスルフィド化合物とチア化剤との反応物の生成を抑制し、より高い収率を達成する観点から、以下の群から選ばれる、少なくとも1種の化合物を多価水酸化化合物として用いることが好ましい。

[0037] エチレングリコール、1, 2-プロパンジオール、1, 3-プロパンジオール、1, 2-シクロプロパンジオール、1, 2-ブタンジオール、1, 3-ブタンジオール、1, 4-ブタンジオール、2, 3-ブタンジオール、2-メチル-1, 3-プロパンジオール、1, 2-ペンタンジオール、1, 3-ペンタンジオール、1, 4-ペンタンジオール、1, 5-ペンタンジオール、2, 3-ペンタンジオール、2, 4-ペンタンジオール、2-メチル-1, 3-ブタンジオール、2-メチル-1, 4-ブタンジオール、2, 2-ジメチル-1, 3-プロパンジオール、1, 2-シクロペンタンジオール、1, 3-シクロペンタンジオール、1, 2-ヘキサジオール、1, 3-ヘキサジオール、1, 4-ヘキサジオール、1, 5-ヘキサジオール、1, 6-ヘキサジオール、2, 3-ヘキサジオール、2, 4-ヘキサジオール、2, 5-ヘキサジオール、3, 4-ヘキサジオール、1, 2-シクロヘキサジオール、1, 3-シクロヘキサジオール、1, 4-シクロヘキサジオール、1, 2-ヘプタンジオール、1, 3-ヘプタンジオール、1, 4-ヘプタンジオール、1, 5-ヘプタンジオール、1, 6-ヘプタンジオール、1, 7-ヘプタンジオール、2, 3-ヘプタンジオール、2, 4-ヘプタンジオール、2, 5-ヘプタンジオール、2, 6-ヘプタンジオール、3, 4-ヘプタンジオール、3, 5-ヘプタンジオール、1, 2-シクロヘプタンジオール、1, 3-シクロヘプタンジオール、1, 4-シクロヘプタンジオール、ビスシクロ-[2, 2, 1]ヘプタンジオール、

[0038] 1, 2-オクタンジオール、1, 3-オクタンジオール、1, 4-オクタンジオール、1, 5-オクタンジオール、1, 6-オクタンジオール、1, 7-オクタンジオール、1, 8-オクタンジオール、2, 3-オクタンジオール、2, 4-オクタンジオール、2, 5-オクタンジオール、2, 6-オク

タンジオール、2, 7-オクタジオール、3, 4-オクタジオール、3, 5-オクタジオール、3, 6-オクタジオール、4, 5-オクタジオール、1, 2-シクロオクタジオール、1, 3-シクロオクタジオール、1, 4-シクロオクタジオール、1, 5-シクロオクタジオール、ビスシクロ-[2, 2, 2]オクタジオール、1, 2-ノナンジオール、1, 3-ノナンジオール、1, 4-ノナンジオール、1, 5-ノナンジオール、1, 6-ノナンジオール、1, 7-ノナンジオール、1, 8-ノナンジオール、1, 9-ノナンジオール、2, 3-ノナンジオール、2, 4-ノナンジオール、2, 5-ノナンジオール、2, 6-ノナンジオール、2, 7-ノナンジオール、2, 8-ノナンジオール、3, 4-ノナンジオール、3, 5-ノナンジオール、3, 6-ノナンジオール、3, 7-ノナンジオール、4, 5-ノナンジオール、4, 6-ノナンジオール、1, 2-シクロノナンジオール、1, 3-シクロノナンジオール、1, 4-シクロノナンジオール、1, 5-シクロノナンジオール、

[0039] 1, 2-デカンジオール、1, 3-デカンジオール、1, 4-デカンジオール、1, 5-デカンジオール、1, 6-デカンジオール、1, 7-デカンジオール、1, 8-デカンジオール、1, 9-デカンジオール、1, 10-デカンジオール、2, 3-デカンジオール、2, 4-デカンジオール、2, 5-デカンジオール、2, 6-デカンジオール、2, 7-デカンジオール、2, 8-デカンジオール、2, 9-デカンジオール、3, 4-デカンジオール、3, 5-デカンジオール、3, 6-デカンジオール、3, 7-デカンジオール、3, 8-デカンジオール、4, 5-デカンジオール、4, 6-デカンジオール、4, 7-デカンジオール、5, 6-デカンジオール、1, 2-シクロデカンジオール、1, 3-シクロデカンジオール、1, 4-シクロデカンジオール、1, 5-シクロデカンジオール、1, 6-シクロデカンジオール、ジエチレングリコール及びトリエチレングリコール。

[0040] 多価水酸基化合物は、さらに好ましくは、以下の群から選ばれる、少なくとも1種の化合物である。

[0041] 1, 2-プロパンジオール、1, 3-プロパンジオール、1, 2-ブタンジオール、1, 3-ブタンジオール、1, 4-ブタンジオール、2, 3-ブタンジオール、1, 2-ペンタンジオール、1, 3-ペンタンジオール、1, 4-ペンタンジオール、1, 5-ペンタンジオール、2, 3-ペンタンジオール、2, 4-ペンタンジオール、1, 2-ヘキサジオール、1, 3-ヘキサジオール、1, 4-ヘキサジオール、1, 5-ヘキサジオール、1, 6-ヘキサジオール、2, 3-ヘキサジオール、2, 4-ヘキサジオール、2, 5-ヘキサジオール及び3, 4-ヘキサジオール。

[0042] (A) 多価水酸基化合物に含有される不純物（例えば、酸性化合物、硫酸塩、塩化物、重金属等）が少ないことは、本発明の効果をより高める、及び／又は反応終了後、エピスルフィド化合物、未反応のエポキシ化合物、チア化剤の硫黄原子が酸素原子に置換されて生成した化合物、チア化剤、多価水酸基化合物を分離及び／又は精製するに際し、不純物の分離が必要なくなることから、高純度な前記化合物を得る、ための有効な方法である。不純物の含有量としては、5000 ppm以下が好ましく、より好ましくは2000 ppm以下であり、さらに好ましくは500 ppm以下である。

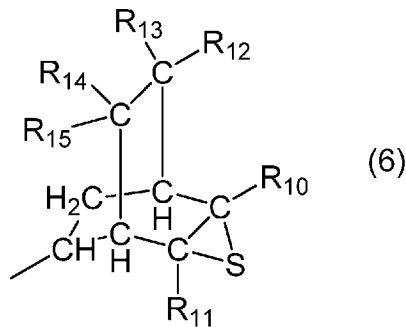
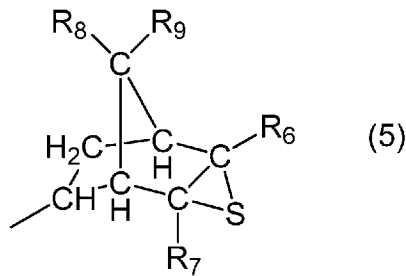
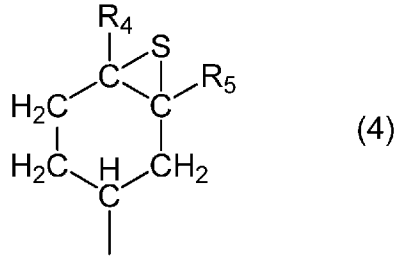
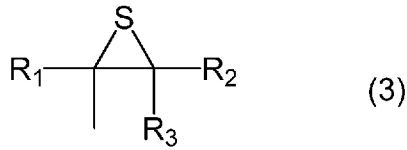
[0043] 本実施形態の(B) エポキシ化合物は、エポキシ基を有する化合物である。1種のエポキシ化合物を単独で用いてもよいし、複数種のエポキシ化合物を組み合わせて用いてもよい。

[0044] (B) エポキシ化合物のエポキシ当量(WPE、g/wq.)は、好ましくは55以上、より好ましくは70以上、さらに好ましくは90以上である。エポキシ当量が55以上であると、エポキシ化合物の標準状態における蒸気圧が高く、取扱いが容易となる傾向にある。エポキシ当量が70以上であると、エピスルフィド化合物の重合物の生成を抑制出来る傾向にあり、同様の観点からエポキシ当量はさらに好ましくは90以上である。製造されたエピスルフィド化合物から形成される硬化物の耐熱性が向上する傾向にあることから、エポキシ当量(WPE)は、700以下であることが好ましく、より好ましくは600以下であり、さらに好ましくは500以下である。

[0045] (B) エポキシ化合物は、3員環エーテル骨格を有する化合物であれば特に限定されないが、エポキシ基とチア化剤との反応時間がより短くなり、生産性が向上する傾向にあることから、下記式(3)、(4)、(5)又は(6)で表される1価の基を部分構造として有することが好ましい。また、エピスルフィド化合物の重合物の生成、及びチア化剤とエピスルフィド化合物との反応を抑制できる傾向にあることから、下記式(3)又は(4)で表される部分構造を有することがより好ましい。同様の観点から、(B) エポキシ化合物は式(3)で表される部分構造を有することが更に好ましい。式中、 R_1 、 R_2 、 R_3 、 R_4 、 R_5 、 R_6 、 R_7 、 R_8 、 R_9 、 R_{10} 、 R_{11} 、 R_{12} 、 R_{13} 、 R_{14} 、及び R_{15} はそれぞれ独立に、水素原子又は炭素数1~10の有機基を示す。

[0046]

[化2]



[0047] (B) エポキシ化合物を具体的に例示するならば、単官能エポキシ化合物、ポリフェノール化合物のグリシジルエーテル化物である多官能エポキシ化合物、脂環式エポキシ化合物、各種ノボラック化合物のグリシジルエーテル化物である多官能エポキシ化合物、芳香族エポキシ化合物の核水素化物、複素環式エポキシ化合物、グリシジルエステル系エポキシ化合物、グリシジルアミン系エポキシ化合物、及びハロゲン化フェノール類をグリシジル化したエポキシ化合物、含硫黄多官能脂肪族エポキシ化合物、分子内にエポキシ基を有するシリコン化合物、異種重合性置換基含有エポキシ化合物等が挙げられる。これらは単独で用いても、複数を組み合わせて用いてもよい。

[0048] (単官能エポキシ化合物)

単官能エポキシ化合物は、特に限定されるものではなく、具体的には、エチレンオキシド、プロピレンオキシド、1-ブテンオキシド、2-ブテンオキシド、ブタジエンオキシド、ブタジエンジエポキシド、シクロブテンオキシド、1,3-シクロブタジエンジエポキシド、1-ペンテンオキシド、2-ペンテンオキシド、1,3-ペンタジエンジエポキシド、1,4-ペンタジエンジエポキシド、2-メチル-2-ブテンオキシド、2-メチル-3-ブテンオキシド、シクロペンテンオキシド、1,3-シクロペンタジエンジエポキシド、1-メチル-シクロブテンオキシド、3-メチル-1-シクロブテンオキシド、1-ヘキセンオキシド、2-ヘキセンオキシド、3-ヘキセンオキシド、1,3-ヘキサジエンジエポキシド、1,4-ヘキサジエンジエポキシド、1,5-ヘキサジエンジエポキシド、1,3,5-ヘキサトリエントリエポキシド、シクロヘキセンオキシド、1,3-シクロヘキサジエンジエポキシド、1,3,5-シクロヘキサトリエントリエポキシド、1-メチル-シクロペンテンオキシド、3-メチル-シクロペンテンオキシド、1-メチル-1,3-シクロペンタジエンジエポキシド、2-メチル-1,3-シクロペンタジエンジエポキシド、5-メチル-1,3-シクロペンタジエンジエポキシド、3,4-ジメチル-シクロブテンオキシド、2,3-ジメチル-シクロブテンオキシド、1,2-ジメチル-シクロブテンオキシド、1,2-ジメチル-1,3-シクロブタジエンジエポキシド、2,3-ジメチル-1,3-シクロブタジエンジエポキシド、3,3-ジメチル-1,2-エポキシブタン、

[0049] 1-ヘプテンオキシド、2-ヘプテンオキシド、3-ヘプテンオキシド、1,3-ヘプタジエンジエポキシド、1,4-ヘプタジエンジエポキシド、1,5-ヘプタジエンジエポキシド、1,5-ヘプタジエンジエポキシド、1,6-ヘプタジエンジエポキシド、1,3,5-ヘプタトリエントリエポキシド、1,3,6-ヘプタトリエントリエポキシド、1,4,6-ヘプタトリエントリエポキシド、シクロヘプテンオキシド、1-メチル-シクロヘキ

センオキシド、3-メチル-シクロヘキセンオキシド、4-メチル-シクロヘキセンオキシド、1-メチル-1,3-シクロヘキサジエンジエポキシド、1-メチル-1,4-ヘキサジエンジエポキシド、1-メチル-1,3,5-ヘキサトリエントリエポキシド、1,2-エポキシ-5-ヘキセン、1,2-エポキシ-4-ビニルシクロヘキセン、2-ノルボルネンオキシド、7-メチル-2-ノルボルネンオキシド、7,7-ジメチル-2-ノルボルネンオキシド、2-メチル-2-ノルボルネンオキシド、2,3-ジメチル-2-ノルボルネンオキシド、2,7-ジメチル-2-ノルボルネンオキシド、2,7,7-トリメチル-2-ノルボルネンオキシド、2,3-エポキシ-ビシクロ[2,2,2]オクタン、2,3-エポキシ-2-メチル-ビシクロ[2,2,2]オクタン、2,3-エポキシ-2,3-ジメチル-ビシクロ[2,2,2]オクタン、2,3-エポキシ-2,5-ジメチル-ビシクロ[2,2,2]オクタン、2,3-エポキシ-2,6-ジメチル-ビシクロ[2,2,2]オクタン、2,3-エポキシ-2,3,5-トリメチル-ビシクロ[2,2,2]オクタン、2,3-エポキシ-2,5,6-トリメチル-ビシクロ[2,2,2]オクタン、2,3-エポキシ-2,3,5,6-テトラメチル-ビシクロ[2,2,2]オクタン、

[0050] エポキシヘキサヒドロフタル酸ジオクチル、エポキシヘキサヒドロフタル酸ジ-2-エチルヘキシル、スチベンオキシド、フェニルグリシジルエーテル、3-(2,2,3,3-テトラフルオロプロポキシ)-1,2-エポキシプロパン、ピネンオキシド、イソプレンモノオキシド、1,2-エポキシエチルベンゼン、ナフチルグリシジルエーテル、3-(2-ビフェニロキシ)-1,2-エポキシプロパン、アリルグリシジルエーテル、1,1-ジフェニル-エチレンオキシド、グリシジル(メタ)アクリレート、グリシジルブチレート、ヨードメチルオキシラン、4-(2,3-エポキシプロピル)モルフォリン、グリシジルメチルエーテル、2-フェニル-プロピレンオキシド、2,3-エポキシプロピル-フルフリルエーテル、2,3,4,5,6-ペンタフルオロスチレンオキシド、エチル-3-フェニルグリシデート、

[0051] フォスミドマイシン、リモネンオキシド、エポキシスクシン酸、3-グリシドキシプロピルトリメトキシシラン、(3-グシリドキシプロピル)ペンタメチルジシロキサン、3-グリシドキシプロピル(メチル)ジメトキシシラン、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(メチル)ジブトキシシラン、2-(3,4-エポキシシクロヘキシル)エチル(メチル)ジメトキシシラン、2-(3,4-エポキシシクロヘキシル)エチル(フェニル)ジエトキシシラン、2,3-エポキシプロピル(メチル)ジメトキシシラン、2,3-エポキシプロピル(フェニル)ジメトキシシラン、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トリエトキシシラン、3-グリシドキシプロピルトリブトキシシラン、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、2-(3,4-エポキシシクロヘキシル)エチルトリエトキシシラン、2,3-エポキシプロピルトリメトキシシラン、及び2,3-エポキシプロピルトリエトキシシランから選ばれ得る。

[0052] 上記の中でも、標準状態における蒸気圧が高く、取扱いが容易であり、エピスルフィド化合物の重合物の生成やチア化剤とエピスルフィド化合物の反応を抑制できる傾向にあることから、単官能エポキシ化合物は、以下の群から選ばれる、少なくとも1種の化合物であることが好ましい。

[0053] エチレンオキシド、プロピレンオキシド、1-ブテンオキシド、2-ブテンオキシド、ブタジエンオキシド、ブタジエンジエポキシド、シクロブテンオキシド、1,3-シクロブタジエンジエポキシド、1-ペンテンオキシド、2-ペンテンオキシド、1,3-ペンタジエンジエポキシド、1,4-ペンタジエンジエポキシド、2-メチル-2-ブテンオキシド、2-メチル-3-ブテンオキシド、シクロペンテンオキシド、1,3-シクロペンタジエンジエポキシド、1-メチル-シクロブテンオキシド、3-メチル-1-シクロブテンオキシド、1-ヘキセンオキシド、2-ヘキセンオキシド、3-ヘキセンオキシド、1,3-ヘキサジエンジエポキシド、1,4-ヘキサジエンジエポキシド、1,5-ヘキサジエンジエポキシド、1,3,5-ヘキ

サトリエントリエポキシド、シクロヘキセンオキシド、1, 3-シクロヘキサジエンジエポキシド、1, 3, 5-シクロヘキサトリエントリエポキシド、1-メチル-シクロペンテンオキシド、3-メチル-シクロペンテンオキシド、1-メチル-1, 3-シクロペンタジエンジエポキシド、2-メチル-1, 3-シクロペンタジエンジエポキシド、5-メチル-1, 3-シクロペンタジエンジエポキシド、

[0054] 3, 4-ジメチル-シクロブテンオキシド、2, 3-ジメチル-シクロブテンオキシド、1, 2-ジメチル-シクロブテンオキシド、1, 2-ジメチル-1, 3-シクロブタジエンジエポキシド、2, 3-ジメチル-1, 3-シクロブタジエンジエポキシド、3, 3-ジメチル-1, 2-エポキシブタン、1-ヘプテンオキシド、2-ヘプテンオキシド、3-ヘプテンオキシド、1, 3-ヘプタジエンジエポキシド、1, 4-ヘプタジエンジエポキシド、1, 5-ヘプタジエンジエポキシド、1, 5-ヘプタジエンジエポキシド、1, 6-ヘプタジエンジエポキシド、1, 3, 5-ヘプタトリエントリエポキシド、1, 3, 6-ヘプタトリエントリエポキシド、1, 4, 6-ヘプタトリエントリエポキシド、シクロヘプテンオキシド、1-メチル-シクロヘキセンオキシド、3-メチル-シクロヘキセンオキシド、4-メチル-シクロヘキセンオキシド、1-メチル-1, 3-シクロヘキサジエンジエポキシド、1-メチル-1, 4-ヘキサジエンジエポキシド、1-メチル-1, 3, 5-ヘキサトリエントリエポキシド、

[0055] 1, 2-エポキシ-5-ヘキセン、1, 2-エポキシ-4-ビニルシクロヘキセン、エポキシヘキサヒドロフタル酸ジオクチル、エポキシヘキサヒドロフタル酸ジ-2-エチルヘキシル、スチベンオキシド、フェニルグリシジルエーテル、3-(2, 2, 3, 3-テトラフルオロプロポキシ)-1, 2-エポキシプロパン、ピネンオキシド、イソプレノモノオキシド、1, 2-エポキシエチルベンゼン、ナフチルグリシジルエーテル、3-(2-ビフェニロキシ)-1, 2-エポキシプロパン、アリルグリシジルエーテル、1, 1-ジフェニル-エチレンオキシド、グリシジル(メタ)アクリレート、グリ

シジルブチレート、ヨードメチルオキシラン、4-(2,3-エポキシプロピル)モルフォリン、グリシジルメチルエーテル、2-フェニルプロピレンオキシド、2,3-エポキシプロピルフルフルルエーテル、2,3,4,5,6-ペンタフルオロスチレンオキシド、エチル-3-フェニルグリシデート、

[0056] フォスミドマイシン、リモネンオキシド、エポキシスクシン酸、3-グリシドキシプロピルトリメトキシシラン、(3-グシリドキシプロピル)ペンタメチルジシロキサン、3-グリシドキシプロピル(メチル)ジメトキシシラン、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(メチル)ジブトキシシラン、2-(3,4-エポキシシクロヘキシル)エチル(メチル)ジメトキシシラン、2-(3,4-エポキシシクロヘキシル)エチル(フェニル)ジエトキシシラン、2,3-エポキシプロピル(メチル)ジメトキシシラン、2,3-エポキシプロピル(フェニル)ジメトキシシラン、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トリエトキシシラン、3-グリシドキシプロピルトリブトキシシラン、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、2-(3,4-エポキシシクロヘキシル)エチルトリエトキシシラン、2,3-エポキシプロピルトリメトキシシラン、及び2,3-エポキシプロピルトリエトキシシラン。

[0057] さらに好ましくは、単官能エポキシ化合物は、以下の群から選ばれる少なくとも1種以上の化合物である。

[0058] プロピレンオキシド、1-ブテンオキシド、2-ブテンオキシド、ブタジエンオキシド、ブタジエンジエポキシド、1-ペンテンオキシド、2-ペンテンオキシド、1,3-ペンタジエンジエポキシド、1,4-ペンタジエンジエポキシド、2-メチル-2-ブテンオキシド、2-メチル-3-ブテンオキシド、シクロペンテンオキシド、1-メチル-シクロブテンオキシド、3-メチル-1-シクロブテンオキシド、1-ヘキセンオキシド、2-ヘキセンオキシド、3-ヘキセンオキシド、1,3-ヘキサジエンジエポキシド

、 1, 4-ヘキサジエンジエポキシド、 1, 5-ヘキサジエンジエポキシド、
 1, 3, 5-ヘキサトリエントリエポキシド、シクロヘキセンオキシド、
 1, 3-シクロヘキサジエンジエポキシド、 1-メチル-シクロペンテンオ
 キシド、 3-メチル-シクロペンテンオキシド、 2-ヘプテンオキシド、 3
 -ヘプテンオキシド、 1, 3-ヘプタジエンジエポキシド、 1, 4-ヘプタ
 ジエンジエポキシド、 1, 5-ヘプタジエンジエポキシド、 1, 5-ヘプタ
 ジエンジエポキシド、 1, 6-ヘプタジエンジエポキシド、

[0059] 1-メチル-シクロヘキセンオキシド、 3-メチル-シクロヘキセンオキシ
 ド、 4-メチル-シクロヘキセンオキシド、 1, 2-エポキシ-5-ヘキセ
 ン、 1, 2-エポキシ-4-ビニルシクロヘキセン、スチベンオキシド、フ
 ェニルグリシジルエーテル、 3-(2, 2, 3, 3-テトラフルオロプロポ
 キシ)-1, 2-エポキシプロパン、ピネンオキシド、イソプレンモノオキ
 シド、 1, 2-エポキシエチルベンゼン、ナフチルグリシジルエーテル、 3
 -(2-ビフェニロキシ)-1, 2-エポキシプロパン、アリルグリシジル
 エーテル、 1, 1-ジフェニル-エチレンオキシド、グリシジル(メタ)ア
 クリレート、グリシジルブチレート、ヨードメチルオキシラン、 4-(2,
 3-エポキシプロピル)モルフォリン、グリシジルメチルエーテル、 2-フ
 ェニル-プロピレンオキシド、 2, 3-エポキシプロピル-フルフリルエー
 テル、 2, 3, 4, 5, 6-ペンタフルオロスチレンオキシド、エチル-3
 -フェニルグリシデート、

[0060] フォスミドマイシン、リモネンオキシド、エポキシスクシン酸、 3-グリシ
 ドキシプロピルトリメトキシシラン、(3-グシリドキシプロピル)ペンタ
 メチルジシロキサン、 3-グリシドキシプロピル(メチル)ジメトキシシラ
 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(メチル)ジブトキシシラン、 2-(3, 4-エポキシシクロ
 ヘキシル)エチル(メチル)ジメトキシシラン、 2-(3, 4-エポキシシ
 クロヘキシル)エチル(フェニル)ジエトキシシラン、 2, 3-エポキシプロ
 ピル(メチル)ジメトキシシラン、 2, 3-エポキシプロピル(フェニル

) ジメトキシシラン、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トリエトキシシラン、3-グリシドキシプロピルトリブトキシシラン、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、2-(3,4-エポキシシクロヘキシル)エチルトリエトキシシラン、2,3-エポキシプロピルトリメトキシシラン、及び2,3-エポキシプロピルトリエトキシシラン。

[0061] (多官能エポキシ化合物)

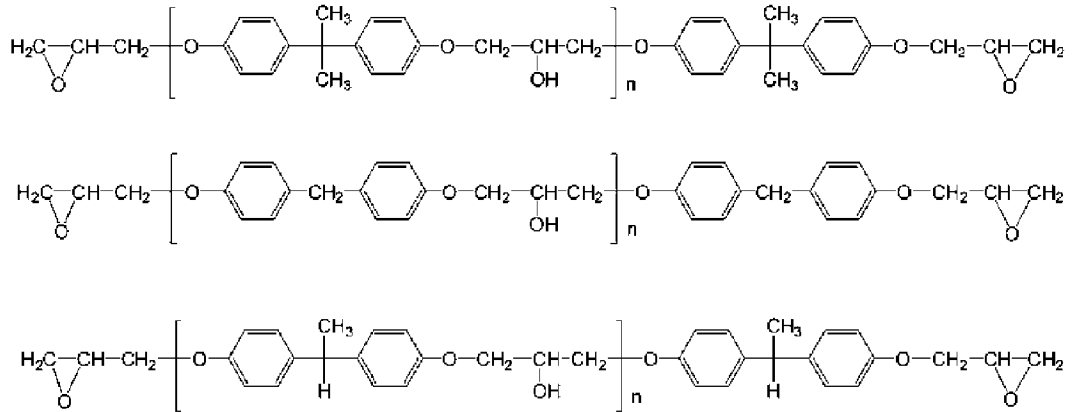
ポリフェノール化合物のグリシジルエーテル化物である多官能エポキシ化合物は、特に限定されるものではなく、具体的には、ビスフェノールA、ビスフェノールF、ビスフェノールS、4,4'-ビフェノール、テトラメチルビスフェノールA、ジメチルビスフェノールA、テトラメチルビスフェノールF、ジメチルビスフェノールF、テトラメチルビスフェノールS、ジメチルビスフェノールS、テトラメチル-4,4'-ビフェノール、ジメチル-4,4'-ビフェニルフェノール、1-(4-ヒドロキシフェニル)-2-[4-(1,1-ビス-(4-ヒドロキシフェニル)エチル)フェニル]プロパン、2,2'-メチレン-ビス(4-メチル-6-t-ブチルフェノール)、4,4'-ブチリデン-ビス(3-メチル-6-t-ブチルフェノール)、トリスヒドロキシフェニルメタン、レゾルシノール、ヒドロキノン、2,6-ジ(t-ブチル)ヒドロキノン、ピロガロール、ジイソプロピリデン骨格を有するフェノール類、1,1-ジ(4-ヒドロキシフェニル)フルオレン等のフルオレン骨格を有するフェノール類、及びフェノール化ポリブタジエン等のポリフェノール化合物のグリシジルエーテル化物から選ばれ得る。

[0062] 上記の中でも、安価に入手できることや、エピスルフィド化合物の重合物の生成やチア化剤とエピスルフィド化合物の反応を抑制できる傾向にあることから、ビスフェノールA骨格、又はビスフェノールF骨格を有するフェノール類のグリシジルエーテル化物である多官能エポキシ化合物が好ましい。

[0063] ビスフェノール骨格を有するフェノール類のグリシジルエーテル化物であ

る多官能エポキシ化合物の代表的な例を下記に示す。

[0064] [化3]



[0065] (脂環式エポキシ化合物)

脂環式エポキシ化合物は、脂環式エポキシ基を有するエポキシ化合物であれば、特に限定されるものではなく、例えば、シクロヘキセンオキサイド基、トリシクロデセンオキサイド基又はシクロペンテンオキサイド基等を有するエポキシ化合物から選ばれ得る。

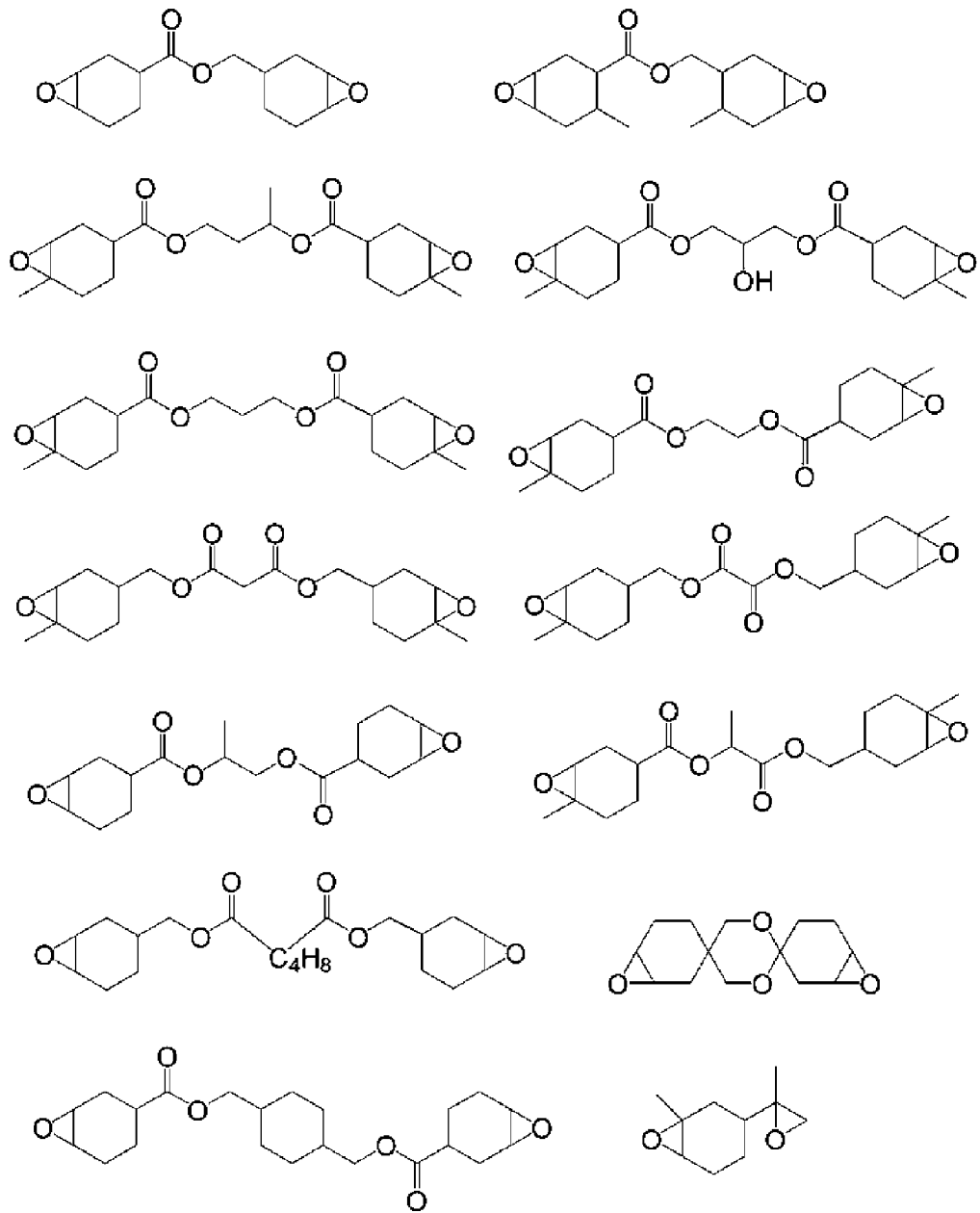
[0066] 脂環式エポキシ化合物の具体例としては、3, 4-エポキシシクロヘキセニルメチル-3', 4'-エポキシシクロヘキセンカルボキシレート、3, 4-エポキシシクロヘキシルメチル-3, 4-エポキシシクロヘキサンカルボキシレート、3, 4-エポキシシクロヘキシルオクチル-3, 4-エポキシシクロヘキサンカルボキシレート、2-(3, 4-エポキシシクロヘキシル-5, 5-スピロ-3, 4-エポキシ)シクロヘキサン-メタジオキサン、ビス(3, 4-エポキシシクロヘキシルメチル)アジペート、ビニルシクロヘキセンジオキサイド、ビス(3, 4-エポキシ-6-メチルシクロヘキシルメチル)アジペート、3, 4-エポキシ-6-メチルシクロヘキシル-3, 4-エポキシ-6-メチルシクロヘキサンカルボキシレート、メチレンビス(3, 4-エポキシシクロヘキサン)、ジシクロペンタジエンジエポキサイド、エチレングリコールジ(3, 4-エポキシシクロヘキシルメチル)エーテル、エチレンビス(3, 4-エポキシシクロヘキサンカルボキシレ

ート)、及び1, 2, 8, 9-ジエポキシリモネンが挙げられる。他の多官能脂環式エポキシ化合物としては、2, 2-ビス(ヒドロキシメチル)-1-ブタノールの1, 2-エポキシ-4-(2-オキシラニル)シクロヘキセン付加物等が挙げられる。多官能脂環式エポキシ化合物の市販品としては、エポリドGT401、EHPE3150(ダイセル化学工業社製)等が挙げられる。

[0067] 脂環式エポキシ化合物の代表的な例を下記に示す。

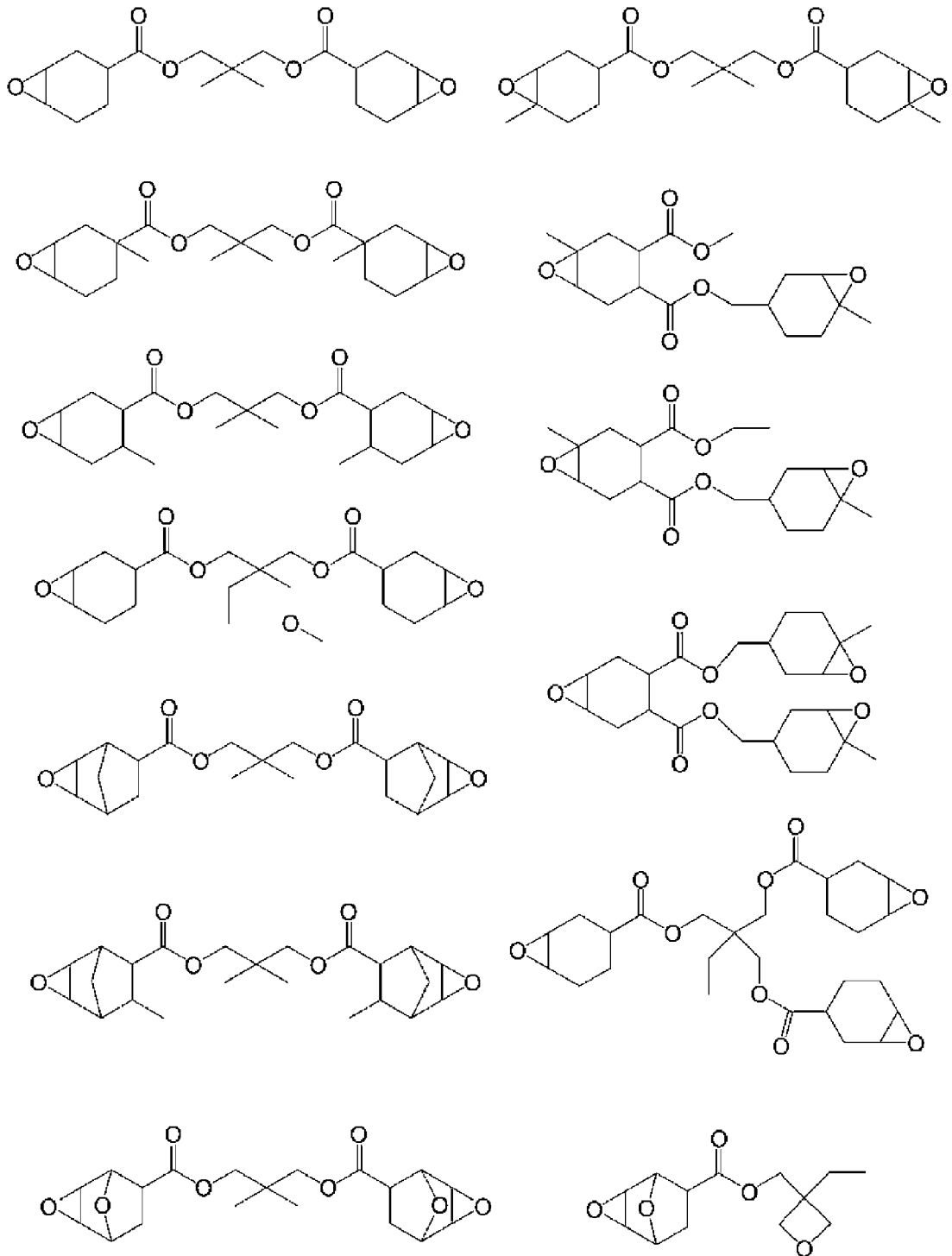
[0068]

[化4]



[0069]

[化5]



[0070] (ノボラック化合物のグリシジルエーテル化物である多官能エポキシ化合物)

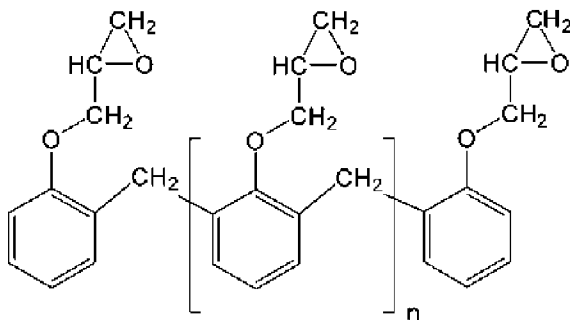
ノボラック化合物のグリシジルエーテル化物である多官能エポキシ化合物

は、特に限定されるものではなく、例えば、フェノール、クレゾール類、エチルフェノール類、ブチルフェノール類、オクチルフェノール類、ビスフェノールA、ビスフェノールF、ビスフェノールS、及びナフトール類等の各種フェノールを原料とするノボラック化合物、キシリレン骨格含有フェノールノボラック化合物、ジシクロペンタジエン骨格含有フェノールノボラック化合物、ビフェニル骨格含有フェノールノボラック化合物、並びに、フルオレン骨格含有フェノールノボラック化合物等の各種ノボラック化合物のグリシジルエーテル化物から選ばれ得る。

[0071] 上記の中でも、入手が容易である観点から、フェノール又はクレゾール類等を原料とするノボラック化合物が好ましい。

[0072] ノボラック化合物のグリシジルエーテル化物である多官能エポキシ化合物の代表的な例を下記に示す。

[0073] [化6]



[0074] (芳香族エポキシ化合物の核水素化物)

芳香族エポキシ化合物の核水素化物は、特に限定されるものではなく、例えば、フェノール化合物（ビスフェノールA、ビスフェノールF、ビスフェノールS、4,4'-ビフェノール等）のグリシジルエーテル化物、又は各種フェノール（フェノール、クレゾール類、エチルフェノール類、ブチルフェノール類、オクチルフェノール類、ビスフェノールA、ビスフェノールF、ビスフェノールS、ナフトール類等）の芳香環を核水素化したもの、並びに、ノボラック化合物のグリシジルエーテル化物の核水素化物から選ばれ得る。

[0075] (複素環式エポキシ化合物)

複素環式エポキシ化合物は、特に限定されるものではなく、例えば、イソシアヌル環、及びヒダントイン環等の複素環を有する複素環式エポキシ化合物から選ばれ得る。

[0076] (グリシジルエステル系エポキシ化合物)

グリシジルエステル系エポキシ化合物は、特に限定されるものではなく、例えば、ヘキサヒドロフタル酸ジグリシジルエステル及びテトラヒドロフタル酸ジグリシジルエステル等の、カルボン酸化合物から誘導されるエポキシ化合物から選ばれ得る。

[0077] (グリシジリアミン系エポキシ化合物)

グリシジリアミン系エポキシ化合物は、特に限定されるものではなく、例えば、アニリン、トルイジン、p-フェニレンジアミン、m-フェニレンジアミン、ジアミノジフェニルメタン誘導体及びジアミノメチルベンゼン誘導体等のアミンをグリシジル化したエポキシ化合物から選ばれ得る。

[0078] (ハロゲン化フェノール類をグリシジル化したエポキシ化合物)

ハロゲン化フェノール類をグリシジル化したエポキシ化合物は、特に限定されるものではなく、例えば、ブロム化ビスフェノールA、ブロム化ビスフェノールF、ブロム化ビスフェノールS、ブロム化フェノールノボラック、ブロム化クレゾールノボラック、クロル化ビスフェノールS、及びクロル化ビスフェノールA等のハロゲン化フェノール類をグリシジルエーテル化したエポキシ化合物から選ばれ得る。

[0079] (含硫黄多官能脂肪族エポキシ化合物)

含硫黄多官能脂肪族エポキシ化合物としては、特に限定されるものではなく、具体的には、1, 1-ビス(エポキシエチル)メタン、1-(エポキシエチル)-1-(β-エポキシプロピル)メタン、1, 1-ビス(β-エポキシプロピル)メタン、1-(エポキシエチル)-1-(β-エポキシプロピル)エタン、1, 2-ビス(β-エポキシプロピル)エタン、1-(エポキシエチル)-3-(β-エポキシプロピル)ブタ

ン、1, 3-ビス (β -エポキシプロピル) プロパン、1- (エポキシエチル) -4- (β -エポキシプロピル) ペンタン、1, 4-ビス (β -エポキシプロピル) ブタン、1- (エポキシエチル) -5- (β -エポキシプロピル) ヘキサン、1- (エポキシエチル) -2- (γ -エポキシブチルチオ) エタン、1- (エポキシエチル) -2- [2- (γ -エポキシブチルチオ) エチルチオ] エタン、テトラキス (β -エポキシプロピル) メタン、1, 1, 1-トリス (β -エポキシプロピル) プロパン、1, 3-ビス (β -エポキシプロピル) -1- (β -エポキシプロピル) -2-チアプロパン、1, 5-ビス (β -エポキシプロピル) -2, 4-ビス (β -エポキシプロピル) -3-チアペンタン、1, 3または1, 4-ビス (エポキシエチル) シクロヘキサン、1, 3または1, 4-ビス (β -エポキシプロピル) シクロヘキサン、2, 5-ビス (エポキシエチル) -1, 4-ジチアン、2, 5-ビス (β -エポキシプロピル) -1, 4-ジチアン、4-エポキシ-1

、2-シクロヘキセンオキシド、2, 2-ビス [4- (エポキシエチル) シクロヘキシル] プロパン、2, 2-ビス [4- (β -エポキシプロピル) シクロヘキシル] プロパン、

[0080] ビス [4- (エポキシエチル) シクロヘキシル] メタン、ビス [4- (β -エポキシプロピル) シクロヘキシル] メタン、ビス [4- (β -エポキシプロピル) シクロヘキシル] スルフィド、ビス [4- (エポキシエチル) シクロヘキシル] スルフィド、ビス (β -エポキシプロピル) エーテル、ビス (β -エポキシプロピルオキシ) メタン、1, 2-ビス (β -エポキシプロピルオキシ) エタン、1, 3-ビス (β -エポキシプロピルオキシ) プロパン、1, 2-ビス (β -エポキシプロピルオキシ) プロパン、1- (β -エポキシプロピルオキシ) -2- (β -エポキシプロピルオキシメチル) プロパン、1, 4-ビス (β -エポキシプロピルオキシ) ブタン、1, 3-ビス (β -エポキシプロピルオキシ) ブタン、1- (β -エポキシプロピルオキシ) -3- (β -エポキシプロピルオキシメチル)

ブタン、1, 5-ビス (β -エポキシプロピルオキシ) ペンタン、1- (β -エポキシプロピルオキシ) -4- (β -エポキシプロピルオキシメチル) ペンタン、1, 6-ビス (β -エポキシプロピルオキシ) ヘキサン、1- (β -エポキシプロピルオキシ) -5- (β -エポキシプロピルオキシメチル) ヘキサン、1- (β -エポキシプロピルオキシ) -2- [(2- β -エポキシプロピルオキシエチル) オキシ] エタン、1- (β -エポキシプロピルオキシ) -2- [[2- (2- β -エポキシプロピルオキシエチル) オキシエチル] オキシ] エタン、テトラキス (β -エポキシプロピルオキシメチル) メタン、1, 1, 1-トリス (β -エポキシプロピルオキシメチル) プロパン、

- [0081] 1, 5-ビス (β -エポキシプロピルオキシ) -2- (β -エポキシプロピルオキシメチル) -3
 -チアペンタン、1, 5-ビス (β -エポキシプロピルオキシ) -2, 4-ビス (β -エポキシプロピルオキシメチル) -3-チアペンタン、1- (β -エポキシプロピルオキシ) -2, 2-ビス (β -エポキシプロピルオキシメチル) -4-チアヘキサン、1, 5,
 6-トリス (β -エポキシプロピルオキシ) -4- (β -エポキシプロピルオキシメチル) -3-チアヘキサン、1, 8-ビス (β -エポキシプロピルオキシ) -4- (β -エポキシプロピルオキシメチル) -3, 6-ジチアオクタン、1, 8-ビス (β -エポキシプロピルオキシ) -4, 5-ビス (β -エポキシプロピルオキシメチル) -3, 6-ジチアオクタン、1, 8-ビス (β -エポキシプロピルオキシ) -4, 4-ビス (β -エポキシプロピルオキシメチル) -3, 6-ジチアオクタン、1, 8-ビス (β -エポキシプロピルオキシ) -2, 4, 5-トリス (β -エポキシプロピルオキシメチル) -3, 6-ジチアオクタン、1, 8-ビス (β -エポキシプロピルオキシ) -2, 5-ビス (β -エポキシプロピルオキシメチル) -3, 6-ジチアオクタン、1, 9-ビス (β -エポキシプロピルオキシ) -5- (β -エポキシプロピルオキシメチル) -5- [(2- β -エポキシプロピルオキシエ

- チル) オキシメチル] - 3, 7-ジチアノナン、1, 1
 0-ビス (β -エポキシプロピルオキシ) - 5, 6-ビス [(2- β -エポキシプロピルオキシエチル) オキシ] - 3, 6, 9-トリチアデカン、
 [0082] 1, 1 1-ビス (β -エポキシプロピルオキシ) - 4, 8-ビス (β -エポキシプロピルオキシメチル) - 3, 6, 9-トリチアウンデカン、1, 1
 1-ビス (β -エポキシプロピルオキシ) - 5, 7-ビス (β -エポキシプロピルオキシメチル) - 3, 6, 9-トリチアウンデカン、1, 1
 1-ビス (β -エポキシプロピルオキシ) - 5, 7- [(2- β -エポキシプロピルオキシエチル) オキシメチル] - 3, 6, 9-トリチアウンデカン、
 1, 1
 1-ビス (β -エポキシプロピルオキシ) - 4, 7-ビス (β -エポキシプロピルオキシメチル) - 3, 6, 9
 -トリチアウンデカン、1, 3 または 1, 4-ビス (β -エポキシプロピルオキシ) シクロヘキサン、1, 3 または 1, 4-ビス (β -エポキシプロピルオキシメチル) シクロヘキサン、ビス [4- (β -エポキシプロピルオキシ) シクロヘキシル] メタン、2, 2-ビス [4- (β -エポキシプロピルオキシ) シクロヘキシル] プロパン、ビス [4- (β -エポキシプロピルオキシ) シクロヘキシル] スルフィド、2, 5-ビス (β -エポキシプロピルオキシメチル)
 -1, 4-ジチアン、2, 5-ビス (β -エポキシプロピルオキシエチルオキシメチル) -1, 4-ジチアン、ビス (β -エポキシプロピル) スルフィド、ビス (β -エポキシプロピル) ジスルフィド、ビス (β -エポキシプロピル) トリスルフィド、ビス (β -エポキシプロピルチオ) メタン、ビス (β -エポキシプロピルジチオ) メタン、ビス (β -エポキシプロピルジチオ) エタン、ビス (β -エポキシプロピルジチオエチル) スルフィド、ビス (β -エポキシプロピルジチオエチル) ジスルフィド、
 [0083] 1, 2-ビス (β -エポキシプロピルチオ) エタン、1, 3-ビス (β -エポキシプロピルチオ) プロパン、1, 2-ビス (β -エポキシプロピルチオ)

) プロパン、1 - (β -エポキシプロピルチオ) - 2 - (β -エポキシプロピルチオメチル) プロパン、1, 4-ビス (β -エポキシプロピルチオ) ブタン、1, 3-ビス (β -エポキシプロピルチオ) ブタン、1 - (β -エポキシプロピルチオ) - 3 - (β -エポキシプロピルチオメチル) ブタン、1, 5-ビス (β -エポキシプロピルチオ) ペンタン、1 - (β -エポキシプロピルチオ) - 4 - (β -エポキシプロピルチオメチル) ペンタン、1, 6-ビス (β -エポキシプロピルチオ) ヘキサン、1 - (β -エポキシプロピルチオ) - 5 - (β -エポキシプロピルチオメチル) ヘキサン、1 - (β -エポキシプロピルチオ) - 2 - [(2- β -エポキシプロピルチオエチル)チオ] エタン、1 - (β -エポキシプロピルチオ) - 2 - [[2 - (2- β -エポキシプロピルチオエチル)チオエチル]チオ] エタンテトラキス (β -エポキシプロピルチオメチル) メタン、テトラキス (β -エポキシプロピルジチオメチル) メタン、1, 1, 1-トリス (β -エポキシプロピルチオメチル) プロパン、1, 2, 3-トリス (β -エポキシプロピルジチオ) プロパン、1, 5-ビス (β -エポキシプロピルチオ) - 2 - (β -エポキシプロピルチオメチル) - 3-チアペンタン、1, 5-ビス (β -エポキシプロピルチオ) - 2, 4-ビス (β -エポキシプロピルチオメチル) - 3-チアペンタン、

[0084] 1, 6-ビス (β -エポキシプロピルジチオメチル) - 2 - (β -エポキシプロピルジチオエチルチオ) - 4-チアヘキサン、1 - (β -エポキシプロピルチオ) - 2, 2-ビス (β -エポキシプロピルチオメチル) - 4-チアヘキサン、1, 5, 6-トリス (β -エポキシプロピルチオ) - 4 - (β -エポキシプロピルチオメチル) - 3-チアヘキサン、1, 8-ビス (β -エポキシプロピルチオ) - 4 - (β -エポキシプロピルチオメチル) - 3, 6-ジチアオクタン、1, 8-ビス (β -エポキシプロピルチオ) - 4, 5-ビス (β -エポキシプロピルチオメチル) - 3, 6-ジチアオクタン、1, 8-ビス (β -エポキシプロピルチオ) - 4, 4-ビス (β -エポキシプロピルチオメチル) - 3, 6-ジチアオクタン、1, 8-

ビス (β -エポキシプロピルチオ) - 2, 4, 5-トリス (β -エポキシプロピルチオメチル) - 3, 6-ジチアオクタン、1, 8-ビス (β -エポキシプロピルチオ) - 2, 5-ビス (β -エポキシプロピルチオメチル) - 3, 6-

ジチアオクタン、1, 9-ビス (β -エポキシプロピルチオ) - 5 - (β -エポキシプロピルチオメチル) - 5 - [(2- β -エポキシプロピルチオエチル)チオメチル] - 3, 7-ジチアノナン、1, 10-

ビス (β -エポキシプロピルチオ) - 5, 6-ビス [(2- β -エポキシプロピルチオエチル)チオ] - 3, 6, 9-トリチアデカン、

[0085] 1, 11-ビス (β -エポキシプロピルチオ) - 4, 8-ビス (β -エポキシプロピルチオメチル) - 3, 6, 9-トリチアウンデカン、1, 11-ビス (β -エポキシプロピルチオ) - 5, 7-ビス (β -エポキシプロピルチオメチル) - 3, 6, 9-トリチアウンデカン、1, 11-ビス (β -エポキシプロピルチオ) - 5, 7 - [(2- β -エポキシプロピルチオエチル)チオメチル] - 3, 6, 9-トリチアウンデカン、1, 11-ビス (β -エポキシプロピルチオ) - 4, 7-ビス (β -エポキシプロピルチオメチル) - 3, 6, 9-トリチアウンデカン、テトラ [2- (β -エポキシプロピルチオ)アセチルメチル]メタン、1, 1, 1-トリ [2- (β -エポキシプロピルチオ)アセチルメチル]プロパン、テトラ [2- (β -エポキシプロピルチオメチル)アセチルメチル]メタン、1, 1, 1-トリ [2- (β -エポキシプロピルチオメチル)アセチルメチル]プロパン、1, 3または1, 4-ビス (β -エポキシプロピルチオ)シクロヘキサン、1, 3または1, 4-ビス (β -エポキシプロピルチオメチル)シクロヘキサン、2, 5-ビス (β -エポキシプロピルチオメチル) - 1, 4-ジチアン、2, 5-ビス (β -エポキシプロピルジチオメチル) - 1, 4-ジチアン、2, 5-ビス (β -エポキシプロピルチオエチルチオメチル) - 1, 4-ジチアン、ビス [4- (β -エポキシプロピルチオ)シクロヘキシル]メタン、2, 2-ビス [4-

(β -エポキシプロピルチオ)シクロヘキシル]プロパン、ビス〔4-(β -エポキシプロピルチオ)シクロヘキシル]スルフィド、2, 2-ビス〔4-(β -エポキシプロピルチオ)

シクロヘキシル]プロパン、ビス〔4-(β -エポキシプロピルチオ)シクロヘキシル]スルフィドから選ばれ得る。

[0086] 上記の中でも、製造が容易であるため、得られるエピスルフィド化合物のコストが抑制でき、経済性に優れることから、含硫黄多官能脂肪族エポキシ化合物としては、以下の群から選ばれる、少なくとも1種の化合物が好ましい。

[0087] ビス(β -エポキシプロピルオキシ)メタン、1, 2-ビス(β -エポキシプロピルオキシ)エタン、1, 3-ビス(β -エポキシプロピルオキシ)プロパン、1, 2-ビス(β -エポキシプロピルオキシ)プロパン、1-(β -エポキシプロピルオキシ)-2-(β -エポキシプロピルオキシメチル)プロパン、1, 4-ビス(β -エポキシプロピルオキシ)ブタン、1, 3-ビス(β -エポキシプロピルオキシ)ブタン、1-(β -エポキシプロピルオキシ)-3-(β -エポキシプロピルオキシメチル)ブタン、1, 6-ビス(β -エポキシプロピルオキシ)ヘキサン、1-(β -エポキシプロピルオキシ)-5-(β -エポキシプロピルオキシメチル)ヘキサン、1-(β -エポキシプロピルオキシ)-2-[(2- β -エポキシプロピルオキシエチル)オキシ]エタン、1-(β -エポキシプロピルオキシ)-2-[[2-(2- β -エポキシプロピルオキシエチル)オキシエチル]オキシ]エタン、テトラキス(β -エポキシプロピルオキシメチル)メタン、1, 1, 1-トリス(β -エポキシプロピルオキシメチル)プロパン、1-(β -エポキシプロピルオキシ)-2, 2-ビス(β -エポキシプロピルオキシメチル)-4-チアヘキサン、1, 5, 6-トリス(β -エポキシプロピルオキシ)-4-(β -エポキシプロピルオキシメチル)-3-チアヘキサン、

[0088] 1, 8-ビス(β -エポキシプロピルオキシ)-4-(β -エポキシプロピ

ルオキシメチル) - 3, 6-ジチアオクタン、1, 8-ビス (β -エポキシプロピルオキシ) - 4, 5-ビス (β -エポキシプロピルオキシメチル) - 3, 6-ジチアオクタン、1, 8-ビス (β -エポキシプロピルオキシ) - 4, 4-ビス (β -エポキシプロピルオキシメチル) - 3, 6-ジチアオクタン、1, 8-ビス (β -エポキシプロピルオキシ) - 2, 4, 5-トリス (β -エポキシプロピルオキシメチル) - 3, 6-ジチアオクタン、1, 8-ビス (β -エポキシプロピルオキシ) - 2, 5-ビス (β -エポキシプロピルオキシメチル) - 3, 6-ジチアオクタン、1, 3または1, 4-ビス (β -エポキシプロピルオキシ) シクロヘキサン、1, 3または1, 4-ビス (β -エポキシプロピルオキシメチル) シクロヘキサン、ビス [4- (β -エポキシプロピルオキシ) シクロヘキシル] メタン、2, 2-ビス [4- (β -エポキシプロピルオキシ) シクロヘキシル] プロパン、ビス [4- (β -エポキシプロピルオキシ) シクロヘキシル] スルフィド、2, 5-ビス (β -エポキシプロピルオキシメチル) - 1, 4-ジチアン、2, 5-ビス (β -エポキシプロピルオキシエチルオキシメチル) - 1, 4-ジチアン、ビス (β -エポキシプロピル) スルフィド、ビス (β -エポキシプロピル) ジスルフィド、ビス (β -エポキシプロピルチオ) メタン、ビス (β -エポキシプロピルジチオ) メタン、

[0089] ビス (β -エポキシプロピルジチオ) エタン、ビス (β -エポキシプロピルジチオエチル) スルフィド、ビス (β -エポキシプロピルジチオエチル) ジスルフィド、1, 2-ビス (β -エポキシプロピルチオ) エタン、1, 3-ビス (β -エポキシプロピルチオ) プロパン、1, 2-ビス (β -エポキシプロピルチオ) プロパン、1- (β -エポキシプロピルチオ) - 2- (β -エポキシプロピルチオメチル) プロパン、1, 4-ビス (β -エポキシプロピルチオ) ブタン、1, 3-ビス (β -エポキシプロピルチオ) ブタン、1- (β -エポキシプロピルチオ) - 3- (β -エポキシプロピルチオメチル) ブタン、1, 6-ビス (β -エポキシプロピルチオ) ヘキサン、1- (β -エポキシプロピルチオ) - 5- (β -エポキシプロピルチオメチル) ヘキ

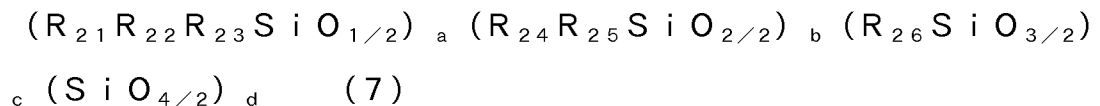
サン、1 - (β -エポキシプロピルチオ) - 2 - [(2 - β -エポキシプロピルチオエチル)チオ]エタン、1 - (β -エポキシプロピルチオ) - 2 - [[2 - (2 - β -エポキシプロピルチオエチル)チオエチル]チオ]エタンテトラキス (β -エポキシプロピルチオメチル)メタン、テトラキス (β -エポキシプロピルジチオメチル)メタン、1, 1, 1-トリス (β -エポキシプロピルチオメチル)プロパン、1, 2, 3-トリス (β -エポキシプロピルジチオ)プロパン、1, 6-ビス (β -エポキシプロピルジチオメチル) - 2 - (β -エポキシプロピルジチオエチルチオ) - 4 - チアヘキサン、1 - (β -エポキシプロピルチオ) - 2, 2-ビス (β -エポキシプロピルチオメチル) - 4 - チアヘキサン、1, 5, 6-トリス (β -エポキシプロピルチオ) - 4 - (β -エポキシプロピルチオメチル) - 3 - チアヘキサン、1, 8-ビス (β -エポキシプロピルチオ) - 4 - (β -エポキシプロピルチオメチル) - 3, 6-ジチアオクタン、

[0090] 1, 8-ビス (β -エポキシプロピルチオ) - 4, 5-ビス (β -エポキシプロピルチオメチル) - 3, 6-ジチアオクタン、1, 8-ビス (β -エポキシプロピルチオ) - 4, 4-ビス (β -エポキシプロピルチオメチル) - 3, 6-ジチアオクタン、1, 8-ビス (β -エポキシプロピルチオ) - 2, 4, 5-トリス (β -エポキシプロピルチオメチル) - 3, 6-ジチアオクタン、1, 8-ビス (β -エポキシプロピルチオ) - 2, 5-ビス (β -エポキシプロピルチオメチル) - 3, 6-ジチアオクタン、テトラ [2 - (β -エポキシプロピルチオ)アセチルメチル]メタン、1, 1, 1-トリ [2 - (β -エポキシプロピルチオ)アセチルメチル]プロパン、テトラ [2 - (β -エポキシプロピルチオメチル)アセチルメチル]メタン、1, 1, 1-トリ [2 - (β -エポキシプロピルチオメチル)アセチルメチル]プロパン、1, 3または1, 4-ビス (β -エポキシプロピルチオ)シクロヘキサン、1, 3または1, 4-ビス (β -エポキシプロピルチオメチル)シクロヘキサン、2, 5-ビス (β -

エポキシプロピルチオメチル) - 1, 4-ジチアン、2, 5-ビス (β-エポキシプロピルジチオメチル) - 1, 4-ジチアン、2, 5-ビス (β-エポキシプロピルチオエチルチオメチル) - 1, 4-ジチアン、ビス [4 - (β-エポキシプロピルチオ) シクロヘキシル] メタン、2, 2-ビス [4 - (β-エポキシプロピルチオ) シクロヘキシル] プロパン、ビス [4 - (β-エポキシプロピルチオ) シクロヘキシル] スルフィド、2, 2-ビス [4 - (β-エポキシプロピルチオ) シクロヘキシル] プロパン、ビス [4 - (β-エポキシプロピルチオ) シクロヘキシル] スルフィド。

[0091] (分子内にエポキシ基を有するシリコン化合物)

分子内にエポキシ基を有するシリコン化合物は、特に限定されるものではなく、例えば、下記式 (7) で表される化合物から選ばれ得る。

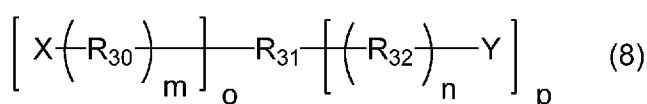


式 (7) 中、a、b、c 及び d はそれぞれ、 $a + b + c + d = 1$ 、0 を満たす数値であり、 $0 \leq a / (a + b + c + d) \leq 1$ 、 $0 \leq b / (a + b + c + d) \leq 1$ 、 $0 \leq c / (a + b + c + d) \leq 1$ 、且つ $0 \leq d / (a + b + c + d) < 1$ である。R₂₁~R₂₆のうち少なくとも1個は、エポキシ基を含有する基を表し、その他のR₂₁~R₂₆は、直鎖状若しくは分岐状の炭素数1~8の炭化水素基又は該炭化水素基がフッ素化された基を表し、これらは互いに同一であっても異なってもよい。

[0092] (異種重合性置換基含有エポキシ化合物)

異種重合性置換基含有エポキシ化合物は、特に限定されるものではなく、例えば下記式 (8) であらわされる化合物から選ばれ得る。

[化7]



式 (8) 中、R₃₀~R₃₂、チア化されていてもよい置換又は未置換の鎖状

、分岐状、環状の脂肪族又は芳香族炭化水素基を示す。m、n、o、pは、1以上の実数を示す。Xは、エポキシ基を示す。Yは、単種の重合性置換基を示す場合、環状エーテル構造、環状チオエーテル構造、ラクトン構造、環状カーボネート構造、及びその含硫黄類縁構造、環状アセタール構造、及びその含硫黄類縁構造、環状アミン構造、環状イミノエーテル構造、ラクタム構造、環状チオウレア構造、環状ホスフィナート構造、環状ホスホナイト構造、環状ホスファイト構造、ビニル構造、アリル構造、(メタ)アクリル構造、シクロアルカン構造から選ばれ、複数種の重合性置換基を示す場合、前記の群より選ばれる少なくとも2種以上の構造を示す。

[0093] (B) エポキシ化合物に含有される不純物(例えば、エポキシ化合物を製造するための原料、塩化物、重金属、ナトリウム等)が少ないことは、本発明の効果をより高める、及び/又は反応終了後、エピスルフィド化合物、未反応のエポキシ化合物、チア化剤の硫黄原子が酸素原子に置換されて生成した化合物、チア化剤、多価水酸基化合物を分離及び/又は精製するに際し、不純物の分離が必要なくなることから、高純度な前記化合物を得る、ための有効な方法である。不純物の含有量としては、5000ppm以下が好ましく、より好ましくは2000ppm以下であり、さらに好ましくは500ppm以下である。

[0094] 本実施形態の(C)チア化剤は、エポキシ基と反応してエピスルフィド基を生成させる化合物であれば、特に限定されるものではない。1種のチア化剤を単独で用いてもよいし、複数種のチア化剤を組み合わせ用いてもよい。

[0095] (C)チア化剤は、チオシアン酸塩及びチオ尿素類からなる群より選ばれる少なくとも1種の化合物を含むことが好ましい。より好ましくは、チア化剤は、チオシアン酸ナトリウム、チオシアン酸カリウム、チオシアン酸アンモニウム及びチオ尿素からなる群より選ばれる少なくとも1種以上の化合物であり、さらに好ましくはチオ尿素である。チオシアン酸塩及びチオ尿素類は、入手が容易であることから、経済性に優れる傾向にある。また、チオシ

アン酸ナトリウム、チオシアン酸カリウム、チオシアン酸アンモニウム及びチオ尿素によれば、反応時間が短くなり、経済性に優れる傾向にあり、同様の観点からチオ尿素が特に好ましい。

[0096] (C) チア化剤を具体的に例示するならば、チオシアン酸リチウム、チオシアン酸ナトリウム、チオシアン酸カリウム、チオシアン酸ルビジウム、チオシアン酸セシウム、チオシアン酸銀、チオシアン酸第一コバルト、チオシアン酸第二水銀、チオシアン酸第一タリウム、チオシアン酸第一銅、二チオシアン酸鉛、二チオシアン酸ニッケル、二チオシアン酸バリウム、チオシアン酸アンモニウム、チオシアン酸グアニジン、チオ尿素、N, N'-ジメチルチオ尿素、N, N, N', N'-テトラメチルチオ尿素、N, N'-ジエチルチオ尿素、プロピルチオ尿素、N, N'-ジイソプロピルチオ尿素、N, N'-ジブチルチオ尿素、N-メチル-N'-(2-メチル-2-プロペニル)チオ尿素、N-フェニルチオ尿素、N, N'-ジフェニルチオ尿素、1-メチル-2-イミダゾリジンチオン、1-ベンジル-2-チオ尿素、N-(3, 5-ジメチルフェニル)チオ尿素、N-(2, 6-ジメチルフェニル)チオ尿素、N-(2, 3-ジメチルフェニル)チオ尿素、N-(2, 4, 6-トリメチルフェニル)チオ尿素、N, N'-ビス(2-メチルフェニル)チオ尿素、N, N'-ビス(3, 5-ジメチルフェニル)チオ尿素、N, N'-ビス(2, 6-ジメチルフェニル)チオ尿素、N, N'-ビス(2, 4, 6-トリメチルフェニル)チオ尿素、N-(2-クロロフェニル)チオ尿素、N-(3-クロロフェニル)チオ尿素、N-(4-クロロフェニル)チオ尿素、N-(3, 4-ジクロロフェニル)チオ尿素、N-(3, 5-ジクロロフェニル)チオ尿素、N-(2, 6-ジクロロフェニル)チオ尿素、

[0097] N-(2, 4, 6-トリクロロフェニル)チオ尿素、N, N'-ビス(2-クロロフェニル)チオ尿素、N, N'-ビス(3, 5-ジクロロフェニル)チオ尿素、N, N'-ビス(2, 6-ジクロロフェニル)チオ尿素、N-(2-フルオロフェニル)チオ尿素、N-(3-フルオロフェニル)チオ尿素

、N-(4-フルオロフェニル)チオ尿素、N-[2-(トリフルオロメチル)フェニル]チオ尿素、N-[3-(トリフルオロメチル)フェニル]チオ尿素、N-[4-(トリフルオロメチル)フェニル]チオ尿素、N-(2,6-ジフルオロフェニル)チオ尿素、N-(2,4-ジフルオロフェニル)チオ尿素、N-(2,3-ジフルオロフェニル)チオ尿素、N-(2,4,6-トリフルオロフェニル)チオ尿素、N,N'-ビス(2-フルオロフェニル)チオ尿素、N,N'-ビス(2,6-ジフルオロフェニル)チオ尿素、N,N'-ビス(2,4,6-トリフルオロフェニル)チオ尿素、N-(2-シアノフェニル)チオ尿素、N-(3-シアノフェニル)チオ尿素、N-(4-シアノフェニル)チオ尿素、N-(3,5-ジシアノフェニル)チオ尿素、N,N'-ビス(4-シアノフェニル)チオ尿素、N,N'-ビス(3,5-ジシアノフェニル)チオ尿素、N-(2-メトキシフェニル)チオ尿素、N-(3-メトキシフェニル)チオ尿素、N-(4-メトキシフェニル)チオ尿素、N-(2,6-ジメトキシフェニル)チオ尿素、N-(3,5-ジメトキシフェニル)チオ尿素、N-(2,4,6-トリジメトキシフェニル)チオ尿素、N,N'-ビス(4-メトキシフェニル)チオ尿素、N,N'-ビス(2,6-ジメトキシフェニル)チオ尿素、N,N'-ビス(2,4,6-トリジメトキシフェニル)チオ尿素、N-(2-ニトロフェニル)チオ尿素、N-(3-ニトロフェニル)チオ尿素、N-(4-ニトロフェニル)チオ尿素、N-(3,5-ジニトロフェニル)チオ尿素、及びN,N'-ビス(3,5-ジニトロフェニル)チオ尿素が挙げられる。

[0098] 担体及び該担体に担持された前記チア化剤を有する担持物を用いることで、反応時間が短くなり、エピスルフィド化合物同士の重合物、及びエピスルフィド化合物とチア化剤との反応物の生成が抑制でき、収率が高められ、反応終了後、担持物を分離することで、チア化剤を分離する際の操作が容易になる場合がある。なお、ここでいう担持とは、担体上、又は担体内部にチア化剤を付着させることや、担体に含有されるアニオン性の原子や分子をチオイソシアン酸アニオンと交換することを示す。

[0099] 担体としては一般的に用いられるものであれば、特に限定されないが、具体的には、シリカ（球状、破碎状、鱗片状等のどのような形状でもよく、また、酸性、中性のどちらでもよい）、アルミナ（球状、リング状、ペレット状等のどのような形状でもよく、また活性化処理を施してしても、いなくてもよい）、イオン交換樹脂（例えば、Dow Chemical社製のアンバーリスト™、アンバーライト™、アンバージェット™、ダウエックス™、ポリビニルアミン、ポリビニルピリジン等）、が挙げられる。

[0100] (C) チア化剤に含有される不純物（例えば、硫酸塩、塩化物、硫化物、銅、鉛、鉄、ヨウ素、ナトリウム等）が少ないことは、本発明の効果をより高める、及び／又は反応終了後、エピスルフィド化合物、未反応のエポキシ化合物、チア化剤の硫黄原子が酸素原子に置換されて生成した化合物、チア化剤、多価水酸基化合物を分離及び／又は精製するに際し、不純物の分離が必要なくなることから、高純度な前記化合物を得る、ための有効な方法である。不純物の含有量としては、5000 ppm以下が好ましく、より好ましくは2000 ppm以下であり、さらに好ましくは500 ppm以下である。

[0101] (B) エポキシ化合物、と (C) チア化剤との反応の際のこれらの混合比率は、以下の式 (1) で算出される混合指標 α で表すことができる。

$$\text{混合指標 } \alpha = \alpha_t / \alpha_e \quad (1)$$

式 (1) 中、

α_t は、チア化剤に含まれる、エピスルフィド基の生成に用いられ得る硫黄原子の物質質量 (mol) を示し、 α_e はエポキシ化合物に含まれるエポキシ基の物質質量 (mol) を示す。

[0102] 本実施形態において、混合指標 α は、1 以上であることが好ましく、より好ましくは1.2 以上であり、さらに好ましくは1.5 以上である。混合指標 α が1 以上であると、エポキシ化合物とチア化剤との反応時間がより短くなり、生産性が向上する傾向にある。混合指標 α が1.2 以上であると、未反応のエポキシ化合物が減少して、エピスルフィド化合物の収率が更に高く

なる傾向にある。同様の観点から、混合指標 α は、さらに好ましくは1.5以上である。

[0103] 混合指標 α は、10以下であることが好ましく、より好ましくは6以下であり、さらに好ましくは4以下である。混合指標 α が10以下であると、過剰なチア化剤を用いないことから、経済性に優れる傾向にある。また、混合指標 α が6以下であると、エピスルフィド化合物とチア化剤との反応物の生成が抑制でき、収率が高められる傾向にある。同様の観点から、混合指標 α はさらに好ましくは4以下である。

[0104] (B) エポキシ化合物、と (C) チア化剤との反応の際の、(A) 多価水酸基化合物と (C) チア化剤との混合比率は、以下の式(2)で算出される混合指標 β で表すことができる。

$$\text{混合指標 } \beta = \beta_t / \beta_o \quad (2)$$

なお、式(2)中、

β_t はチア化剤の質量 (g)、

β_o は多価水酸基化合物の質量 (g)、をそれぞれ示す。

[0105] 本実施形態において、混合指標 β は、0.010以上であることが好ましく、より好ましくは0.015以上であり、さらに好ましくは0.020以上である。混合指標 β が0.010以上であると、エポキシ化合物の反応時間がより短くなり、生産性が向上する傾向にある。混合指標 β が0.015以上であると、多価水酸基化合物の使用量を低減できることから、経済性に優れる傾向にある。同様の観点から、混合指標 β はさらに好ましくは0.020以上である。

[0106] 混合指標 β は、0.500以下であることが好ましく、より好ましくは0.450以下であり、さらに好ましくは0.420以下である。混合指標 β が0.500以下であると、エポキシ化合物との反応時間がより短くなり、生産性が向上する傾向がある。混合指標 β が0.450以下であると、エピスルフィド化合物の重合物の生成が抑制されて、生成物の選択性がより優れる傾向にある。同様の観点から混合指標 β はさらに好ましくは0.420以

下である。

- [0107] (B) エポキシ化合物と (C) チア化剤との反応は、(A) 多価水酸基化合物、(B) エポキシ化合物及び (C) チア化剤を含有する反応液中で行われる。反応液を調整する際には、(A) 多価水酸基化合物、(B) エポキシ化合物及び (C) チア化剤をどの順序で添加してもよい。各化合物を一度に添加してもよいし、徐々に添加してもよい。反応液の調製は、(A) 多価水酸基化合物及び (C) チア化剤を含みこれらが均一に混合された溶液を調整し、その後、この溶液に (B) エポキシ化合物を添加する方法、又は、この溶液に (B) エポキシ化合物に添加する方法が、エピスルフィド化合物の収率の向上、及び反応時間の安定の点等から、特に有効である。
- [0108] 反応液が溶媒を更に含有することは、(B) エポキシ化合物及び／又は (C) チア化剤の種類によっては、有効な手段となり得る。
- [0109] 溶媒は特に限定されないが、具体例としては、水、メタノール及びエタノール等の一価水酸基化合物類；ジエチルエーテル、テトラヒドロフラン及びジオキサン等のエーテル類、メチルセルソルブ、エチルセルソルブ及びブチルセルソルブ等のヒドロキシエーテル類；アセトニトリル、プロピオニトリル、ブチロニトリル、バレロニトリル及びベンゾニトリル等のニトリル類；N, N-ジメチルホルムアミド及びN, N-ジメチルアセトアミド等のアミド類；ジメチルスルホキシド及びジブチルスルホキシド等のスルホキシド類；ベンゼン、トルエン及びキシレン等の芳香族炭化水素類が挙げられる。これらは単独で使用しても、複数を組み合わせて使用してもよい。
- [0110] 反応液が反応触媒を含有することは、より反応時間を短縮するために、有効な手段となる場合がある。反応触媒は特に限定されないが、有機触媒や無機触媒が挙げられる。これらは単独で使用しても、複数組み合わせて使用しても良い。
- [0111] 有機触媒の具体例としては、トリフルオロメタンスルホン酸、シュウ酸、p-トルエンスルホン酸、シアヌル酸クロリド、酢酸アンモニウム、メチルホスファイト、エチルホスファイト、プロピルホスファイト、ブチルホスファ

イト、 β -デキストリン、等が挙げられる。これらは単独で使用しても、複数組み合わせ使用しても良い。

[0112] 無機触媒の具体例としては、酸性イオン交換樹脂（例えば、Dow Chemical社製のアンバーライト™、アンバージェット™、ダウエックス™、）、塩化アルミニウムやテトラフルオロホウ酸が前記担体に担持された担持物、活性アルミナ、トリクロロチタニウム（IV）トリフルオロメタンスルホネート、チタニウム（IV）オキシトリフロオロメタンスルホネート、トリフルオロメタンスルホン酸鉄（III）、ドデシル酸アルミニウム（III）、塩化ルテニウム、塩化ビスマス、硝酸セリウムアンモニウム、アンモニウムデカタングストセレート（IV）イコサハイドレート、ポタシウムドデカタングストコバルテートトリハイドレート、錫（IV）テトラフェニルポリフィリナートテトラフルオロボレート、等が挙げられる。これらは単独で使用しても、複数組み合わせ使用しても良い。

[0113] 前記反応触媒が反応液に含まれないことは、反応終了後、エピスルフィド化合物、未反応のエポキシ化合物、チア化剤の硫黄原子が酸素原子に置換されて生成した化合物、チア化剤、多価水酸基化合物を分離及び／又は精製するに際し、反応触媒の分離が必要なくなることから、高純度な前記化合物を得るための有効な方法である。

[0114] 反応液が酸及び／又は酸無水物を含有することは、エピスルフィド化合物同士の重合を更に抑制できる場合があることから、収率を上げる面から有効な手段である。

[0115] 酸及び酸無水物は特に限定されないが、具体例としては、硝酸、塩酸、硫酸、発煙硫酸、ホウ酸、ヒ酸、リン酸、青酸、酢酸、過酢酸、チオ酢酸、酒石酸、プロピオン酸、蔞酸、酪酸、コハク酸、マレイン酸、安息香酸、無水硝酸、酸化ホウ素、五酸化ヒ酸、五酸化リン、無水クロム酸、無水酢酸、無水プロピオン酸、無水酪酸、無水コハク酸、無水マレイン酸、無水安息香酸、無水フタル酸、シリカゲル、シリカアルミナ及び塩化アルミニウム、等が挙げられる。これらは単独で使用しても、複数を組み合わせ使用してもよ

い。

[0116] 反応液がアンモニウム塩を含有することは、反応中に臭気が生じた場合、臭気を抑制でき、作業環境の改善の観点から、有効な手段である。

アンモニウム塩は特に限定されないが、具体例としては、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、蟻酸アンモニウム、酢酸アンモニウム、プロピオン酸アンモニウム、安息香酸アンモニウム、硫酸アンモニウム、硝酸アンモニウム、炭酸アンモニウム、リン酸アンモニウム、水酸化アンモニウム等が挙げられる。これらは単独で使用しても、複数を組み合わせて使用してもよい。

[0117] (A) 多価水酸基化合物と (B) エポキシ化合物が均一溶解しない場合には、エポキシ化合物の反応時間がより短くなることから、多価水酸基化合物又はエポキシ化合物を系中で微分散とする方法が、有効な手段である。

微分散する方法は特に限定はなく、例えば、攪拌強度を高める方法等が例示でき、具体的には、攪拌方法（攪拌翼形式、ホモジナイザー、高圧ホモジナイザー、超高压ホモジナイザー、超音波ホモジナイザー、ポリトロンホモジナイザー等）、攪拌翼の形状（例えば、ファン、プロペラ、十字、バタフライ、とんぼ、タービン、ディスクタービン、ディスパ、パドル、傾斜パドル等）、攪拌翼の攪拌速度、反応槽へのバッフルの設置、ホモジナイザーのシャフト形状（万能型、攪拌型、多重超音波型、オープン型、密閉型等）等を適切に設定することで達成される。

[0118] (B) エポキシ化合物と (C) チア化剤との反応の反応温度（反応液の温度）は、溶媒の選択によっては溶媒が凝固し、反応速度が低下する場合があるため、0℃以上であることが好ましい。さらに、エポキシ化合物の反応時間がより短縮化できる点から、5℃以上であることがより好ましく、10℃以上であることがさらに好ましい。反応温度は、エピスルフィド基の分解反応が抑制されて、生成物の収率が向上する傾向にあることから、100℃以下であることが好ましい。さらに、エピスルフィド化合物の重合物の生成が抑制されて、生成物の収率がより高くなる傾向にあることから、80℃以下

であることがより好ましく、60℃以下であることがさらに好ましい。

反応温度は上記範囲であれば一定である必要はなく、途中で変化させても良い。

[0119] 反応雰囲気は、一般的に用いられる雰囲気であれば特に限定はされないが、通常は大気雰囲気、窒素雰囲気、及びアルゴン雰囲気等が用いられる。これらのなかでも、反応液の着色を抑制できる場合があることから、窒素雰囲気、及びアルゴン雰囲気が好ましい。また、経済性に優れる傾向にあることから、窒素雰囲気がさらに好ましい。

[0120] 反応圧力は、特に限定はされず、通常は大気圧下で反応が行われる。ただし、(B) エポキシ化合物の標準状態での蒸気圧が低く、反応中にエポキシ化合物が揮発する可能性がある場合には、大気圧以上の加圧を行うことが、有効な手段である。

[0121] 反応終了後、エピスルフィド化合物又はエピスルフィド化合物とエポキシ化合物の混合物とそれ以外とを分離する工程と、エピスルフィド化合物とエポキシ化合物の混合物の場合には、これらを分離する工程と、さらに必要に応じて得られたエピスルフィド化合物及び／又はエポキシ化合物を精製する工程と、を経ることで、高純度のエピスルフィド化合物並びにエポキシ化合物を得ることができる。

[0122] 反応液からエピスルフィド化合物又はエピスルフィド化合物とエポキシ化合物の混合物を含む反応生成物、とそれ以外を分離する方法として、例えば、反応液を静置することで、反応生成物とそれ以外とを分離する方法、反応液に水を添加し、反応生成物と、水層との2層に分液して反応生成物を分離する方法、並びに、反応液に非極性溶媒及び水を添加し、非極性溶媒層及び水層の2層に分液し、非極性溶媒層中に反応生成物を抽出する方法が有効である。

[0123] 非極性溶媒は、通常用いられるものであれば特に限定されるものではないが、具体例としては、*n*-ペンタン、*n*-ヘキサン、イソヘキサン、*n*-ヘ

プタン、*n*-オクタン、*n*-デカン、シクロペンタン、シクロヘキサン、シクロヘプタン、及びシクロオクタンなどの脂肪族炭化水素化合物、並びに、ベンゼン、トルエン、キシレン、エチルベンゼン、ジエチルベンゼン、イソプロピルベンゼン、ナフタリン、テトラリン、及びビフェニルなどの芳香族炭化水素化合物、並びに、塩化メチレン、クロロホルム、四塩化炭素、塩化エチレン、トリクロロエタン、テトラクロロエタン、ペンタクロロエタン、ヘキサクロロエタン、ジクロロエチレン、トリクロロエチレン、テトラクロロエチレン、ジクロロプロパン、トリクロロプロパン、塩化イソプロピル、塩化ブチル、塩化ヘキシル、クロロベンゼン、ジクロロベンゼン、トリクロロベンゼン、クロロトルエン、及びクロロナフタリンなどのハロゲン化炭化水素化合物、ジエチルエーテル、テトラヒドロフラン及びジオキサンなどのエーテル化合物、メチルセルソルブ、エチルセルソルブ及びブチルセルソルブなどのヒドロキシエーテル化合物、等が挙げられる。これら非極性溶媒は、単独で使用しても、複数を組み合わせて使用してもよい。

[0124] 反応液、反応生成物と水からなる2層、非極性溶媒層及び水層からなる2層に塩化合物を添加する方法が、これら2層の分離を早める有効な手段となる場合がある。

[0125] 塩化合物の具体例としては、塩化ナトリウム、塩化カリウム、塩化アンモニウム、炭酸水素ナトリウム、炭酸ナトリウム、及びチオ硫酸ナトリウム等が挙げられる。これら塩化合物は、単独で使用しても、複数を組み合わせて使用してもよい。

[0126] 反応生成物と水からなる2層、又は非極性溶媒層及び水層の2層のうち水層を除去することによって、反応生成物、又は反応生成物を含有する非極性溶媒層を得ることができる。

[0127] 得られた非極性溶媒層中の非極性溶媒を、エバポレーター等を用いて除去し、反応生成物を濃縮することによって、反応生成物中のエピスルフィド化合物又はエピスルフィド化合物とエポキシ化合物の混合物の含有量を高めることができる。

- [0128] 反応生成物を、酸性水溶液を用いて洗浄することは、反応生成物の安定性を向上させる面から有効な手段となる場合がある。
- [0129] 酸性水溶液は、通常用いられるものであれば特に限定されないが、具体例としては、硝酸、塩酸、硫酸、ホウ酸、ヒ酸、リン酸、青酸、過酢酸、チオ酢酸、蔞酸、酒石酸、酪産、コハク酸、及びマレイン酸等の水溶液が挙げられる。これら酸性水溶液は単独で使用しても、複数を組み合わせて使用してもよい。これらの酸性水溶液は、pH 6以下で効果を現す傾向にあり、より効果的な範囲は、pH 3以下である。
- [0130] 反応生成物を炭化水素系溶媒に溶解し、静置後、エピスルフィド化合物の重合体からなる層を除去することは、エピスルフィド化合物の純度を上げる方法として有効な手段となる場合がある。
- [0131] 炭化水素系溶媒は、通常用いられるものであれば特に限定されないが、具体例としては、n-ペンタン、n-ヘキサン、イソヘキサン、n-ヘプタン、n-オクタン、n-デカン、シクロペンタン、シクロヘキサン、シクロヘプタン及びシクロオクタンなどの脂肪族炭化水素化合物、ベンゼン、トルエン、キシレン、エチルベンゼン、ジエチルベンゼン、イソプロピルベンゼン、ナフタリン、テトラリン及びビフェニルなどの芳香族炭化水素化合物、並びに、塩化メチレン、クロロホルム、四塩化炭素、塩化エチレン、トリクロロエタン、テトラクロロエタン、ペンタクロロエタン、ヘキサクロロエタン、ジクロロエチレン、トリクロロエチレン、テトラクロロエチレン、ジクロロプロパン、トリクロロプロパン、塩化イソプロピル、塩化ブチル、塩化ヘキシル、クロロベンゼン、ジクロロベンゼン、トリクロロベンゼン、クロロトルエン及びクロロナフタリンなどのハロゲン化炭化水素化合物が挙げられる。これら炭化水素溶媒は、単独で使用しても、複数を組み合わせて使用してもよい。
- [0132] エピスルフィド化合物又はエピスルフィド化合物とエポキシ化合物の混合物が蒸留により分離可能である場合には、反応液、または反応生成物を蒸留し、より高い純度のエピスルフィド化合物並びにエポキシ化合物を得る方法

が分離及び／又は精製の有効な手段として用いられる。蒸留温度、蒸留圧力は、エピスルフィド化合物やエポキシ化合物の沸点により適宜設定される。

[0133] 蒸留温度は、100℃以下であることが好ましく、より好ましくは80℃以下であり、さらに好ましくは60℃以下である。蒸留温度が100℃以下であると、エピスルフィド基の分解反応が抑制でき、収率がより向上する傾向にある。蒸留温度が80℃以下であると、エピスルフィド化合物の重合物の生成が抑制されて、収率が更に向上する傾向にある。同様に観点から、蒸留温度はさらに好ましくは60℃以下である。

[0134] 蒸留圧力は、蒸留温度により適宜設定されるが、蒸留温度が100℃を超える場合には、大気圧よりも低い圧力とすることが好ましい。

[0135] 反応液、または反応生成物から高い純度のエピスルフィド化合物及び／又はエポキシ化合物を得る方法として、カラムクロマトグラフィーと呼ばれる手段が有効である。

[0136] カラムクロマトグラフィーとは、有機溶媒に溶解した反応液、または反応生成物を、無機材料、または有機材料が充填されたカラムに染み込ませ、展開溶媒で流通させる方法であり、具体的には、オープンカラムクロマトグラフィー、フラッシュカラムクロマトグラフィー、HPLC (High performance liquid chromatography)、GPC (Gas permeation chromatography) 及びイオン交換カラムクロマトグラフィー等が挙げられる。

[0137] 有機溶媒及び展開溶媒は、通常用いられるものであれば特に限定されないが、具体例としては、*n*-ペンタン、*n*-ヘキサン、イソヘキサン、*n*-ヘプタン、*n*-オクタン、イソオクタン、*n*-ノナン、*n*-デカン、シクロペンタン、シクロヘキサン、シクロヘプタン及びシクロオクタンなどの飽和炭化水素化合物、ベンゼン、トルエン、キシレン、エチルベンゼン、ジエチルベンゼン、イソプロピルベンゼン、ナフタリン、テトラリン及びビフェニルなどの芳香族炭化水素化合物、塩化メチレン、クロロホルム、四塩化炭素、塩化エチレン、トリクロロエタン、テトラクロロエタン、ペンタクロロエタ

ン、ヘキサクロロエタン、ジクロロエチレン、トリクロロエチレン、テトラクロロエチレン、ジクロロプロパン、トリクロロプロパン、塩化イソプロピル、塩化ブチル、塩化ヘキシル、クロロベンゼン、ジクロロベンゼン、トリクロロベンゼン、クロロトルエン及びクロロナフタリンなどのハロゲン化炭化水素化合物、

[0138] メタノール、エタノール、プロパノール、イソプロパノール、ブタノール、イソブタノール、ペンタノール、ヘキサノール、ヘプタノール、オクタノール、ノナノール、デカノール、ウンデカノール、ドデカノール、シクロヘキサノール及びベンジルアルコールなどのアルコール類、エチルエーテル、ジクロロエチルエーテル、イソプロピルエーテル、ブチルエーテル、ヘキシルエーテル、メチルフェニルエーテル、エチルフェニルエーテル、ブチルフェニルエーテル、ジオキサン、トリオキサン及びテトラヒドロフランなどのエーテル類、アセトン、メチルアセトン、エチルメチルケトン、メチルプロピルケトン、メチルブチルケトン、メチルイソブチルケトン、メチルヘキシルケトン、ジエチルケトン、エチルブチルケトン、ジプロピルケトン及びジイソブチルケトン、シクロヘキサノンなどのケトン類、並びに、酢酸エチル、酢酸プロピル、酢酸ブチル、酢酸イソブチル、酢酸ペンチル、酢酸ヘキシル、酢酸オクチル、酢酸シクロヘキシル、プロピオン酸メチル、プロピオン酸エチル、プロピオン酸ブチル、安息香酸メチル、安息香酸エチル、安息香酸プロピル、安息香酸ブチル及び安息香酸ベンジルなどのエステル類が挙げられる。これら有機溶媒及び展開溶媒は、単独で使用しても、複数を組み合わせて使用してもよい。

[0139] カラムクロマトグラフィーの充填剤として用いられる無機材料は、通常用いられるものであれば特に限定されないが、具体例としては、シリカゲル、化学修飾シリカゲル、アルミナ、ジルコニア及びハイドロキシアパタイトが挙げられる。

[0140] カラムクロマトグラフィーの充填剤として用いられる有機材料は、通常用いられるものであれば特に限定されないが、具体例としては、スチレン・ジ

ビニルベンゼン共重合体、ポリメタクリレート、ポリヒドロキシメタクリレート、ポリビニルアルコール、OH体吸着用活性炭、金属Cr添着炭、気層メルカプタン吸着炭、及びアルカリ添着炭が挙げられる。

[0141] これらの充填剤のなかでも、より高い分離能で分離させることができるという観点から、無機材料が好ましく、シリカゲルがさらに好ましい。

[0142] 充填剤がシリカゲルである場合、このシリカゲルの平均粒径は、特に限定されないが、エピスルフィド化合物及び／又はエポキシ化合物以外の物質を効果的に除去することができる傾向にあることから、600 μm 以下であることが好ましく、より好ましくは500 μm 以下であり、さらに好ましくは400 μm 以下である。展開溶媒を流通するために必要なポンプの負荷を低減でき、安定的な流量を制御できる傾向にあることから、5 μm 以上であることが好ましく、より好ましくは10 μm 以上であり、さらに好ましくは20 μm 以上である。シリカゲルの細孔容積は、特に限定されないが、充填剤の強度を高め、展開溶媒を流通することで生じる圧力により充填剤が崩壊することを抑制する観点から、5 mL/mL以下であることが好ましく、より好ましくは3 mL/mL以下であり、さらに好ましくは1 mL/mL以下である。エピスルフィド化合物及び／又はエポキシ化合物以外の物質を効果的に除去することができる傾向にあることから、0.1 mL/mL以上であることが好ましく、より好ましくは0.3 mL/mL以上であり、さらに好ましくは0.5 mL/mL以上である。シリカゲルの比表面積は、特に限定されないが、エピスルフィド化合物及び／又はエポキシ化合物以外の物質を効果的に除去することができる傾向にあることから、100 m²/g以上であることが好ましく、より好ましくは200 m²/g以上であり、さらに好ましくは300 m²/g以上である。展開溶媒を流通するために必要なポンプの負荷を低減でき、安定的な流量を制御できる傾向にあることから、シリカゲルの比表面積は、5000 m²/g以下が好ましく、より好ましくは4000 m²/g以下であり、さらに好ましくは3000 m²/g以下である。

[0143] カラムクロマトグラフィーにおいて、カラム長(L)とカラム径(D)の

比率である L/D は、特に限定されないが、 0.01 以上であることが好ましく、より好ましくは 0.03 以上であり、さらに好ましくは 0.05 以上である。 L/D が 0.01 以上であると、エピスルフィド化合物及び／又はエポキシ化合物以外の物質を効果的に除去することができる傾向にある。 L/D は、 1000 以下であることが好ましく、より好ましくは 700 以下であり、さらに好ましくは 500 以下である。 L/D が 1000 以下であると、エピスルフィド化合物及び／又はエポキシ化合物がカラム内で充填剤と反応することを低減できる傾向にある。

[0144] カラムを通過させる展開溶剤の毎分当たりの流量（線速度、 $\text{cm}/\text{分}$ ）は、特に限定されないが、安定的な流量を制御する観点から、 $0.1\text{ cm}/\text{分}$ 以上が好ましく、より好ましくは $0.15\text{ cm}/\text{分}$ 以上であり、さらに好ましくは $0.2\text{ cm}/\text{分}$ 以上である。流量が大きい場合、展開溶媒を流通するために必要なポンプの負荷が高まるため、 $10000\text{ cm}/\text{分}$ 以下が好ましく、より好ましくは $5000\text{ cm}/\text{分}$ 以下であり、さらに好ましくは $2000\text{ cm}/\text{分}$ 以下である。カラムクロマトグラフィーを行う温度は、特に限定されないが、展開溶媒の選択によっては展開溶媒が凝固し、流通するために必要なポンプの負荷が高まるため、 0°C 以上が好ましく、より好ましくは 5°C 以上であり、さらに好ましくは 10°C 以上である。エピスルフィド化合物及び／又はエポキシ化合物がカラム内で充填剤と反応することを低減できる傾向にあることから、からむクロマトグラフィーを行う温度は、 100°C 以下が好ましく、より好ましくは 80°C 以下であり、さらに好ましくは 60°C 以下である。

[0145] 前記の分離及び／又は精製により得られたエポキシ化合物は、（A）2個以上の水酸基を有する多価水酸化化合物の存在下で、（B）エポキシ化合物のエポキシ基を（C）チア化剤との反応によりチア化する工程において再利用することができる。この操作は、廃棄物としてのエポキシ化合物の量を抑制し、エピスルフィド化合物を製造するコストを低減できる場合があることから、有効な手段である。

- [0146] 反応液から反応生成物を分離したときの残留物に含有される多価水酸基化合物、抽出により得られる水層に含有される多価水酸基化合物、及び、エピスルフィド化合物又はエピスルフィド化合物とエポキシ化合物の混合物を蒸留したときの蒸留残渣に含有される多価水酸基化合物は、蒸留及び／又はカラムクロマトグラフィー等の操作を行うことにより、それ以外の成分と分離することができる。
- [0147] 多価水酸基化合物を分離するための蒸留温度、蒸留圧力は、多価水酸基化合物の沸点により適宜設定される。蒸留温度は、通常用いられる範囲であれば特に限定されないが、製造コストを抑制する観点から、300℃以下であることが好ましく、より好ましくは250℃以下であり、さらに好ましくは200℃以下である。蒸留圧力は、通常用いられる範囲であれば特に限定されず、加圧、常圧、減圧を適宜設定することができるが、蒸留温度が前記の好ましい範囲を超える場合には、減圧することが好ましい。
- [0148] カラムクロマトグラフィーは前記と同様の方法により、実施することができる。
- [0149] さらに、前記分離操作により得られる多価水酸基化合物を精製し、高純度のものとするには、蒸留及びカラムクロマトグラフィー等の分離操作を繰り返し行うことが有効な手段となる場合がある。
- [0150] 分離された多価水酸基化合物は、(A) 2個以上の水酸基を有する多価水酸基化合物の存在下で、(B) エポキシ化合物のエポキシ基を(C) チア化剤との反応によりチア化する工程、に再利用することができる。この操作は、多価水酸基化合物の廃棄量が削減され、エピスルフィド化合物を製造するコストが低くなる場合があることから、有効な手段である。
- [0151] チア化剤の硫黄原子が酸素原子に置換されて生成する化合物、又は該化合物とチア化剤との混合物と、それ以外の化合物とを分離する工程と、チア化剤の硫黄原子が酸素原子に置換されて生成する化合物とチア化剤との混合物の場合には、それらを分離する工程と、さらに必要に応じて得られた、チア化剤の硫黄原子が酸素原子に置換されて生成するチア化剤及び／又はチア化

剤を精製する工程と、を経ることで、チア化剤の硫黄原子が酸素原子に置換されて生成する化合物、並びにチア化剤を得ることができる。

[0152] 反応液から反応生成物を分離した後の残留物、抽出により得られる水層、エピスルフィド化合物又はエピスルフィド化合物とエポキシ化合物の混合物を蒸留したときの残留物、さらに多価水酸基化合物を蒸留したときの残留物に含有される、チア化剤の硫黄原子が酸素原子に置換されて生成する化合物、又は該化合物とチア化剤との混合物は、溜去又は析出等の操作を行うことにより、それ以外の成分のから分離することができる。

[0153] 溜去温度、溜去圧力は、チア化剤の硫黄原子が酸素原子に置換されて生成する化合物、又は該化合物とチア化剤との混合物以外の成分の沸点により適宜設定される。

[0154] 溜去温度は、通常用いられる範囲であれば特に限定されないが、チア化剤の硫黄原子が酸素原子に置換されて生成する化合物、及びチア化剤の熱分解を抑制する観点からは、250℃以下であることが好ましく、より好ましくは200℃以下であり、さらに好ましくは150℃以下である。

[0155] 溜去圧力は、通常用いられる範囲であれば特に限定されず、加圧、常圧、減圧を適宜設定することができるが、溜去温度が前記の好ましい範囲を超える場合には、減圧することが好ましい。

[0156] 反応液から反応生成物を分離した後の残留物、抽出により得られる水層、エピスルフィド化合物又はエピスルフィド化合物とエポキシ化合物との混合物を蒸留したときの残留物、又は、多価水酸基化合物を蒸留したときの残留物に対し、必要に応じて溶媒を添加し、溶液とした後、温度による溶解度の差、溶液の濃縮や他の溶媒の添加などによる溶解度の減少あるいは共通イオン効果を利用することで、チア化剤の硫黄原子が酸素原子に置換されて生成する化合物及び／又はチア化剤、を析出させ、分離することができる。

[0157] チア化剤の硫黄原子が酸素原子に置換されて生成する化合物とチア化剤との混合物が析出した場合には、前記の析出操作を再度行うことで、チア化剤の硫黄原子が酸素原子に置換されて生成する化合物とチア化剤とを分離する

ことができる。

[0158] 析出を利用するために用いられる条件は、当業者であれば、一般的な条件から適宜調整することができる。例えば、新実験科学講座（丸善株式会社）、有機結晶作製ハンドブック（丸善株式会社）、有機化合物結晶作製ハンドブック 原理とノウハウ（丸善株式会社）に例示されている方法を参考に、析出による分離操作を実施することができる。さらに、前記に例示されている方法を参考に、温度、圧力、溶媒、添加剤等の条件を変更して、析出を利用することができる。

[0159] さらに、前記分離操作により得られる、チア化剤の硫黄原子が酸素原子に置換されて生成する化合物、及び／又はチア化剤を精製し、高純度のものとするには、溜去及び析出等の分離操作を繰り返し行うことが有効な手段となる場合がある。

[0160] チア化剤の硫黄原子が酸素原子に置換されて生成する化合物、又は該化合物とチア化剤との混合物をチア化剤へ再生する工程を経ることで、チア化剤を再生することができる。

[0161] チア化剤を再生する方法は、一般的なものであれば特に限定されず、例えば、

Faming Zhuanli Shenqing Gongkai Shuomingshu (2009), CN 101602702, Huaxue Gongye Yu Gongcheng (Tianjin, China) 2006, 23, 407-410., Journal of Sulfur Chemistry 2005, 26, 155-161.

に例示されている方法を参考に、実施することができる。さらに、前記に例示されている方法を参考に、温度、圧力、溶媒、添加剤等の条件を変更して、利用することができる。

[0162] チア化剤を再生する方法として、下記式（9）で示される1, 3, 2, 4-ジチアジホスフェタン-2, 4-ジスルフィド骨格を有する化合物と、チ

ア化剤の硫黄原子が酸素原子に置換されて生成する化合物、又は該化合物とチア化剤の混合物とを反応させる方法を利用する場合、式(9)で示される化合物の具体的な例としては、

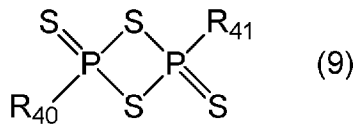
Tetrahedron 1985, 41, 5061-5087.

J. Chem. Soc., Dalton Trans., 2000, 1533-1543.

Synthesis 2003, 1929-1958.

を挙げるができる。

[0163] [化8]



(式中、 R_{40} 、 R_{41} は炭素数1~20の有機基を示し、同一であってもそれぞれ独立であってもよい)

[0164] 再生されたチア化剤は、(A) 2個以上の水酸基を有する多価水酸基化合物の存在下で、(B) エポキシ化合物のエポキシ基を(C) チア化剤との反応によりチア化する工程、に再利用することができる。この操作は、チア化剤の硫黄原子が酸素原子に置換されて生成する化合物、又はチア化剤の廃棄量が削減され、エピスルフィド化合物を製造するコストが低くなる場合があることから、有効な手段である。

[0165] 得られたエピスルフィド化合物は、重合触媒の存在下、加熱若しくは除熱しながらの重合、又は、エネルギー線照射による重合を行うことにより、重合物を生成することができる。また、エピスルフィド化合物が2個以上のエピスルフィド基を有する場合、同様の方法により、硬化物を得ることができる。

[0166] 加熱若しくは除熱しながらの重合に用いられる硬化触媒の具体例としては、下記の(1)~(11)の化合物が挙げられる。

[0167] (1) エチルアミン、*n*-プロピルアミン、*sec*-プロピルアミン、*n*-ブチルアミン、*sec*-ブチルアミン、*i*-ブチルアミン、*tert*-

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、デシルアミン、ラウリルアミン、ミスチリルアミン、1, 2-ジメチルヘキシルアミン、3-ペンチルアミン、2-エチルヘキシルアミン、アリルアミン、アミノエタノール、1-アミノプロパノール、2-アミノプロパノール、アミノブタノール、アミノペンタノール、アミノヘキサノール、3-エトキシプロピルアミン、3-プロポキシプロピルアミン、3-イソプロポキシプロピルアミン、3-ブトキシプロピルアミン、3-イソブトキシプロピルアミン、3-(2-エチルヘキシロキシ)プロピルアミン、アミノシクロペンタン、アミノシクロヘキサン、アミノノルボルネン、アミノメチルシクロヘキサン、アミノベンゼン、ベンジルアミン、フェネチルアミン、 α -フェニルエチルアミン、ナフチルアミン及びフルフリルアミン等の1級アミン；

[0168] エチレンジアミン、1, 2-ジアミノプロパン、1, 3-ジアミノプロパン、1, 2-ジアミノブタン、1, 3-ジアミノブタン、1, 4-ジアミノブタン、1, 5-ジアミノペンタン、1, 6-ジアミノヘキサン、1, 7-ジアミノヘプタン、1, 8-ジアミノオクタン、ジメチルアミノプロピルアミン、ジエチルアミノプロピルアミン、ビス-(3-アミノプロピル)エーテル、1, 2-ビス-(3-アミノプロポキシ)エタン、1, 3-ビス-(3-アミノプロポキシ)-2, 2'-ジメチルプロパン、アミノエチルエタノールアミン、1, 2-ビスアミノシクロヘキサン、1, 3-ビスアミノシクロヘキサン、1, 4-ビスアミノシクロヘキサン、1, 3-ビスアミノメチルシクロヘキサン、1, 4-ビスアミノメチルシクロヘキサン、1, 3-ビスアミノエチルシクロヘキサン、1, 4-ビスアミノエチルシクロヘキサン、1, 3-ビスアミノプロピルシクロヘキサン、1, 4-ビスアミノプロピルシクロヘキサン、水添4, 4'-ジアミノジフェニルメタン、2-アミノピペリジン、4-アミノピペリジン、2-アミノメチルピペリジン、4-アミノメチルピペリジン、2-アミノエチルピペリジン、4-アミノエチルピペリジン、N-アミノエチルピペリジン、N-アミノプロピルピペリジン、

N-アミノエチルモルホリン、N-アミノプロピルモルホリン、イソホロンジアミン、メントンジアミン、1, 4-ビスアミノプロピルピペラジン、o-フェニレンジアミン、m-フェニレンジアミン、p-フェニレンジアミン、2, 4-トリレンジアミン、2, 6-トリレンジアミン、2, 4-トルエンジアミン、m-アミノベンジルアミン、4-クロロ-o-フェニレンジアミン、

[0169] テトラクロロ-p-キシリレンジアミン、4-メトキシ-6-メチル-m-フェニレンジアミン、m-キシリレンジアミン、p-キシリレンジアミン、1, 5-ナフタレンジアミン、2, 6-ナフタレンジアミン、ベンジジン、4, 4'-ビス(o-トルイジン)、ジアニシジン、4, 4'-ジアミノジフェニルメタン、2, 2-(4, 4'-ジアミノジフェニル)プロパン、4, 4'-ジアミノジフェニルエーテル、4, 4'-チオジアニリン、4, 4'-ジアミノジフェニルスルホン、4, 4'-ジアミノジトリルスルホン、メチレンビス(o-クロロアニリン)、3, 9-ビス(3-アミノプロピル)2, 4, 8, 10-テトラオキサスピロ[5, 5]ウンデカン、ジエチレントリアミン、イミノビスプロピルアミン、メチルイミノビスプロピルアミン、ビス(ヘキサメチレン)トリアミン、トリエチレンテトラミン、テトラエチレンペンタミン、ペンタエチレンヘキサミン、N-アミノエチルピペラジン、N-アミノプロピルピペラジン、1, 4-ビス(アミノエチルピペラジン)、1, 4-ビス(アミノプロピルピペラジン)及び2, 6-ジアミノピリジン、ビス(3, 4-ジアミノフェニル)スルホン等の1級ポリアミン；

[0170] ジエチルアミン、ジプロピルアミン、ジ-n-ブチルアミン、ジ-sec-ブチルアミン、ジイソブチルアミン、ジ-n-ペンチルアミン、ジ-3-ペンチルアミン、ジヘキシルアミン、オクチルアミン、ジ(2-エチルヘキシル)アミン、メチルヘキシルアミン、ジアリルアミン、ピロリジン、ピペリジン、2-ピコリン、3-ピコリン、4-ピコリン、2, 4-ルペチジン、2, 6-ルペチジン、3, 5-ルペチジン、ジフェニルアミン、N-メチル

アニリン、N-エチルアニリン、ジベンジルアミン、メチルベンジルアミン、ジナフチルアミン、ピロール、インドリン、インドール及びモルホリン等の2級アミン；

[0171] N, N' -ジメチルエチレンジアミン、N, N' -ジメチル-1, 2-ジアミノプロパン、N, N' -ジメチル-1, 3-ジアミノプロパン、N, N' -ジメチル-1, 2-ジアミノブタン、N, N' -ジメチル-1, 3-ジアミノブタン、N, N' -ジメチル-1, 4-ジアミノブタン、N, N' -ジメチル-1, 5-ジアミノペンタン、N, N' -ジメチル-1, 6-ジアミノヘキサン、N, N' -ジメチル-1, 7-ジアミノヘプタン、N, N' -ジエチルエチレンジアミン、N, N' -ジエチル-1, 2-ジアミノプロパン、N, N' -ジエチル-1, 3-ジアミノプロパン、N, N' -ジエチル-1, 2-ジアミノブタン、N, N' -ジエチル-1, 3-ジアミノブタン、N, N' -ジエチル-1, 4-ジアミノブタン、N, N' -ジエチル-1, 6-ジアミノヘキサン、ピペラジン、2-メチルピペラジン、2, 5-ジメチルピペラジン、2, 6-ジメチルピペラジン、ホモピペラジン、1, 1-ジ- (4-ピペリジル) メタン、1, 2-ジ- (4-ピペリジル) エタン、1, 3-ジ- (4-ピペリジル) プロパン、1, 4-ジ- (4-ピペリジル) ブタン及びテトラメチルグアニジン等の2級ポリアミン；

[0172] トリメチルアミン、トリエチルアミン、トリーn-プロピルアミン、トリーi s o-プロピルアミン、トリー-1, 2-ジメチルプロピルアミン、トリー-3-メトキシプロピルアミン、トリーn-ブチルアミン、トリーi s o-ブチルアミン、トリーs e c-ブチルアミン、トリーペンチルアミン、トリー-3-ペンチルアミン、トリーn-ヘキシルアミン、トリーn-オクチルアミン、トリー-2-エチルヘキシルアミン、トリードデシルアミン、トリーラウリルアミン、ジシクロヘキシルエチルアミン、シクロヘキシルジエチルアミン、トリーシクロヘキシルアミン、N, N-ジメチルヘキシルアミン、N-メチルジヘキシルアミン、N, N-ジメチルシクロヘキシルアミン、N-メチルジシクロヘキシルアミン、N, N-ジエチルエタノールアミン、N, N

ージメチルエタノールアミン、N-エチルジエタノールアミン、トリエタノールアミン、トリベンジルアミン、N, N-ジメチルベンジルアミン、ジエチルベンジルアミン、トリフェニルアミン、N, N-ジメチルアミノ-p-クレゾール、N, N-ジメチルアミノメチルフェノール、2-(N, N-ジメチルアミノメチル)フェノール、N, N-ジメチルアニリン、N, N-ジエチルアニリン、ピリジン、キノリン、N-メチルモルホリン、N-メチルピペリジン及び2-(2-ジメチルアミノエトキシ)-4-メチル-1, 3, 2-ジオキサボルナン等の3級アミン；

[0173] テトラメチルエチレンジアミン、ピラジン、N, N'-ジメチルピペラジン、N, N'-ビス((2-ヒドロキシ)プロピル)ピペラジン、ヘキサメチレンテトラミン、N, N, N', N'-テトラメチル-1, 3-ブタンアミン、2-ジメチルアミノ-2-ヒドロキシプロパン、ジエチルアミノエタノール、N, N, N-トリス(3-ジメチルアミノプロピル)アミン、2, 4, 6-トリス(N, N-ジメチルアミノメチル)フェノール及びヘプタメチルイソビグアニド等の3級ポリアミン；

[0174] イミダゾール、N-メチルイミダゾール、2-メチルイミダゾール、4-メチルイミダゾール、N-エチルイミダゾール、2-エチルイミダゾール、4-エチルイミダゾール、N-ブチルイミダゾール、2-ブチルイミダゾール、N-ウンデシルイミダゾール、2-ウンデシルイミダゾール、N-フェニルイミダゾール、2-フェニルイミダゾール、N-ベンジルイミダゾール、2-ベンジルイミダゾール、1-ベンジル-2-メチルイミダゾール、N-(2'-シアノエチル)-2-メチルイミダゾール、N-(2'-シアノエチル)-2-ウンデシルイミダゾール、N-(2'-シアノエチル)-2-フェニルイミダゾール、3, 3-ビス-(2-エチル-4-メチルイミダゾリル)メタン、アルキルイミダゾールとイソシアヌール酸の付加物及びアルキルイミダゾールとホルムアルデヒドの縮合物等の各種イミダゾール類；1, 8-ジアザビシクロ(5, 4, 0)ウンデセン-7, 1, 5-ジアザビシクロ(4, 3, 0)ノネン-5, 6-ジブチルアミノ-1, 8-ジアザビシ

クロ（5，4，0）ウンデセン-7等のアミジン類；以上に代表されるアミン化合物。

[0175] (2) (1) のアミン類とボランおよび三フッ化ホウ素とのコンプレックス。

[0176] (3) トリメチルホスフィン、トリエチルホスフィン、トリーi s o-プロピルホスフィン、トリーn-ブチルホスフィン、トリーn-ヘキシルホスフィン、トリーn-オクチルホスフィン、トリシクロヘキシルホスフィン、トリフェニルホスフィン、トリベンジルホスフィン、トリス（2-メチルフェニル）ホスフィン、トリス（3-メチルフェニル）ホスフィン、トリス（4-メチルフェニル）ホスフィン、トリス（ジエチルアミノ）ホスフィン、トリス（4-メチルフェニル）ホスフィン、ジメチルフェニルホスフィン、ジエチルフェニルホスフィン、ジシクロヘキシルフェニルホスフィン、エチルジフェニルホスフィン、ジフェニルシクロヘキシルホスフィン及びクロロジフェニルホスフィン等のホスフィン類。

[0177] (4) テトラメチルアンモニウムクロライド、テトラメチルアンモニウムブロマイド、テトラメチルアンモニウムアセテート、テトラエチルアンモニウムクロライド、テトラエチルアンモニウムブロマイド、テトラエチルアンモニウムアセテート、テトラ- n-ブチルアンモニウムフルオライド、テトラ- n-ブチルアンモニウムクロライド、テトラ- n-ブチルアンモニウムブロマイド、テトラ- n-ブチルアンモニウムヨードライド、テトラ- n-ブチルアンモニウムアセテート、テトラ- n-ブチルアンモニウムボロハイドライド、テトラ- n-ブチルアンモニウムヘキサフルオロホスファイト、テトラ- n-ブチルアンモニウムヒドロゲンサルファイト、テトラ- n-ブチルアンモニウムテトラフルオロボレート、テトラ- n-ブチルアンモニウムテトラフェニルボレート、テトラ- n-ブチルアンモニウムパラトルエンスルフォネート、テトラ- n-ヘキシルアンモニウムクロライド、テトラ- n-ヘキシルアンモニウムブロマイド、テトラ- n-ヘキシルアンモニウムアセテート、テトラ- n-オクチルアンモニウムクロライド、テトラ- n-

ーオクチルアンモニウムブロマイド、テトラー n ーオクチルアンモニウムアセテート、

[0178] トリメチルー n ーオクチルアンモニウムクロライド、トリメチルベンジルアンモニウムクロライド、トリメチルベンジルアンモニウムブロマイド、トリエチルー n ーオクチルアンモニウムクロライド、トリエチルベンジルアンモニウムクロライド、トリエチルベンジルアンモニウムブロマイド、トリー n ーブチルー n ーオクチルアンモニウムクロライド、トリー n ーブチルベンジルアンモニウムフルオライド、トリー n ーブチルベンジルアンモニウムクロライド、トリー n ーブチルベンジルアンモニウムブロマイド、トリー n ーブチルベンジルアンモニウムヨード、メチルトリフェニルアンモニウムクロライド、メチルトリフェニルアンモニウムブロマイド、エチルトリフェニルアンモニウムクロライド、エチルトリフェニルアンモニウムブロマイド、 n ーブチルトリフェニルアンモニウムクロライド、 n ーブチルトリフェニルアンモニウムブロマイド、1ーメチルピリジニウムブロマイド、1ーエチルピリジニウムブロマイド、1ー n ーブチルピリジニウムブロマイド、1ー n ーヘキシルピリジニウムブロマイド、1ー n ーオクチルピリジニウムブロマイド、1ー n ードデシルピリジニウムブロマイド、1ー n ーフェニルピリジニウムブロマイド、1ーメチルピコリニウムブロマイド、1ーエチルピコリニウムブロマイド、1ー n ーブチルピコリニウムブロマイド、1ー n ーヘキシルピコリニウムブロマイド、1ー n ーオクチルピコリニウムブロマイド、1ー n ードデシルピコリニウムブロマイド及び1ー n ーフェニルピコリニウムブロマイド等の4級アンモニウム塩。

[0179] (5) テトラメチルホスホニウムクロライド、テトラメチルホスホニウムブロマイド、テトラエチルホスホニウムクロライド、テトラエチルホスホニウムブロマイド、テトラー n ーブチルホスホニウムクロライド、テトラー n ーブチルホスホニウムブロマイド、テトラー n ーブチルホスホニウムヨード、テトラー n ーヘキシルホスホニウムブロマイド、テトラー n ーオクチルホスホニウムブロマイド、メチルトリフェニルホスホニウムブロマイド、メ

チルトリフェニルホスホニウムヨード、エチルトリフェニルホスホニウムブロマイド、エチルトリフェニルホスホニウムヨード、*n*-ブチルトリフェニルホスホニウムブロマイド、*n*-ブチルトリフェニルホスホニウムヨード、*n*-ヘキシルトリフェニルホスホニウムブロマイド、*n*-オクチルトリフェニルホスホニウムブロマイド、テトラフェニルホスホニウムブロマイド、テトラキスヒドロキシメチルホスホニウムクロライド、テトラキスヒドロキシメチルホスホニウムブロマイド、テトラキスヒドロキシエチルホスホニウムクロライド及びテトラキスヒドロキシブチルホスホニウムクロライド等のホスホニウム塩。

[0180] (6) トリメチルスルホニウムブロマイド、トリエチルスルホニウムブロマイド、トリー*n*-ブチルスルホニウムクロライド、トリー*n*-ブチルスルホニウムブロマイド、トリー*n*-ブチルスルホニウムヨード、トリー*n*-ブチルスルホニウムテトラフルオロボレート、トリー*n*-ヘキシルスルホニウムブロマイド、トリー*n*-オクチルスルホニウムブロマイド、トリフェニルスルホニウムクロライド、トリフェニルスルホニウムブロマイド及びトリフェニルスルホニウムヨード等のスルホニウム塩。

[0181] (7) ジフェニルヨードニウムクロライド、ジフェニルヨードニウムブロマイド及びジフェニルヨードニウムヨード等のヨードニウム塩。

(8) 塩酸、硫酸、硝酸、燐酸、炭酸等の鉱酸およびこれらの半エステル。

(9) 3フッ化硼素及び3フッ化硼素のエーテラート等に代表されるルイス酸。

(10) 有機酸及びこれらの半エステル。

(11) ケイ酸及び四フッ化ホウ酸。

[0182] これら化合物は単独で使用しても、複数を組み合わせて使用してもよい。これらのなかで重合物の着色が少なく好ましいものは、アミン類、フォスフィン類、第4級アンモニウム塩、第4級ホスホニウム塩、第3級スルホニウム塩及び第2級ヨードニウム塩である。

[0183] エネルギー線照射による重合とは、エネルギー線（紫外線、近紫外線、可

視光及、近赤外線及び赤外線等の光、並びに電子線等)を照射することにより重合物を生成させる方法である。エネルギー線の種類は、特に限定されるものではないが、好ましくは光、より好ましくは紫外線である。

[0184] エネルギー線の発生源は、特に限定されるものではなく、例えば、低圧水銀灯、中圧水銀灯、高圧水銀灯、超高圧水銀灯、UVランプ、キセノンランプ、カーボンアーク灯、メタルハライドランプ、蛍光灯、タングステンランプ、アルゴンイオンレーザ、ヘリウムカドミウムレーザ、ヘリウムネオンレーザ、クリプトンイオンレーザ、各種半導体レーザ、YAGレーザ、エキシマーレーザー、発光ダイオード、CRT光源、プラズマ光源及び電子線照射器等の各種光源が挙げられる。

[0185] エネルギー線による重合の手法は、特に限定されるものではなく、通常、エネルギー線刺激により重合触媒が分解して発生する重合開始種により、対象物質の重合性官能基による重合が開始されるという経過を辿る。

[0186] エネルギー線照射による重合に用いられる重合触媒は、特に限定されるものではなく、発生する活性種によって以下の3つに大別することが可能である。これらの重合触媒は単独で使用しても、複数を組み合わせて使用してもよい。

(1) エネルギー線の照射によりラジカルを発生するもの。

(2) エネルギー線の照射により、カチオンを発生するもの(エネルギー線が光である場合、光酸発生剤と呼ばれる)。

(3) エネルギー線の照射により、アニオンを発生するもの(エネルギー線が光である場合、光塩基発生剤と呼ばれる)

[0187] エネルギー線による重合に用いられる重合触媒の具体例としては、例えば、ベンゾイン類及びベンゾインアルキルエーテル類(ベンゾイン、ベンジル、ベンゾインメチルエーテル及びベンゾインイソプロピルエーテル)、アセトフェノン類(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、1-ヒドロキシシクロヘキシルフェニルケトン、2

ーメチルー１－（４－（メチルチオ）フェニル）－２－モノフォリノープロパンー１－オン及びN，N－ジメチルアミノアセトフェノン等）、アントラキノン類（２－メチルアントラキノン、２－エチルアントラキノン、２－tert－ブチルアントラキノン、１－クロロアントラキノン、２－アミルアントラキノン及び２－アミノアントラキノン等）、チオキサントン類（２，４－ジメチルチオキサントン、２，４－ジエチルチオキサントン、２－クロロチオキサントン及び２，４－ジイソプロピルチオキサントン等）、ケタール類（アセトフェノンジメチルケタール及びベンジルジメチルケタール等）、ベンゾフェノン類（ベンゾフェノン、メチルベンゾフェノン、４，４’－ジクロロベンゾフェノン及び４，４’－ビスジエチルアミノベンゾフェノン等）、キサントン類、安息香酸エステル類（エチル４－ジメチルアミノベンゾエート及び２－（ジメチルアミノ）エチルベンゾエート等）、アミン類（トリエチルアミン及びトリエタノールアミン等）、ヨードニウム塩化合物、スルホニウム塩化合物、アンモニウム塩化合物、ホスホニウム塩化合物、アルソニウム塩化合物、スチボニウム塩化合物、オキシニウム塩化合物、セレノニウム塩化合物、並びに、スタンニウム塩化合物が挙げられる。

[0188] 上記の重合触媒の比率は、エピスルフィド化合物１モルに対して、０．００１モル以上であることが好ましく、より好ましくは０．００５以上であり、さらに好ましくは０．００１以上である。重合触媒を０．０００１モル以上用いることで、重合が効率的に進行し、エピスルフィド化合物の残留を低減できる傾向にある。重合触媒の比率は、エピスルフィド化合物１モルに対して、１．０モル以下であることが好ましく、より好ましくは０．５モル以下であり、さらに好ましくは０．１モル以下である。重合触媒が１．０モル以下であると、重合時の着色を低減できる傾向にある。

[0189] エピスルフィド化合物が２個以上のエピスルフィド基を有する場合、エピスルフィド化合物を硬化剤と反応させることにより、硬化物を得ることができる。

[0190] 硬化剤は、通常用いられるものであれば特に限定されないが、具体例とし

ては、以下の(1)～(3)の化合物が挙げられる。これらは単独で使用しても、複数を組み合わせて使用してもよい。

[0191] (1) エチレンジアミン、1, 2-ジアミノプロパン、1, 3-ジアミノプロパン、1, 2-ジアミノブタン、1, 3-ジアミノブタン、1, 4-ジアミノブタン、1, 5-ジアミノペンタン、1, 6-ジアミノヘキサン、1, 7-ジアミノヘプタン、1, 8-ジアミノオクタン、ジメチルアミノプロピルアミン、ジエチルアミノプロピルアミン、ビス-(3-アミノプロピル)エーテル、1, 2-ビス-(3-アミノプロポキシ)エタン、1, 3-ビス-(3-アミノプロポキシ)-2, 2'-ジメチルプロパン、アミノエチルエタノールアミン、1, 2-ビスアミノシクロヘキサン、1, 3-ビスアミノシクロヘキサン、1, 4-ビスアミノシクロヘキサン、1, 3-ビスアミノメチルシクロヘキサン、1, 4-ビスアミノメチルシクロヘキサン、1, 3-ビスアミノエチルシクロヘキサン、1, 4-ビスアミノエチルシクロヘキサン、1, 3-ビスアミノプロピルシクロヘキサン、1, 4-ビスアミノプロピルシクロヘキサン、水添4, 4'-ジアミノジフェニルメタン、2-アミノピペリジン、4-アミノピペリジン、2-アミノメチルピペリジン、4-アミノメチルピペリジン、2-アミノエチルピペリジン、4-アミノエチルピペリジン、N-アミノエチルピペリジン、N-アミノプロピルピペリジン、N-アミノエチルモルホリン、N-アミノプロピルモルホリン、イソホロンジアミン、メンタンジアミン、1, 4-ビスアミノプロピルピペラジン、o-フェニレンジアミン、m-フェニレンジアミン、p-フェニレンジアミン、

[0192] 2, 4-トリレンジアミン、2, 6-トリレンジアミン、2, 4-トルエンジアミン、m-アミノベンジルアミン、4-クロロ-o-フェニレンジアミン、テトラクロロ-p-キシリレンジアミン、4-メトキシ-6-メチル-m-フェニレンジアミン、m-キシリレンジアミン、p-キシリレンジアミン、1, 5-ナフトレンジアミン、2, 6-ナフトレンジアミン、ベンジジン、4, 4'-ビス(o-トルイジン)、ジアニシジン、4, 4'-ジアミ

ノジフェニルメタン、2, 2- (4, 4'-ジアミノジフェニル) プロパン、4, 4'-ジアミノジフェニルエーテル、4, 4'-チオジアニリン、4, 4'-ジアミノジフェニルスルホン、4, 4'-ジアミノジトリルスルホン、メチレンビス (o-クロロアニリン)、3, 9-ビス (3-アミノプロピル) 2, 4, 8, 10-テトラオキサスピロ [5, 5] ウンデカン、ジエチレントリアミン、イミノビスプロピルアミン、メチルイミノビスプロピルアミン、ビス (ヘキサメチレン) トリアミン、トリエチレンテトラミン、テトラエチレンペンタミン、ペンタエチレンヘキサミン、N-アミノエチルピペラジン、N-アミノプロピルピペラジン、1, 4-ビス (アミノエチルピペラジン)、1, 4-ビス (アミノプロピルピペラジン) 及び2, 6-ジアミノピリジン、ビス (3, 4-ジアミノフェニル) スルホン等の1級ポリアミン;

[0193] N, N'-ジメチルエチレンジアミン、N, N'-ジメチル-1, 2-ジアミノプロパン、N, N'-ジメチル-1, 3-ジアミノプロパン、N, N'-ジメチル-1, 2-ジアミノブタン、N, N'-ジメチル-1, 3-ジアミノブタン、N, N'-ジメチル-1, 4-ジアミノブタン、N, N'-ジメチル-1, 5-ジアミノペンタン、N, N'-ジメチル-1, 6-ジアミノヘキサン、N, N'-ジメチル-1, 7-ジアミノヘプタン、N, N'-ジエチルエチレンジアミン、N, N'-ジエチル-1, 2-ジアミノプロパン、N, N'-ジエチル-1, 3-ジアミノプロパン、N, N'-ジエチル-1, 2-ジアミノブタン、N, N'-ジエチル-1, 3-ジアミノブタン、N, N'-ジエチル-1, 4-ジアミノブタン、N, N'-ジエチル-1, 6-ジアミノヘキサン、ピペラジン、2-メチルピペラジン、2, 5-ジメチルピペラジン、2, 6-ジメチルピペラジン、ホモピペラジン、1, 1-ジ- (4-ピペリジル) メタン、1, 2-ジ- (4-ピペリジル) エタン、1, 3-ジ- (4-ピペリジル) プロパン、1, 4-ジ- (4-ピペリジル) ブタン、テトラメチルグアニジン等の2級ポリアミン;

[0194] テトラメチルエチレンジアミン、ピラジン及びN, N'-ジメチルピペラジ

ン、N、N' -ビス（（2-ヒドロキシ）プロピル）ピペラジン、ヘキサメチレンテトラミン、N、N、N'、N' -テトラメチル-1, 3-ブタンアミン、2-ジメチルアミノ-2-ヒドロキシプロパン、ジエチルアミノエタノール、N、N、N-トリス（3-ジメチルアミノプロピル）アミン、2, 4, 6-トリス（N、N-ジメチルアミノメチル）フェノール及びヘプタメチルイソビグアニド等の3級ポリアミン；以上に代表されるアミン系化合物。

[0195] （2）無水フタル酸、無水コハク酸、無水トリメリット酸、無水ピロメリット酸、無水マレイン酸、テトラヒドロ無水フタル酸、メチルテトラヒドロ無水フタル酸、無水メチルナジック酸、ヘキサヒドロ無水フタル酸、メチルヘキサヒドロ無水フタル酸、1, 2, 3, 6-テトラヒドロ無水フタル酸、3, 4, 5, 6-テトラヒドロ無水フタル酸、ヘキサヒドロ無水フタル酸、「4-メチルヘキサヒドロ無水フタル酸／ヘキサヒドロ無水フタル酸=70／30」、4-メチルヘキサヒドロ無水フタル酸、「メチルビスクロ [2. 2. 1] ヘプタン-2, 3-ジカルボン酸無水物／ビスクロ [2. 2. 1] ヘプタン-2, 3-ジカルボン酸無水物」、テトラプロペニル無水コハク酸、オクテニルコハク酸無水物及び2, 5-ジケトテトラヒドロフラン；以上に代表される酸無水物化合物。

[0196] （3）メタンジチオール、1, 2-ジメルカプトエタン、2, 2-ジメルカプトプロパン、1, 3-ジメルカプトプロパン、1, 2, 3-トリメルカプトプロパン、1, 4-ジメルカプトブタン、1, 6-ジメルカプトヘキサン、ビス（2-メルカプトエチル）スルフィド、1, 2-ビス（2-メルカプトエチルチオ）エタン、1, 5-ジメルカプト-3-オキサペンタン、1, 8-ジメルカプト-3, 6-ジオキサオクタン、2, 2-ジメチルプロパン-1, 3-ジチオール、3, 4-ジメトキシブタン-1, 2-ジチオール、2-メルカプトメチル-1, 3-ジメルカプトプロパン、2-メルカプトメチル1, 4-ジメルカプトプロパン、2-（2-メルカプトエチルチオ）-1, 3-ジメルカプトプロパン、1, 2-ビス（2-メルカプトエチルチオ）

オ) -3-メルカプトプロパン、1, 1, 1-トリス(メルカプトメチル)プロパン、テトラキス(メルカプトメチル)メタン、4, 8-ジメルカプトメチル-1, 11-ジメルカプト-3, 6, 9-トリチアウンデカン、4, 7-ジメルカプトメチル-1, 11-ジメルカプト-3, 6, 9-トリチアウンデカン、5, 7-ジメルカプトメチル-1, 11-ジメルカプト-3, 6, 9-トリチアウンデカン、1, 1, 3, 3-テトラキス(メルカプトメチルチオ)プロパン、エチレングリコールビス(2-メルカプトアセテート)、エチレングリコールビス(3-メルカプトプロピオネート)、1, 4-ブタンジオールビス(2-メルカプトアセテート)、1, 4-ブタンジオールビス(3-メルカプトプロピオネート)、

[0197] トリメチロールプロパントリス(2-メルカプトアセテート)、トリメチロールプロパントリス(3-メルカプトプロピオネート)、ペンタエリスリトールテトラキス(2-メルカプトアセテート)、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)、1, 1-ジメルカプトシクロヘキサン、1, 2-ジメルカプトシクロヘキサン、1, 3-ジメルカプトシクロヘキサン、1, 4-ジメルカプトシクロヘキサン、1, 3-ビス(メルカプトメチル)シクロヘキサン、1, 4-ビス(メルカプトメチル)シクロヘキサン、2, 5-ビス(メルカプトメチル)-1, 4-ジチアン、2, 5-ビス(メルカプトエチル)-1, 4-ジチアン、1, 2-ビス(メルカプトメチル)ベンゼン、1, 3-ビス(メルカプトメチル)ベンゼン、1, 4-ビス(メルカプトメチル)ベンゼン、ビス(4-メルカプトフェニル)スルフィド、ビス(4-メルカプトフェニル)エーテル、2, 2-ビス(4-メルカプトフェニル)プロパン、ビス(4-メルカプトメチルフェニル)スルフィド、ビス(4-メルカプトメチルフェニル)エーテル、2, 2-ビス(4-メルカプトメチルフェニル)プロパン、o-ジメルカプトベンゼン、m-ジメルカプトベンゼン、p-ジメルカプトベンゼン、及び1, 3, 5-トリメルカプトベンゼン等のチオール化合物。

[0198] 硬化剤の量は、特に限定されるものではないが、好ましくは、エピスルフ

イド化合物に含有されるエピスルフィド基の物質質量に対する、硬化剤に含有されるエピスルフィド基と反応する置換基の物質質量の比率である混合指標 γ を指標として決定することができる。混合指標 γ は、以下の一般式(10)で表される。

$$\text{混合指標 } \gamma = (\gamma_k) / (\gamma_e) \quad (10)$$

式(10)中、

γ_k は硬化剤に含有されるエピスルフィド基と反応する置換基の物質質量(mol)であり、

γ_e はエピスルフィド基の物質質量(mol数)である。

[0199] 混合指標 γ は、0.1以上が好ましく、より好ましくは0.2以上であり、さらに好ましくは0.3以上である。混合指標 γ が0.1以上であると、エピスルフィド基の残留を抑制でき、良好な硬化物が得られる傾向にある。混合指標 γ は、1.5以下が好ましく、より好ましくは1.3以下であり、さらに好ましくは1.2以下である。混合指標 γ が1.5以下であると、硬化剤に含有される、エピスルフィド基と反応する置換基の残留を抑制でき、得られた硬化物の機械物性を向上することができる傾向にある。

[0200] エピスルフィド化合物と硬化剤から硬化物を得る工程において、硬化速度をより大きくする目的で、硬化促進剤を用いることが有効である。

[0201] 硬化促進剤は、特に限定されるものではないが、3級アミン及びその塩、有機リン化合物、4級ホスフォニウム塩類、有機金属化合物、4級アンモニウム塩、並びに金属ハロゲン化物から選ばれ得る。これらは、単独で使用しても、複数を組み合わせて使用してもよい。硬化促進剤の具体例としては、以下の(1)～(8)のものが挙げられる。

[0202] (1) 3級アミン類：ベンジルジメチルアミン、2,4,6-トリス(ジメチルアミノメチル)フェノール、シクロヘキシルジメチルアミン及びトリエタノールアミン等、

[0203] (2) イミダゾール類：2-メチルイミダゾール、2-n-ヘプチルイミダゾール、2-n-ウンデシルイミダゾール、2-フェニルイミダゾール、

2-フェニル-4-メチルイミダゾール、1-ベンジル-2-メチルイミダゾール、1-ベンジル-2-フェニルイミダゾール、1,2-ジメチルイミダゾール、2-エチル-4-メチルイミダゾール、1-(2-シアノエチル)-2-メチルイミダゾール、1-(2-シアノエチル)-2-n-ウンデシルイミダゾール、1-(2-シアノエチル)-2-フェニルイミダゾール、1-(2-シアノエチル)-2-エチル-4-メチルイミダゾール、2-フェニル-4-メチル-5-ヒドロキシメチルイミダゾール、2-フェニル-4,5-ジ(ヒドロキシメチル)イミダゾール、1-(2-シアノエチル)-2-フェニル-4,5-ジ[(2'-シアノエトキシ)メチル]イミダゾール、1-(2-シアノエチル)-2-n-ウンデシルイミダゾリウムトリメリテート、1-(2-シアノエチル)-2-フェニルイミダゾリウムトリメリテート、1-(2-シアノエチル)-2-エチル-4-メチルイミダゾリウムトリメリテート、2,4-ジアミノ-6-[2'-メチルイミダゾリル-(1')]エチル-s-トリアジン、2,4-ジアミノ-6-(2'-n-ウンデシルイミダゾリル)エチル-s-トリアジン、2,4-ジアミノ-6-[2'-エチル-4'-メチルイミダゾリル-(1')]エチル-s-トリアジン、2-メチルイミダゾールのイソシアヌル酸付加物、2-フェニルイミダゾールのイソシアヌル酸付加物、及び2,4-ジアミノ-6-[2'-メチルイミダゾリル-(1')]エチル-s-トリアジンのイソシアヌル酸付加物等、

[0204] (3) 有機リン系化合物：ジフェニルホスフィン、トリフェニルホスフィン及び亜リン酸トリフェニル等、

[0205] (4) 4級ホスフォニウム塩類：ベンジルトリフェニルホスフォニウムクロライド、テトラ-n-ブチルホスフォニウムブロマイド、メチルトリフェニルホスフォニウムブロマイド、エチルトリフェニルホスフォニウムブロマイド、n-ブチルトリフェニルホスフォニウムブロマイド、テトラフェニルホスフォニウムブロマイド、エチルトリフェニルホスフォニウムヨウダイド、エチルトリフェニルホスフォニウムアセテート、テトラ-n-ブチルホス

フォニウム α , α -ジエチルホスフォロジチオネート、テトラ n -ブチルホスフォニウムベンゾトリアゾレート、テトラ n -ブチルホスフォニウムテトラフルオロボレート、テトラ n -ブチルホスフォニウムテトラフェニルボレート及びテトラフェニルホスフォニウムテトラフェニルボレート等、

[0206] (5) ジアザビシクロアルケン類：1, 8-ジアザビシクロ [5. 4. 0] ウンデセン-7 及びその有機酸塩等、

[0207] (6) 有機金属化合物：オクチル酸亜鉛、アクチル酸錫、アルミニウムアセチルアセトン錯体等、

[0208] (7) 4級アンモニウム塩類：テトラエチルアンモニウムブロマイド、テトラ n -ブチルアンモニウムブロマイド等、

[0209] (8) 金属ハロゲン化合物：三フッ化ホウ素、ホウ酸トリフェニル等のホウ素化合物；塩化亜鉛、塩化第二錫等。

[0210] 硬化促進剤の量は、特に限定されるものではないが、好ましい量は、エピスルフィド化合物の質量に対する比率である混合指標 η から求めることができる。混合指標 δ は、以下の式(11)で表される。

$$\text{混合指標 } \delta = (\delta c) / (\delta e) \times 100 \quad (11)$$

式(11)中、

δc は硬化促進剤の質量(g)であり、

δe はエピスルフィド化合物の質量(g)である。

[0211] 混合指標 δ は、0.01以上が好ましく、より好ましくは0.05以上であり、さらに好ましくは0.1以上である。混合指標 δ が0.01以上であると、エピスルフィド基の残留を抑制でき、良好な硬化物が得られる傾向にある。混合指標 δ は、1以下であることが好ましく、より好ましくは0.7以下であり、さらに好ましくは0.5以下である。混合指標 δ が1以下であると、硬化物の着色を抑制できる場合がある。

[0212] エピスルフィド化合物の重合体及び硬化物は、目的に応じて、各種有機樹脂、無機充填剤、着色剤、レベリング剤、滑剤、界面活性剤、シリコーン系

化合物、反応性希釈剤、非反応性希釈剤、酸化防止剤及び光安定剤等を適宜含むことができる。その他、一般に樹脂用の添加剤（可塑剤、難燃剤、安定剤、帯電防止剤、耐衝撃強化剤、発泡剤、抗菌・防カビ剤、導電性フィラー、防曇剤、架橋剤等）として供される物質を、重合物又は硬化物に配合しても差し支えない。

[0213] 有機樹脂としては、特に限定されるものではなく、例えば、アクリル樹脂、ポリエステル樹脂及びポリイミド樹脂等が挙げられる。

[0214] 無機充填剤としては、例えば、シリカ類（溶融破砕シリカ、結晶破砕シリカ、球状シリカ、ヒュームドシリカ、コロイダルシリカ及び沈降性シリカ等）、シリコンカーバイド、窒化珪素、窒化ホウ素、炭酸カルシウム、炭酸マグネシウム、硫酸バリウム、硫酸カルシウム、マイカ、タルク、クレー、酸化アルミニウム、酸化マグネシウム、酸化ジルコニウム、水酸化アルミニウム、水酸化マグネシウム、珪酸カルシウム、珪酸アルミニウム、珪酸リチウムアルミニウム、珪酸ジルコニウム、チタン酸バリウム、硝子繊維、炭素繊維、及び二硫化モリブデンが挙げられる。これらの中でも、シリカ類、炭酸カルシウム、酸化アルミニウム、水酸化アルミニウム及び珪酸カルシウムが好ましく、更に硬化物の物性を考慮すると、シリカ類がより好ましい。これらの無機充填剤は単独でも、複数を組み合わせて使用してもよい。

[0215] 着色剤は、着色を目的に使用される物質であれば特に限定されず、例えば、フタロシアニン、アゾ、ジスアゾ、キナクリドン、アントラキノン、フラバントロン、ペリノン、ペリレン、ジオキサジン、縮合アゾ及びアゾメチン系の各種有機系色素、並びに、酸化チタン、硫酸鉛、クロムエロー、ジンクエロー、クロムバーミリオン、弁殻、コバルト紫、紺青、群青、カーボンブラック、クロムグリーン、酸化クロム及びコバルトグリーン等の無機顔料から選ばれ得る。これらの着色剤は単独でも、複数を組み合わせて使用してもよい

[0216] レベリング剤は、特に限定されず、例えば、エチルアクリレート、ブチルアクリレート、及び2-エチルヘキシルアクリレート等のアクリレートから

形成される分子量4000～12000のオリゴマー、エポキシ化大豆脂肪酸、エポキシ化アビエチルアルコール、水添ひまし油、並びにチタン系カップリング剤から選ばれ得る。これらのレベリング剤は単独でも、複数を組み合わせて使用してもよい。

[0217] 滑剤は、特に限定されず、パラフィンワックス、マイクロワックス及びポリエチレンワックス等の炭化水素系滑剤、ラウリン酸、ミリスチン酸、パルミチン酸、ステアリン酸、アラキジン酸及びベヘン酸等の高級脂肪酸系滑剤、ステアリルアミド、パルミチルアミド、オレイルアミド、メチレンビスステアロアミド及びエチレンビスステアロアミド等の高級脂肪酸アミド系滑剤、硬化ひまし油、ブチルステアレート、エチレングリコールモノステアレート及びペンタエリスリトール（モノー、ジー、トリー、又はテトラー）ステアレート等の高級脂肪酸エステル系滑剤、セチルアルコール、ステアリルアルコール、ポリエチレングリコール及びポリグリセロール等のアルコール系滑剤、ラウリン酸、ミリスチン酸、パルミチン酸、ステアリン酸、アラキジン酸、ベヘン酸、リシノール酸及びナフテン酸等のマグネシウム、カルシウム、カドミウム、バリウム、亜鉛及び鉛等の金属塩である金属石鹸、並びに、カルナウバロウ、カンデリラロウ、ミツロウ及びモンタンロウ等の天然ワックスから選ばれ得る。これらの滑剤は単独でも、複数を組み合わせて使用してもよい。

[0218] 界面活性剤は、分子中に溶媒に対して親和性を持たない疎水基と、溶媒に対して親和性を持つ親媒基（通常は親水基）を持つ、両親媒性物質を指す。界面活性剤の種類は特に限定されるものではなく、例えば、シリコン系界面活性剤及びフッ素系界面活性剤等が挙げられる。界面活性剤は単独でも、複数を組み合わせて使用してもよい。

[0219] シリコーン系化合物は、特に限定されず、例えば、シリコーン樹脂、シリコーン縮合物、シリコーン部分縮合物、シリコーンオイル、シランカップリング剤、シリコーンオイル、及びポリシロキサンが挙げられる。シリコーン化合物の両末端、片末端、あるいは側鎖に有機基を導入して変性されていて

もよい。シリコン系化合物の変性の方法も特に限定されず、例えば、アミノ変性、エポキシ変性、脂環式エポキシ変性、カルビノール変性、メタクリル変性、ポリエーテル変性、メルカプト変性、カルボキシル変性、フェノール変性、シラノール変性、ポリエーテル変性、ポリエーテル・メトキシ変性、及びジオール変性が挙げられる。

[0220] 反応性希釈剤は、特に限定されず、例えば、アルキルグリシジルエーテル、アルキルフェノールのモノグリシジルエーテル、ネオペンチルグリコールジグリシジルエーテル、1,6-ヘキサジオールジグリシジルエーテル、アルカン酸グリシジルエステル、エチレングリコールジグリシジルエーテル、及びプロピレングリコールジグリシジルエーテルから選ばれ得る。

[0221] 非反応性希釈剤は、特に限定されず、例えば、ベンジルアルコール、ブチルジグリコール及びプロピレングリコールモノメチルエーテル等の高沸点溶媒から選ばれ得る。

[0222] 酸化防止剤は、特に限定されるものではないが、例えば、フェノール系酸化防止剤、リン系酸化防止剤、イオウ系酸化防止剤及びアミン系酸化防止剤から選ばれ得る。これらは、単独で使用しても、複数を組み合わせて使用してもよい。酸化防止剤の具体例としては、以下の(1)～(4)のものが挙げられる。

[0223] (1) フェノール系酸化防止剤：例えば、以下のアルキルフェノール類、ヒドロキノン類、チオアルキル又はチオアリール類、ベンジル化合物類、トリアジン類、 β -(3,5-ジ-tert-ブチル-4-ヒドロキシフェニル)プロピオン酸と一価又は多価アルコールとのエステル、 β -(5-tert-ブチル-4-ヒドロキシ-3-メチルフェニル)プロピオン酸と一価又は多価アルコールとのエステル、 β -(3,5-ジシクロヘキシル-4-ヒドロキシフェニル)プロピオン酸と一価又は多価アルコールとのエステル、3,5-ジ-tert-ブチル-4-ヒドロキシフェニル酢酸と一価又は多価アルコールとのエステル、 β -(3,5-ジ-tert-ブチル-4-ヒドロキシフェニル)プロピオン酸のアミド、及びビタミン類。

- [0224] (1-1) アルキルフェノール類：2, 6-ジ-tert-ブチル-4-メチルフェノール、2-tert-ブチル-4, 6-ジメチルフェノール、2, 6-ジ-tert-ブチル-4-エチルフェノール、2, 6-ジ-tert-ブチル-4-n-ブチルフェノール、2, 6-ジ-tert-ブチル-4-イソブチルフェノール、2, 6-ジシクロペンチル-4-メチルフェノール、2-(α -メチルシクロヘキシル)-4, 6-ジメチルフェノール、2, 6-ジオクタデシル-4-メチルフェノール、2, 4, 6-トリシクロヘキシルフェノール、2, 6-ジ-tert-ブチル-4-メトキシメチルフェノール、直鎖状又は分岐鎖状の側鎖を有するノニルフェノール類（例えば2, 6-ジ-ノニル-4-メチルフェノール）、2, 4-ジメチル-6-(1'-メチルウンデカ-1'-イル)フェノール、2, 4-ジメチル-6-(1'-メチルヘプタデカ-1'-イル)フェノール、2, 4-ジメチル-6-(1'-メチルトリデカ-1'-イル)フェノール及びそれらの混合物、4-ヒドロキシラウルアニリド、4-ヒドロキシステアルアニリド、並びにオクチルN-(3, 5-ジ-tert-ブチル-4-ヒドロキシフェニル)カルバマート等、
- [0225] (1-2) ヒドロキノン類：2, 6-ジ-tert-ブチル-4-メトキシフェノール、2, 5-ジ-tert-ブチルヒドロキノン、2, 5-ジ-tert-アミルヒドロキノン、2, 6-ジフェニル-4-オクタデシルオキシフェノール、2, 6-ジ-tert-ブチルヒドロキノン、2, 5-ジ-tert-ブチル-4-ヒドロキシアニソール、3, 5-ジ-tert-ブチル-4-ヒドロキシアニソール、3, 5-ジ-tert-ブチル-4-ヒドロキシフェニルステアラート、及びビス(3, 5-ジ-tert-ブチル-4-ヒドロキシフェニル)アジパート等、
- [0226] (1-3) チオアルキル又はチオアリールフェノール類：2, 4-ジオクチルチオメチル-6-tert-ブチルフェノール、2, 4-ジオクチルチオメチル-6-メチルフェノール、2, 4-ジオクチルチオメチル-6-エチルフェノール、2, 6-ジドデシルチオメチル-4-ノニルフェノール、

2, 2' -チオビス (6-tert-ブチル-4-メチルフェノール)、2, 2' -チオビス (4-オクチルフェノール)、4, 4' -チオビス (6-tert-ブチル-3-メチルフェノール)、4, 4' -チオビス (6-tert-ブチル-2-メチルフェノール)、4, 4' -チオビス (3, 6-ジ-sec-アミルフェノール)、及び4, 4' -ビス (2, 6-ジメチル-4-ヒドロキシフェニル) ジスルフィド等、

[0227] (1-5) ビスフェノール類：2, 2' -メチレンビス (6-tert-ブチル-4-メチルフェノール)、2, 2' -メチレンビス (6-tert-ブチル-4-エチルフェノール)、2, 2' -メチレンビス [4-メチル-6-(α -メチルシクロヘキシル) フェノール]、2, 2' -メチレンビス (4-メチル-6-シクロヘキシルフェノール)、2, 2' -メチレンビス (6-ノニル-4-メチルフェノール)、2, 2' -メチレンビス (4, 6-ジ-tert-ブチルフェノール)、2, 2' -エチリデンビス (4, 6-ジ-tert-ブチルフェノール)、2, 2' -エチリデンビス (6-tert-ブチル-4-イソブチルフェノール)、2, 2' -メチレンビス [6-(α -メチルベンジル) -4-ノニルフェノール]、2, 2' -メチレンビス [6-(α, α -ジメチルベンジル) -4-ノニルフェノール]、4, 4' -メチレンビス (2, 6-ジ-tert-ブチルフェノール)、4, 4' -メチレンビス (6-tert-ブチル-2-メチルフェノール)、1, 1-ビス (5-tert-ブチル-4-ヒドロキシ-2-メチルフェニル) ブタン、2, 6-ビス (3-tert-ブチル-5-メチル-2-ヒドロキシベンジル) -4-メチルフェノール、

[0228] 1, 1, 3-トリス (5-tert-ブチル-4-ヒドロキシ-2-メチルフェニル) ブタン、1, 1-ビス (5-tert-ブチル-4-ヒドロキシ-2-メチルフェニル) -3-n-ドデシルメルカプトブタン、エチレンジリコールビス [3, 3-ビス (3'-tert-ブチル-4'-ヒドロキシフェニル) ブチラート]、ビス (3-tert-ブチル-4-ヒドロキシ-5-メチルフェニル) ジシクロペンタジエン、ビス [2-(3'-ter

t-ブチル-2'-ヒドロキシ-5'-メチルベンジル)-6-tert-ブチル-4-メチルフェニル] テレフタラート、1, 1-ビス (3, 5-ジメチル-2-ヒドロキシフェニル) ブタン、2, 2-ビス (3, 5-ジ-tert-ブチル-4-ヒドロキシフェニル) プロパン、2, 2-ビス (5-tert-ブチル-4-ヒドロキシ-2-メチルフェニル) -4-n-ドデシルメルカプトブタン、及び1, 1, 5, 5-テトラ (5-tert-ブチル-4-ヒドロキシ-2-メチルフェニル) ペンタン等、

[0229] (1-4) ベンジル化合物類: 3, 5, 3', 5'-テトラ-tert-ブチル-4, 4'-ジヒドロキシジベンジルエーテル、オクタデシル-4-ヒドロキシ-3, 5-ジメチルベンジルメルカプトアセタート、トリデシル-4-ヒドロキシ-3, 5-ジ-tert-ブチルベンジルメルカプトアセタート、トリス (3, 5-ジ-tert-ブチル-4-ヒドロキシベンジル) アミン、ビス (4-tert-ブチル-3-ヒドロキシ-2, 6-ジメチルベンジル) ジチオテレフタラート、ビス (3, 5-ジ-tert-ブチル-4-ヒドロキシベンジル) スルフィド、イソオクチル-3, 5-ジ-tert-ブチル-4-ヒドロキシベンジルメルカプトアセタート、ジオクタデシル-2, 2-ビス (3, 5-ジ-tert-ブチル-2-ヒドロキシベンジル) マロナート、ジ-オクタデシル-2-(3-tert-ブチル-4-ヒドロキシ-5-メチルベンジル) マロナート、ジ-ドデシルメルカプトエチル-2, 2-ビス (3, 5-ジ-tert-ブチル-4-ヒドロキシベンジル) マロナート、ビス [4-(1, 1, 3, 3-テトラメチルブチル) フェニル] -2, 2-ビス (3, 5-ジ-tert-ブチル-4-ヒドロキシベンジル) マロナート、1, 3, 5-トリス (3, 5-ジ-tert-ブチル-4-ヒドロキシベンジル) -2, 4, 6-トリメチルベンゼン、1, 4-ビス (3, 5-ジ-tert-ブチル-4-ヒドロキシベンジル) -2, 3, 5, 6-テトラメチルベンゼン、及び2, 4, 6-トリス (3, 5-ジ-tert-ブチル-4-ヒドロキシベンジル) フェノール等、

[0230] (1-5) トリアジン類: 2, 4-ビス (オクチルメルカプト) -6-(3

, 5-ジ-tert-ブチル-4-ヒドロキシアニリノ) - 1, 3, 5-トリアジン、2-オクチルメルカプト-4, 6-ビス (3, 5-ジ-tert-ブチル-4-ヒドロキシアニリノ) - 1, 3, 5-トリアジン、2-オクチルメルカプト-4, 6-ビス (3, 5-ジ-tert-ブチル-4-ヒドロキシフェノキシ) - 1, 3, 5-トリアジン、2, 4, 6-トリス (3, 5-ジ-tert-ブチル-4-ヒドロキシフェノキシ) - 1, 2, 3-トリアジン、1, 3, 5-トリス (3, 5-ジ-tert-ブチル-4-ヒドロキシベンジル) イソシアヌラート、1, 3, 5-トリス (4-tert-ブチル-3-ヒドロキシ-2, 6-ジメチルベンジル) イソシアヌラート、2, 4, 6-トリス (3, 5-ジ-tert-ブチル-4-ヒドロキシフェニルエチル) - 1, 3, 5-トリアジン、1, 3, 5-トリス (3, 5-ジ-tert-ブチル-4-ヒドロキシフェニルプロピオニル) - ヘキサヒドロ-1, 3, 5-トリアジン、1, 3, 5-トリス (3, 5-ジシクロヘキシル-4-ヒドロキシベンジル) イソシアヌラート等、

[0231] (1-6) β - (3, 5-ジ-tert-ブチル-4-ヒドロキシフェニル) プロピオン酸と一価又は多価アルコールとのエステル: β - (3, 5-ジ-tert-ブチル-4-ヒドロキシフェニル) プロピオン酸と、メタノール、エタノール、n-オクタノール、i-オクタノール、オクタデカノール、1, 6-ヘキサンジオール、1, 9-ノナンジオール、エチレングリコール、1, 2-プロパンジオール、ネオペンチルグリコール、チオジエチレングリコール、ジエチレングリコール、トリエチレングリコール、ペンタエリトリール、トリス (ヒドロキシエチル) イソシアヌラート、N, N'-ビス (ヒドロキシエチル) オキサミド、3-チアウンデカノール、3-チアペンタデカノール、トリメチルヘキサンジオール、トリメチロールプロパン、及び4-ヒドロキシメチル-1-ホスファ-2, 6, 7-トリオキサビシクロ [2. 2. 2] オクタン等から選ばれる一価又は多価アルコールとのエステル、

[0232] (1-7) β - (5-tert-ブチル-4-ヒドロキシ-3-メチルフェ

ニル) プロピオン酸と一価又は多価アルコールとのエステル: β - (5-tert-ブチル-4-ヒドロキシ-3-メチルフェニル) プロピオン酸と、メタノール、エタノール、n-オクタノール、i-オクタノール、オクタデカノール、1,6-ヘキサンジオール、1,9-ノナンジオール、エチレングリコール、1,2-プロパンジオール、ネオペンチルグリコール、チオジエチレングリコール、ジエチレングリコール、トリエチレングリコール、ペンタエリトリトール、トリス(ヒドロキシエチル) イソシアヌラート、N, N'-ビス(ヒドロキシエチル) オキサミド、3-チアウンデカノール、3-チアペンタデカノール、トリメチルヘキサンジオール、トリメチロールプロパン、4-ヒドロキシメチル-1-ホスファ-2,6,7-トリオキサビシクロ[2.2.2]オクタン、及び3,9-ビス[2-{3-(3-tert-ブチル-4-ヒドロキシ-5-メチルフェニル) プロピオニルオキシ}-1,1-ジメチルエチル]-2,4,8,10-テトラオキサスピロ[5.5]ウンデカン等から選ばれる一価又は多価アルコールとのエステル、

[0233] (1-8) β - (3,5-ジシクロヘキシル-4-ヒドロキシフェニル) プロピオン酸と一価又は多価アルコールとのエステル: β - (3,5-ジシクロヘキシル-4-ヒドロキシフェニル) プロピオン酸と、メタノール、エタノール、オクタノール、オクタデカノール、1,6-ヘキサンジオール、1,9-ノナンジオール、エチレングリコール、1,2-プロパンジオール、ネオペンチルグリコール、チオジエチレングリコール、ジエチレングリコール、トリエチレングリコール、ペンタエリトリトール、トリス(ヒドロキシエチル) イソシアヌラート、N, N'-ビス(ヒドロキシエチル) オキサミド、3-チアウンデカノール、3-チアペンタデカノール、トリメチルヘキサンジオール、トリメチロールプロパン、及び4-ヒドロキシメチル-1-ホスファ-2,6,7-トリオキサビシクロ[2.2.2]オクタン等から選ばれる一価又は多価アルコールとのエステル、

[0234] (1-9) 3,5-ジ-tert-ブチル-4-ヒドロキシフェニル酢酸と一価又は多価アルコールとのエステル: 3,5-ジ-tert-ブチル-4

ーヒドロキシフェニル酢酸と一価又は多価アルコールと、メタノール、エタノール、オクタノール、オクタデカノール、1, 6-ヘキサンジオール、1, 9-ノナンジオール、エチレングリコール、1, 2-プロパンジオール、ネオペンチルグリコール、チオジエチレングリコール、ジエチレングリコール、トリエチレングリコール、ペンタエリトリトール、トリス(ヒドロキシエチル)イソシアヌラート、N, N'-ビス(ヒドロキシエチル)オキサミド、3-チアウンデカノール、3-チアペンタデカノール、トリメチルヘキサンジオール、トリメチロールプロパン、及び4-ヒドロキシメチル-1-ホスファ-2, 6, 7-トリオキサビシクロ[2. 2. 2]オクタンから選ばれる一価又は多価アルコールとのエステル、

[0235] (1-10) β - (3, 5-ジ-tert-ブチル-4-ヒドロキシフェニル)プロピオン酸のアミド: N, N'-ビス(3, 5-ジ-tert-ブチル-4-ヒドロキシフェニルプロピオニル)ヘキサメチレンジアミド、N, N'-ビス(3, 5-ジ-tert-ブチル-4-ヒドロキシフェニルプロピオニル)トリメチレンジアミド、N, N'-ビス(3, 5-ジ-tert-ブチル-4-ヒドロキシフェニルプロピオニル)ヒドラジド、及びN, N'-ビス[2-(3-[3, 5-ジ-tert-ブチル-4-ヒドロキシフェニル]プロピオニルオキシ)エチル]オキサミド等、

[0236] (1-11) ビタミン類: α -トコフェロール、 β -トコフェロール、 γ -トコフェロール、 δ -トコフェロール及びそれらの混合物、トコトリエノール、並びにアスコルビン酸等、

[0237] (2) リン系酸化防止剤: 以下のホスホナート類、ホスファイト類、及びオキサホスファフェナンスレン類。

[0238] (2-1) ホスホナート類: ジメチル-2, 5-ジ-tert-ブチル-4-ヒドロキシベンジルホスホナート、ジエチル-3, 5-ジ-tert-ブチル-4-ヒドロキシベンジルホスホナート、ジオクタデシル3, 5-ジ-tert-ブチル-4-ヒドロキシベンジルホスホナート、ジオクタデシル-5-tert-ブチル-4-ヒドロキシ-3-メチルベンジルホスホナート

ト、テトラキス（2,4-ジ-tert-ブチルフェニル）-4,4'-ビフェニレンジホスホナート、及び3,5-ジ-tert-ブチル-4-ヒドロキシベンジルホスホン酸のモノエチルエステルのカルシウム塩等、

[0239] (2-2) ホスファイト類：トリオクチルホスファイト、トリラウリルホスファイト、トリデシルホスファイト、オクチルジフェニルホスファイト、トリス（2,4-ジ-tert-ブチルフェニル）ホスファイト、トリフェニルホスファイト、トリス（ブトキシエチル）ホスファイト、トリス（ノニルフェニル）ホスファイト、ジステアerylペンタエリスリトールジホスファイト、テトラ（トリデシル）-1,1,3-トリス（2-メチル-5-tert-ブチル-4-ヒドロキシフェニル）ブタンジホスファイト、テトラ（C12~C15混合アルキル）-4,4'-イソプロピリデンジフェニルジホスファイト、テトラ（トリデシル）-4,4'-ブチリデンビス（3-メチル-6-tert-ブチルフェノール）ジホスファイト、トリス（3,5-ジ-tert-ブチル-4-ヒドロキシフェニル）ホスファイト、トリス（モノ、ジ混合ノニルフェニル）ホスファイト、水素化-4,4'-イソプロピリデンジフェノールポリホスファイト、

[0240] ビス（オクチルフェニル）-ビス[4,4'-ブチリデンビス（3-メチル-6-tert-ブチルフェノール）]-1,6-ヘキサンジオールジホスファイト、フェニル-4,4'-イソプロピリデンジフェノール-ペンタエリスリトールジホスファイト、ビス（2,4-ジ-tert-ブチルフェニル）ペンタエリスリトールジホスファイト、ビス（2,6-ジ-tert-ブチル-4-メチルフェニル）ペンタエリスリトールジホスファイト、トリス[4,4'-イソプロピリデンビス（2-tert-ブチルフェノール）]ホスファイト、フェニルジイソデシルホスファイト、ジ（ノニルフェニル）ペンタエリスリトールジホスファイト）、トリス（1,3-ジ-ステアロイルオキシイソプロピル）ホスファイト、及び4,4'-イソプロピリデンビス（2-tert-ブチルフェノール）-ジ（ノニルフェニル）ホスファイト等、

[0241] (2-3) オキサホスファフェナンスレン類：9,10-ジヒドロ-9-

オキサー 10-ホスファフェナンスレン-10-オキサイド、8-クロロ-9, 10-ジヒドロ-9-

オキサー 10-ホスファフェナンスレン-10-オキサイド、及び8-t-ブチル-9, 10-ジヒドロ-9-

オキサー 10-ホスファフェナンスレン-10-オキサイド等、

[0242] (3) イオウ系酸化防止剤：以下のジアルキルチオプロピオネート類、オクチルチオプロピオン酸と多価アルコールとのエステル、ラウリルチオプロピオン酸と多価アルコールとのエステル、及びステアリルチオプロピオン酸と多価アルコールとのエステル。

[0243] (3-1) ジアルキルチオプロピオネート類：ジラウリルチオジプロピオネート、ジミリスチルチオジプロピオネート、及びジステアリルチオジプロピオネート等、

[0244] (3-2) オクチルチオプロピオン酸と多価アルコールとのエステル：オクチルチオプロピオン酸と、グリセリン、トリメチロールエタン、トリメチロールプロパン、ペンタエリスリトール、及びトリスヒドロキシエチルイソシアヌレート等から選ばれる多価アルコールとのエステル、

[0245] (3-3) ラウリルチオプロピオン酸と多価アルコールとのエステル：ラウリルチオプロピオン酸と、グリセリン、トリメチロールエタン、トリメチロールプロパン、ペンタエリスリトール、及びトリスヒドロキシエチルイソシアヌレートとのエステル、

[0246] (3-4) ステアリルチオプロピオン酸と多価アルコールとのエステル：ステアリルチオプロピオン酸と、グリセリン、トリメチロールエタン、トリメチロールプロパン、ペンタエリスリトール、及びトリスヒドロキシエチルイソシアヌレート等から選ばれる多価アルコールとのエステル、

[0247] (4) アミン系酸化防止剤：N, N'-ジイソプロピル-p-フェニレンジアミン、N, N'-ジ-sec-ブチル-p-フェニレンジアミン、N, N'-ビス(1, 4-ジメチルペンチル)-p-フェニレンジアミン、N, N'-ビス(1-エチル-3-メチルペンチル)-p-フェニレンジアミン、N

, N' -ビス (1-メチルヘプチル) - p-フェニレンジアミン、N, N' -ジシクロヘキシル-p-フェニレンジアミン、N, N' -ジフェニル-p-フェニレンジアミン、N, N' -ビス (2-ナフチル) - p-フェニレンジアミン、N-イソプロピル-N' -フェニル-p-フェニレンジアミン、N- (1, 3-ジメチルブチル) - N' -フェニル-p-フェニレンジアミン、N- (1-メチルヘプチル) - N' -フェニル-p-フェニレンジアミン、N-シクロヘキシル-N' -フェニル-p-フェニレンジアミン、4- (p-トルエンスルファモイル) ジフェニルアミン、N, N' -ジメチル-N, N' -ジ-sec-ブチル-p-フェニレンジアミン、ジフェニルアミン、N-アリルジフェニルアミン、4-イソプロポキシジフェニルアミン、

[0248] N-フェニル-1-ナフチルアミン、N- (4-tert-オクチルフェニル) -1-ナフチルアミン、N-フェニル-2-ナフチルアミン、オクチル化ジフェニルアミン (例えば、p, p' -ジ-tert-オクチルジフェニルアミン)、4-n-ブチルアミノフェノール、4-ブチリルアミノフェノール、4-ノナノイルアミノフェノール、4-ドデカノイルアミノフェノール、4-オクタデカノイルアミノフェノール、ビス (4-メトキシフェニル) -アミン、2, 6-ジ-tert-ブチル-4-ジメチルアミノメチルフェノール、2, 4'-ジアミノジフェニルメタン、4, 4'-ジアミノジフェニルメタン、N, N, N', N' -テトラメチル-4, 4'-ジアミノジフェニルメタン、1, 2-ビス [(2-メチルフェニル) アミノ] エタン、1, 2-ビス (フェニルアミノ) プロパン、(o-トリル) ビグアニド、ビス [4- (1', 3'-ジメチルブチル) フェニル] アミン、tert-オクチル化N-フェニル-1-ナフチルアミン、

[0249] モノ-及びジ-アルキル化tert-ブチル- / tert-オクチルジフェニルアミンの混合物、モノ-及びジ-アルキル化ノニルジフェニルアミンの混合物、モノ-及びジ-アルキル化ドデシルジフェニルアミンの混合物、モノ-及びジ-アルキル化イソプロピル / イソヘキシルジフェニルアミンの混合物、モノ-及びジ-アルキル化tert-ブチルジフェニルアミンの混合

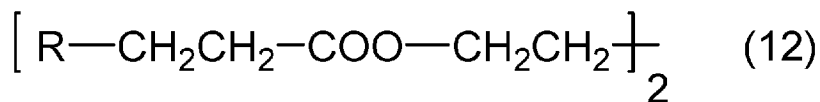
物、2,3-ジヒドロ-3,3-ジメチル-4H-1,4-ベンゾチアジン、フェノチアジン、モノー及びジ-アルキル化tert-ブチル/tert-オクチルフェノチアジン類の混合物、モノー及びジ-アルキル化tert-オクチルフェノチアジン類の混合物、N-アリルフェノチアジン、N,N,N',N'-テトラフェニル-1,4-ジアミノブタ-2-エン、N,N-ビス(2,2,6,6-テトラメチルピペリジ-4-イル)ヘキサメチレンジアミン、ビス(2,2,6,6-テトラメチルピペリジ-4-イル)セバカート、2,2,6,6-テトラメチルピペリジン-4-オン、並びに、2,2,6,6-テトラメチルピペリジン-4-オール等。

[0250] 光安定剤は、特に限定されるものではないが、トリアゾール系、ベンゾフェノン系、エステル系、アクリラート系、ニッケル系、トリアジン系及びオキサミド系等の紫外線吸収剤、並びにヒンダードアミン系光安定剤から選ばれ得る。これらは、単独で使用しても、複数を組み合わせて使用してもよい。酸化防止剤の具体例としては、以下の(1)~(7)のものが挙げられる。

[0251] (1) トリアゾール類：2-(2'-ヒドロキシ-5'-(1,1,3,3-テトラメチルブチル)フェニル)ベンゾトリアゾール、2-(2'-ヒドロキシ-4'-オクチルオキシフェニル)ベンゾトリアゾール、2-(3'-tert-ブチル-2'-ヒドロキシ-5'-(2-オクチルオキシカルボニルエチル)フェニル)-5-クロロベンゾトリアゾール、2-(3'-tert-ブチル-5'-[2-(2-エチルヘキシルオキシ)カルボニルエチル]-2'-ヒドロキシフェニル)-5-クロロベンゾトリアゾール、2-(3'-tert-ブチル-2'-ヒドロキシ-5'-(2-メトキシカルボニルエチル)フェニル)-5-クロロベンゾトリアゾール、2-(3'-tert-ブチル-2'-ヒドロキシ-5'-(2-メトキシカルボニルエチル)フェニル)ベンゾトリアゾール、2-(3'-tert-ブチル-2'-ヒドロキシ-5'-(2-オクチルオキシカルボニルエチル)フェニル)ベンゾトリアゾール、

[0252] 2 - (3' - tert-ブチル-5' - [2 - (2-エチルヘキシルオキシ)カルボニルエチル] - 2' - ヒドロキシフェニル) ベンゾトリアゾール、2 - (3' - ドデシル-2' - ヒドロキシ-5' - メチルフェニル) ベンゾトリアゾール、2 - (3' - tert-ブチル-2' - ヒドロキシ-5' - (2-イソオクチルオキシカルボニルエチル) フェニル) ベンゾトリアゾール、2, 2' - メチレンビス [4 - (1, 1, 3, 3-テトラメチルブチル) - 6 - ベンゾトリアゾール-2-イルフェノール]、2 - [3' - tert-ブチル-5' - (2-メトキシカルボニルエチル) - 2' - ヒドロキシフェニル] - 2H-ベンゾトリアゾールとポリエチレングリコール300とのエステル交換生成物、下記式(12)で示されるトリアゾール化合物、

[化9]



(式中、Rは、3' - tert-ブチル-4' - ヒドロキシ-5' - 2H-ベンゾトリアゾール-2-イルフェニルである)、並びに、2 - [2' - ヒドロキシ-3' - (α , α -ジメチルベンジル) - 5' - (1, 1, 3, 3-テトラメチルブチル) フェニル] ベンゾトリアゾール; 2 - [2' - ヒドロキシ-3' - (1, 1, 3, 3-テトラメチルブチル) - 5' - (α , α -ジメチルベンジル) フェニル] ベンゾトリアゾール等、を示す)

[0253] (2) ベンゾフェノン系: 4-デシルオキシ、4-ベンジルオキシ、4, 2', 4'-トリヒドロキシ及び2' - ヒドロキシ-4, 4' - ジメトキシ誘導体類等、

[0254] (3) エステル系: 4-tert-ブチルフェニルサリチラート、サリチル酸フェニル、サリチル酸オクチルフェニル、ジベンゾイルレゾルシノール、ビス(4-tert-ブチルベンゾイル)レゾルシノール、ベンゾイルレゾルシノール、2, 4-ジ-tert-ブチルフェニル3, 5-ジ-tert-ブチル-4-ヒドロキシベンゾアート、ヘキサデシル-3, 5-ジ-tert-ブチル-4-ヒドロキシベンゾアート、オクタデシル-3, 5-ジ-

t e r t -ブチル-4-ヒドロキシベンゾアート、及び2-メチル-4, 6-ジ- t e r t -ブチルフェニル3, 5-ジ- t e r t -ブチル-4-ヒドロキシベンゾアート等、

[0255] (4) アクリラート系：エチル- α -シアノ- β , β -ジフェニルアクリラート、イソオクチル- α -シアノ- β , β -ジフェニルアクリラート、メチル- α -カルボメトキシシンナマート、メチル- α -シアノ- β -メチル-p-メトキシシンナマート、ブチル- α -シアノ- β -メチル-p-メトキシシンナマート、メチル- α -カルボメトキシ-p-メトキシシンナマート及びN-(β -カルボメトキシ- β -シアノビニル)-2-メチルインドリン等、

[0256] (5) ニッケル系：n-ブチルアミン、トリエタノールアミン及びN-シクロヘキシルジエタノールアミンのような追加のリガンドを有する又は有さない、1:1又は1:2錯体（例えば、2, 2'-チオビス[4-(1, 1, 3, 3-テトラメチルブチル)フェノール]のニッケル錯体）、ニッケルジブチルジチオカルバマート、4-ヒドロキシ-3, 5-ジ- t e r t -ブチルベンジルリン酸のモノアルキルエステル（例えば、メチル又はエチルエステル）のニッケル塩、ケトキシム類のニッケル錯体（例えば、2-ヒドロキシ-4-メチルフェニルウンデシルケトキシムのニッケル錯体）、並びに、追加のリガンドを有する又は有さない、1-フェニル-4-ラウロイル-5-ヒドロキシピラゾールのニッケル錯体等、

[0257] (6) トリアジン系：2, 4, 6-トリス(2-ヒドロキシ-4-オクチルオキシフェニル)-1, 3, 5-トリアジン、2-(2, 4-ジヒドロキシフェニル)-4, 6-ビス(2, 4-ジメチルフェニル)-1, 3, 5-トリアジン、2, 4-ビス(2-ヒドロキシ-4-プロピルオキシフェニル)-6-(2, 4-ジメチルフェニル)-1, 3, 5-トリアジン、2-(2-ヒドロキシ-4-オクチルオキシフェニル)-4, 6-ビス(4-メチルフェニル)-1, 3, 5-トリアジン、2-(2-ヒドロキシ-4-ドデシルオキシフェニル)-4, 6-ビス(2, 4-ジメチルフェニル)-1, 3

, 5-トリアジン、2-(2-ヒドロキシ-4-トリデシルオキシフェニル)-4, 6-ビス(2, 4-ジメチルフェニル)-1, 3, 5-トリアジン、2-[2-ヒドロキシ-4-(2-ヒドロキシ-3-ブチルオキシプロポキシ)フェニル]-4, 6-ビス(2, 4-ジメチル)-1, 3, 5-トリアジン、2-[2-ヒドロキシ-4-(2-ヒドロキシ-3-オクチルオキシプロピルオキシ)フェニル]-4, 6-ビス(2, 4-ジメチル)-1, 3, 5-トリアジン、

[0258] 2-[2-ヒドロキシ-4-(2-ヒドロキシ-3-ドデシルオキシプロポキシ)フェニル]-4, 6-ビス(2, 4-ジメチルフェニル)-1, 3, 5-トリアジン、2-(2-ヒドロキシ-4-メトキシフェニル)-4, 6-ジフェニル-1, 3, 5-トリアジン、2, 4, 6-トリス[2-ヒドロキシ-4-(3-ブトキシ-2-ヒドロキシプロポキシ)フェニル]-1, 3, 5-トリアジン、2-(2-ヒドロキシフェニル)-4-(4-メトキシフェニル)-6-フェニル-1, 3, 5-トリアジン、及び2-{2-ヒドロキシ-4-[3-(2-エチルヘキシル-1-オキシ)-2-ヒドロキシプロピルオキシ]フェニル}-4, 6-ビス(2, 4-ジメチルフェニル)-1, 3, 5-トリアジン等、

[0259] (7) オキサミド系：4, 4'-ジオクチルオキシオキサニリド、2, 2'-ジエトキシオキサニリド、2, 2'-ジオクチルオキシ-5, 5'-ジ tert-ブトキサニリド、2, 2'-ジドデシルオキシ-5, 5'-ジ tert-ブトキサニリド、2-エトキシ-2'-エチルオキサニリド、N, N'-ビス(3-ジメチルアミノプロピル)オキサミド、2-エトキシ-5-tert-ブチル-2'-エトキサニリド及びこれと2-エトキシ-2'-エチル-5, 4'-ジ tert-ブトキサニリドとの混合物、o-及びp-メトキシ-二置換オキサニリドの混合物、並びにo-及びp-エトキシ-二置換オキサニリドの混合物等、

[0260] (8) ヒンダードアミン系：ビス(2, 2, 6, 6-テトラメチル-4-ピペリジル)セバカート、ビス(2, 2, 6, 6-テトラメチル-4-ピペリ

ジル) スクシナート、ビス (1, 2, 2, 6, 6-ペンタメチル-4-ピペリジル) セバカート、ビス (1-オクチルオキシ-2, 2, 6, 6-テトラメチル-4-ピペリジル) セバカート、ビス (1, 2, 2, 6, 6-ペンタメチル-4-ピペリジル) n-ブチル-3, 5-ジ-tert-ブチル-4-ヒドロキシベンジルマロナート、1-(2-ヒドロキシエチル)-2, 2, 6, 6-テトラメチル-4-ヒドロキシピペリジンとコハク酸との縮合物、N, N'-ビス (2, 2, 6, 6-テトラメチル-4-ピペリジル) ヘキサメチレンジアミンと4-tert-オクチルアミノ-2, 6-ジクロロ-1, 3, 5-トリアジンとの直鎖又は環式縮合物、トリス (2, 2, 6, 6-テトラメチル-4-ピペリジル) ニトリロトリアセタート、テトラキス (2, 2, 6, 6-テトラメチル-4-ピペリジル) -1, 2, 3, 4-ブタンテトラカルボキシラート、1, 1'-(1, 2-エタンジイル)-ビス (3, 3, 5, 5-テトラメチルピペラジノン)、4-ベンゾイル-2, 2, 6, 6-テトラメチルピペリジン、4-ステアリルオキシ-2, 2, 6, 6-テトラメチルピペリジン、

[0261] ビス (1, 2, 2, 6, 6-ペンタメチルピペリジル) -2-n-ブチル-2-(2-ヒドロキシ-3, 5-ジ-tert-ブチルベンジル) マロナート、3-n-オクチル-7, 7, 9, 9-テトラメチル-1, 3, 8-トリアザスピロ [4. 5] デカン-2, 4-ジオン、ビス (1-オクチルオキシ-2, 2, 6, 6-テトラメチルピペリジル) セバカート、ビス (1-オクチルオキシ-2, 2, 6, 6-テトラメチルピペリジル) スクシナート、N, N'-ビス (2, 2, 6, 6-テトラメチル-4-ピペリジル) ヘキサメチレンジアミンと4-モルホリノ-2, 6-ジクロロ-1, 3, 5-トリアジンとの直鎖又は環式縮合物、2-クロロ-4, 6-ビス (4-n-ブチルアミノ-2, 2, 6, 6-テトラメチルピペリジル) -1, 3, 5-トリアジンと1, 2-ビス (3-アミノプロピルアミノ) エタンとの縮合物、2-クロロ-4, 6-ジ- (4-n-ブチルアミノ-1, 2, 2, 6, 6-ペンタメチルピペリジル) -1, 3, 5-トリアジンと1, 2-ビス (3-アミ

ノプロピルアミノ) エタンとの縮合物、

[0262] 8-アセチル-3-ドデシル-7, 7, 9, 9-テトラメチル-1, 3, 8-トリアザスピロ [4. 5] デカン-2, 4-ジオン、3-ドデシル-1-(2, 2, 6, 6-テトラメチル-4-ピペリジル) ピロリジン-2, 5-ジオン、3-ドデシル-1-(1, 2, 2, 6, 6-ペンタメチル-4-ピペリジル) ピロリジン-2, 5-ジオン、5-(2-エチルヘキサノイル)-オキシメチル-3, 3, 5-トリメチル-2-モルホリノン、1-(2-ヒドロキシ-2-メチルプロピル)-4-オクタデカノイルオキシ-2, 2, 6, 6-テトラメチルピペリジン、1, 3, 5-トリス (N-シクロヘキシル-N-(2, 2, 6, 6-テトラメチルピペラジン-3-オン-4-イル) アミノ)-s-トリアジン、1, 3, 5-トリス (N-シクロヘキシル-N-(1, 2, 2, 6, 6-ペンタメチルピペラジン-3-オン-4-イル) アミノ)-s-トリアジン、2, 4-ビス [(1-シクロヘキシルオキシ-2, 2, 6, 6-ピペリジン-4-イル) ブチルアミノ]-6-クロロ-s-トリアジンとN, N'-ビス (3-アミノプロピル) エチレンジアミン) との反応生成物、

[0263] 4-ヘキサデシルオキシ-及び4-ステアリルオキシ-2, 2, 6, 6-テトラメチルピペリジンの混合物、N, N'-ビス (2, 2, 6, 6-テトラメチル-4-ピペリジル) ヘキサメチレンジアミンと4-シクロヘキシルアミノ-2, 6-ジクロロ-1, 3, 5-トリアジンとの縮合物、1, 2-ビス (3-アミノプロピルアミノ) エタンと2, 4, 6-トリクロロ-1, 3, 5-トリアジン、その他に4-ブチルアミノ-2, 2, 6, 6-テトラメチルピペリジンとの縮合物、1, 6-ヘキサンジアミンと2, 4, 6-トリクロロ-1, 3, 5-トリアジン、その他にN, N-ジブチルアミンと4-ブチルアミノ-2, 2, 6, 6-テトラメチルピペリジンとの縮合物、N-(2, 2, 6, 6-テトラメチル-4-ピペリジル)-n-ドデシルスクシンイミド、N-(1, 2, 2, 6, 6-ペンタメチル-4-ピペリジル)-n-ドデシルスクシンイミド、

[0264] 2-ウンデシル-7, 7, 9, 9-テトラメチル-1-オキサ-3, 8-ジアザ-4-オキソスピロ [4, 5] デカン; 5-(2-エチルヘキサノイル) オキシメチル-3, 3, 5-トリメチル-2-モルホリノン、7, 7, 9, 9-テトラメチル-2-シクロウンデシル-1-オキサ-3, 8-ジアザ-4-オキソスピロ [4, 5] デカンとエピクロロヒドリンとの反応生成物、1, 1-ビス (1, 2, 2, 6, 6-ペンタメチル-4-ピペリジル オキシカルボニル) -2-(4-メトキシフェニル) エテン、N, N'-ビス-ホルミル-N, N'-ビス (2, 2, 6, 6-テトラメチル-4-ピペリジル) ヘキサメチレンジアミン、4-メトキシメチレンマロン酸と1, 2, 2, 6, 6-ペンタメチル-4-ヒドロキシピペリジンとのジエステル、ポリ [メチルプロピル-3-オキシ-4-(2, 2, 6, 6-テトラメチル-4-ピペリジル)] シロキサン、並びに、マイレン酸無水物 α -オレフィンコポリマーと2, 2, 6, 6-テトラメチル-4-アミノピペリジン又は1, 2, 2, 6, 6-ペンタメチル-4-アミノピペリジンとの反応生成物等。

[0265] エピスルフィド化合物、及びその重合物若しくは硬化物の用途は、特に限定されるものではなく、例えば、電子材料（碍子類、交流変圧器、開閉機器等の注型及び回路ユニット、各種部品のパッケージ、IC・LED・半導体の周辺材料 [封止材、レンズ材、基板材、ダイボンド材、チップコート材、積層板、光ファイバー、光導波路、光フィルター、電子部品用の接着剤、コート材、シール材、絶縁材、フォトレジスト、エンキャップ材、ポッティング材、光ディスクの光透過層や層間絶縁層、導光板、反射防止膜等]、発電器、モーター等の回転機コイル、巻線含浸、プリント配線基板、積層板、絶縁ボード、中型碍子類、コイル類、コネクタ、ターミナル、各種ケース類、電気部品類等）、塗料（防蝕塗料、メンテナンス、船舶塗装、耐蝕ライニング、自動車・家電製品用プライマー、飲料・ビール缶、外面ラッカー、押出チューブ塗装、一般防蝕塗装、メンテナンス塗装、木工製品用ラッカー、自動車用電着プライマー、その他工業用電着塗装、飲料・ビール缶内面ラッ

カー、コイルコーティング、ドラム・缶内面塗装、耐酸ライニング、ワイヤーエナメル、絶縁塗料、自動車用プライマー、各種金属製品の美装兼防蝕塗装、パイプ内外面塗装、電気部品絶縁塗装等）、

[0266] 複合材料（化学プラント用パイプ・タンク類、航空機材、自動車部材、各種スポーツ用品、炭素繊維複合材料、アラミド繊維複合材料等）、土木建築材料（床材、舗装材、メンブレン、滑り止め兼薄層舗装、コンクリート打ち継ぎ・かさ上げ、アンカー埋め込み接着、プレキャストコンクリート接合、タイル接着、コンクリート構造物の亀裂補修、台座のグラウト・レベリング、上下水道施設の防蝕・防水塗装、タンク類の耐蝕積層ライニング、鉄構造物の防蝕塗装、建築物外壁のマスチック塗装等）、接着剤（金属・ガラス・陶磁器・セメントコンクリート・木材・プラスチック等の同種又は異種材質の接着剤、自動車・鉄道車両・航空機等の組み立て用接着剤、プレハブ用複合パネル製造用接着剤等：一液型、二液型、シートタイプを含む。）、航空機・自動車・プラスチック成形の治工具（プレス型、ストレッチドダイ、マッチドダイ等樹脂型、真空成形・ブロー成型用モールド、マスターモデル、鋳物用パターン、積層治工具、各種検査用治工具等）、改質剤・安定剤（繊維の樹脂加工、ポリ塩化ビニル用安定剤、合成ゴムへの添加剤等）、殺虫剤（ハエ、カ、ゴキブリ等の有害な害虫に対するもの）、

[0267] 薬剤（炎症・アレルギー性疾患〔例えば、全身性炎症反応症候群（SIRS）〕、アナフィラキシーあるいはアナフィラキシー様反応、アレルギー性血管炎、肝炎、腎炎、腎症、膵炎、鼻炎、関節炎、炎症性眼疾患（例えば、結膜炎等）、炎症性腸疾患（例えば、潰瘍性大腸炎、クローン病、好酸球性胃腸症等）、脳・循環器系疾患（例えば、動脈硬化症、血栓症、虚血／再還流障害、再狭窄、梗塞等）、呼吸器系疾患（例えば、急性呼吸窮迫症候群（ARDS）、喘息、アレルギー性気管支肺アスペルギルス症等）、皮膚疾患（例えば、皮膚炎（例えば、アトピー性皮膚炎、乾癬、接触皮膚炎、湿疹、蕁麻疹、掻痒症等）等）、自己免疫性疾患（例えば、多発性硬化症、慢性関節リウマチ、全身性エリテマトーデス、I型糖尿病、糸球体腎炎、シェーグレン

症候群等)、移植臓器拒絶反応等]、代謝・内分泌系疾患[例えば、糖尿病等]、癌疾患[例えば、悪性新生物(例えば、白血病、固形癌および癌転移等)等]、感染症または感染に伴う疾患[例えば、ウィルス性疾患(例えば、後天性免疫不全症候群、SARS等)、エイズ痴呆症等]等に対する治療剤等)、除草剤(アセチル補酵素Aカルボキシラーゼ阻害剤、アセト乳酸合成酵素阻害剤、5-エノールピルビルシキミ酸-3-リン酸合成酵素阻害剤、合成オーキシシン剤、光化学系II阻害剤、プロトポルフィリノーゲンオキシダーゼ阻害剤、フィトエンデサチュラーゼ阻害剤、4-ヒドロキシフェニルピルビン酸ジオキシゲナーゼ阻害剤、VLCFA(超長鎖脂肪酸)合成阻害剤等)、

[0268] ゴムの改質剤(加硫剤、加硫促進剤等)、香料(香料石けん、シャワージェルまたは浴用ジェル、シャンプー、リンスコンディショナー、ボディーデオドラント、発汗抑制剤、空気芳香剤、織物処理用の液体または固体の洗剤、食器または種々の表面の洗剤組成物または清浄剤製品または化粧品、洗濯洗剤、ファブリック柔軟剤、食品への風味付け等)、等として用いることができる。

[0269] レンズ材の例としては、光学機器用レンズ、自動車ランプ用レンズ、メガネレンズ、CD・DVD等のピックアップ用レンズ及びプロジェクター用レンズが挙げられる。

[0270] LED封止材の用途としては、特に限定されるものではなく、ディスプレイ、電光表示板、信号機、ディスプレイのバックライト(有機ELディスプレイ、携帯電話、モバイルPC等)、自動車の内外装照明、イルミネーション、照明器具、懐中電灯等、広い分野へ展開することができる。

実施例

[0271] 以下に本実施形態を具体的に説明した実施例を例示する。本発明はその要旨を超えない限り以下の実施例に限定されるものではない。

[0272] <水酸基価(HV)>

水酸基価(HV)は、下記式(13)により算出した。

$$HV(\text{mg/g}) = 1 / MWPO \times OHN \times 1000 \times MWPH \quad (13)$$

ここで、

MWPOは多価水酸基化合物の分子量、

OHNは多価水酸基化合物に含有される水酸基数、

MWPH：水酸化カリウムの分子量、をそれぞれ示す。

ただし、多価水酸基化合物が複数種の化合物の混合物であり、明確な分子量を求めることができない場合には、「JIS K 1557-1：2007 プラスチックーポリウレタン原料ポリオール試験方法ー第1部：水酸基価の求め方」により水酸基価を測定した。

[0273] <エポキシ当量 (WPE) >

「JIS K 7236：2001 (エポキシ樹脂のエポキシ当量の求め方)」に従ってエポキシ樹脂のエポキシ当量を測定した。

[0274] <混合指標 α の算出>

混合指標 α は、以下の式 (1) により算出した。

$$\text{混合指標 } \alpha = \alpha_t / \alpha_e \quad (1)$$

ここで、

α_t は、チア化剤に含まれる、エピスルフィド基の生成に用いられ得る硫黄原子の物質質量 (mol)、

α_e はエポキシ化合物に含まれるエポキシ基の物質質量 (mol)、をそれぞれ示す。

[0275] <混合指標 β の算出>

混合指標 β は、以下の式 (2) により算出した。

$$\text{混合指標 } \beta = \beta_t / \beta_o \quad (2)$$

ここで、

β_t はチア化剤の質量 (g)、

β_o は多価水酸基化合物の質量 (g)、をそれぞれ示す。

[0276] <混合指標 ε の算出>

混合指標 ε は、一価水酸基化合物を用いるときの、混合指標 β に代わる混合指標である。混合指標 ε は、以下の式 (14) により算出した。

$$\text{混合指標 } \varepsilon = \varepsilon_t / \varepsilon_o \quad (14)$$

ここで、

ε_t はチア化剤の質量 (g)、

ε_o は一価水酸化化合物の質量 (g)、をそれぞれ示す。

[0277] <エポキシ基反応率と、エピスルフィド基収率の算出： $^1\text{H-NMR}$ 測定>

$^1\text{H-NMR}$ 測定は、以下の手順で行った。

(1) サンプル瓶に、10mgのサンプルと、20mgの内部標準物質を計りとり、更にクロロホルム-d (和光純薬工業株式会社製) を加え、全体量を1gに調整した。

・内部標準物質：1, 1, 2, 2-テトラブロモエタン (東京化成工業株式会社製、以下「TBE」という。)

(2) 上記(1)の溶液を、直径5mmφのNMRチューブに移し、下記条件で、 $^1\text{H-NMR}$ を測定した。

フーリエ変換核磁気共鳴装置：日本電子株式会社製「 $\alpha-400$ 型」

核種： ^1H

積算回数：200回

[0278] 上記測定結果から、以下の手順で、エポキシ基反応率、及びエピスルフィド基収率を算出した。

(3) $^1\text{H-NMR}$ チャートから、エポキシ基由来ピーク、及びエピスルフィド基由来ピークの面積値を算出した。

エポキシ基由来のピークとは、エポキシ基を構成する炭化水素上の1つの水素に由来するピークを指す。多価水酸化化合物、生成するエピスルフィド基、エピスルフィド化合物の重合体、及びその他反応の際に添加された成分に由来するピークと重複しないピークが適宜選択される。

エピスルフィド基由来のピークとは、エピスルフィド基を構成する炭化水素上の1つの水素に由来するピークを指す。エポキシ基、多価水酸化化合物、エピスルフィド化合物の重合体、及びその他反応の際に添加された成分に由来するピークと重複しないピークが適宜選択される。

(4) $^1\text{H-NMR}$ チャートから、内部標準物質由来ピークの面積値を算出した。

(5) 上記(3)及び(4)で算出した面積値を、下記式に代入し、エポキシ基反応率(%)、及びエピスルフィド基収率(%)を求めた。

$$\text{エポキシ基反応率 (\%)} = 100 - \text{EPOA} \times (\text{TBE G} / \text{TBE M}) \times (\text{EPO M} / \text{EPO G}) \times (\text{REAG} / \text{SAMG}) \times (2 / \text{TBE A}) \times 100$$

$$\text{エピスルフィド基収率 (\%)} = \text{EPI A} \times (\text{TBE G} / \text{TBE M}) \times (\text{EPI M} / \text{EPI G}) \times (\text{REAG} / \text{SAMG}) \times (2 / \text{TBE A}) \times 100$$

EPOA : エポキシ基由来ピーク的面積値

EPI A : エピスルフィド基由来ピーク的面積値

TBE A : TBEの2つの水素に由来するピーク的面積値

EPO G : 反応液を調整する際に使用したエポキシ化合物の質量 (g)

EPO M : 反応液を調整する際に使用したエポキシ化合物の分子量

EPI G : 反応液を調整した際に使用したエポキシ化合物のエポキシ基反応率が100%である場合に、得られるエピスルフィド化合物の質量 (g)

EPI M : 反応によって得られるエピスルフィド化合物の分子量

REAG : 反応液の質量 (g)

TBE G : $^1\text{H-NMR}$ 測定を行う溶液を調整する際に、使用されたTBEの質量 (g) (本実施例においては20mg)

TBE M : TBEの分子量

SAMG : $^1\text{H-NMR}$ 測定を行う溶液を調整する際に、使用されたサンプルの質量 (g) (本実施例においては10mg)

[0279] エポキシ化合物中のエポキシ基を構成する炭化水素上の水素が $^1\text{H-NMR}$ チャートにおいて同一のピークとして観測される場合、又は、得られるエピスルフィド化合物中のエピスルフィド基を構成する炭化水素上の水素が $^1\text{H-NMR}$ の測定チャートにおいて同一のピークとして観測される場合には、(

5) の手順を以下のように変更することで算出が可能である。

(5-2) 上記(3)及び(4)で算出した面積値を、下記式に代入し、エポキシ基反応率(%)、及びエピスルフィド基収率(%)を求めた。

エポキシ基反応率(%) = $100 - \{EPOA / (\text{エポキシ基由来ピークを構成している水素の個数})\} \times (TBEG / TBEM) \times (EPOM / EPOG) \times (REAG / SAMG) \times (2 / TBEA) \times 100$

エピスルフィド基収率(%) = $\{EPIA / (\text{エピスルフィド基由来ピークを構成している水素の個数})\} \times (TBEG / TBEM) \times (EPI M / EPI G) \times (REAG / SAMG) \times (2 / TBEA) \times 100$

エピスルフィド基収率は、80%以上の場合に良好と判断し、90%以上の場合に特に良好と判断し、これら以外の場合に不良と判断した。

[0280] <エポキシ化合物含有量と、エピスルフィド化合物含有量の算出：¹H-NMR測定>

¹H-NMR測定は、以下の手順で行った。

(1) サンプル瓶に、10mgのサンプルと、20mgの内部標準物質を計りとり、更にクロロホルム-d (和光純薬工業株式会社製)を加え、全体量を1gに調整した。

・内部標準物質：TBE

(2) 上記(1)の溶液を、直径5mmφのNMRチューブに移し、下記条件で、¹H-NMRを測定した。

フーリエ変換核磁気共鳴装置：日本電子株式会社製「α-400型」

核種：¹H

積算回数：200回

上記測定結果から、以下の手順で、エポキシ化合物含有量と、エピスルフィド化合物含有量を算出した。

(3) ¹H-NMRチャートから、エポキシ基由来ピーク、及びエピスルフィド基由来ピーク的面積値を算出した。

エポキシ基由来のピークとは、エポキシ基を構成する炭化水素上の1つの

水素に由来するピークを指し、多価水酸基化合物、生成するエピスルフィド基、エピスルフィド化合物の重合体、及びその他反応の際に添加された成分に由来するピークと重複しないピークが適宜選択される。

エピスルフィド基由来のピークとは、エピスルフィド基を構成する炭化水素上の1つの水素に由来するピークを指し、エポキシ基、多価水酸基化合物、エピスルフィド化合物の重合体、及びその他反応の際に添加された成分に由来するピークと重複しないピークが適宜選択される。

(4) $^1\text{H-NMR}$ チャートから、内部標準物質由来ピークの面積値を算出した。

(5) 上記(3)及び(4)で算出した面積値を、下記式に代入し、エピスルフィド化合物含有率(%)を求めた。

$$\text{エポキシ化合物含有量 (\%)} = \text{EPOA} \times (\text{TBE G} / \text{TBE M}) \times (\text{EPOM} / \text{SAMG}) \times (2 / \text{TBE A}) \times 100$$

EPOA : エポキシ基由来ピーク的面積値

TBE A : TBEの2つの水素に由来するピーク的面積値

EPOM : 反応液を調整する際に使用したエポキシ化合物の分子量

TBE G : $^1\text{H-NMR}$ 測定を行う溶液を調整する際に、使用されたTBEの質量(g) (本実施例においては20mg)

TBE M : TBEの分子量

SAMG : $^1\text{H-NMR}$ 測定を行う溶液を調整する際に、使用されたサンプルの質量(g) (本実施例においては10mg)

[0281] エポキシ化合物中のエポキシ基を構成する炭化水素上の水素が $^1\text{H-NMR}$ チャートにおいて同一のピークとして観測される場合には、(5)の手順を以下のように変更することで算出が可能である。

(5-2) 上記(3)及び(4)で算出した面積値を、下記式に代入し、エポキシ化合物含有率(%)を求めた。

$$\text{エポキシ化合物含有量 (\%)} = \{ \text{EPOA} / (\text{エポキシ基由来ピークを構成している水素の個数}) \} \times (\text{TBE G} / \text{TBE M}) \times (\text{EPOM} / \text{SAMG})$$

$$) \times (2 / TBEA) \times 100$$

$$\text{エピスルフィド化合物含有量 (\%)} = EPIA \times (TBEG / TBEM) \times (EPIM / SAMG) \times (2 / TBEA) \times 100$$

EPIA : エピスルフィド基由来ピークの面積値

TBEA : TBEの2つの水素に由来するピークの面積値

EPIM : 反応によって得られるエピスルフィド化合物の分子量

TBEG : $^1\text{H-NMR}$ 測定を行う溶液を調整する際に、使用されたTBEの質量 (g) (本実施例においては20mg)

TBEM : TBEの分子量

SAMG : $^1\text{H-NMR}$ 測定を行う溶液を調整する際に、使用されたサンプルの質量 (g) (本実施例においては10mg)

[0282] エピスルフィド化合物中のエピスルフィド基を構成する炭化水素上の水素が $^1\text{H-NMR}$ チャートにおいて同一のピークとして観測される場合には、(5)の手順を以下のように変更することで算出が可能である。

(5-3) 上記(3)及び(4)で算出した面積値を、下記式に代入し、エピスルフィド化合物含有量 (%) を求めた。

$$\text{エピスルフィド化合物含有量 (\%)} = \{EPIA / (\text{エピスルフィド基由来ピークを構成している水素の個数})\} \times (TBEG / TBEM) \times (EPIM / SAMG) \times (2 / TBEA) \times 100$$

[0283] <反応時間>

反応時間は、製造に用いられる全ての化合物の混合が完了した時点を開始点とし、開始点から所望のエポキシ基反応率まで到達するまでの経過時間である。

反応時間は、24時間以内の場合に良好と判断し、6時間以内の場合に特に良好と判断し、これら以外の場合に不良と判断した。

[0284] <総合判定>

エピスルフィド基収率、及び反応時間に関して、両方が特に良好であると判断された場合、どちらか一方が特に良好であると判断され、一方が良好で

あると判断された場合、及び、両方が良好であると判断された場合に、総合判定を合格とした。それ以外の場合については、全て不合格とした。

[0285] <貯蔵安定性>

反応生成物の一部を、23℃に設定された恒温器に入れ、1年保持した後、エピスルフィド化合物含有量を測定した。測定結果から、以下の式を用いて変質率を算出した。

$$\text{変質率 (\%)} = \{1 - (\text{1年保持後のエピスルフィド化合物含有量}) / (\text{保持前のエピスルフィド化合物含有量})\} \times 100$$

貯蔵安定性は、変質率が20%以下の場合に良好と判断し、10%以下の場合特に良好と判断し、これら以外の場合に不良と判断した。

[0286] <再生チア化剤の純度測定>

再生チア化剤の純度は、以下に記載の方法に従って測定した。

「JIS K8635:2008 (チオ尿素 (試薬))」

「JIS K9000:2008 (チオシアン酸アンモニウム (試薬))」

「JIS K9001:2008 (チオシアン酸カリウム (試薬))」

「JIS K9002:2008 (チオシアン酸ナトリウム (試薬))」

[0287] 実施例及び比較例で使用した原材料を以下の(1)～(73)に示す。

(多価水酸基化合物)

(1) 多価水酸基化合物A: エチレングリコール (和光純薬工業株式会社製、以下、「EG」という。)

・水酸基価 (HV): 1808 mg/g

(2) 多価水酸基化合物B: 1, 2-プロピレングリコール (和光純薬工業株式会社製、以下、「12PG」という。)

・水酸基価 (HV): 1475 mg/g

(3) 多価水酸基化合物C: 1, 3-プロピレングリコール (和光純薬工業株式会社製、以下、「13PG」という。)

・水酸基価 (HV): 1475 mg/g

(4) 多価水酸基化合物D: 1, 2-ブタンジオール (和光純薬工業株式会

社製、以下、「12BD」という。)

・水酸基価 (HV) : 1245 mg/g

(5) 多価水酸化化合物E : 1, 3-ブタンジオール (和光純薬工業株式会社製、以下、「13BD」という。)

・水酸基価 (HV) : 1245 mg/g

(6) 多価水酸化化合物F : 1, 4-ブタンジオール (和光純薬工業株式会社製、以下、「14BD」という。)

・水酸基価 (HV) : 1245 mg/g

(7) 多価水酸化後物G : 1, 2-ペンタンジオール (和光純薬工業株式会社製、以下、「15PD」という。)

・水酸基価 (HV) : 1078 mg/g

(8) 多価水酸化化合物H : 1, 2-ヘキサンジオール (和光純薬工業株式会社製、以下、「12HD」という。)

・水酸基価 (HV) : 950 mg/g

(9) 多価水酸化化合物I : 1, 2-オクタンジオール (Aldrich社製、以下、「12OD」という。)

・水酸基価 (HV) : 767 mg/g

(10) 多価水酸化化合物J : グリセロール (和光純薬工業株式会社製、以下、「GL」という。)

・水酸基価 (HV) : 1828 mg/g

(11) 多価水酸化化合物K : meso-エリトリトール (和光純薬工業株式会社製、以下、「ETT」という。)

・水酸基価 (HV) : 1838 mg/g

(12) 多価水酸化化合物L : キシリトール (和光純薬工業株式会社製、以下、「XT」という。)

・水酸基価 (HV) : 1844 mg/g

(13) 多価水酸化化合物M : D-マンニトール (和光純薬工業株式会社製、以下、「DMT」という。)

- ・水酸基価 (HV) : 1848 mg/g
(14) 多価水酸化化合物M : ボレミトール (Aldrich社製、以下、「VLT」という。)
- ・水酸基価 (HV) : 1851 mg/g
(15) 多価水酸化化合物N : (D) -グルコース (和光純薬工業株式会社、以下、「DLC」という。)
- ・水酸基価 (HV) : 1557 mg/g
(16) 多価水酸化化合物O : スクロース (和光純薬工業株式会社、以下、「SCR」という。)
- ・水酸基価 (HV) : 1311 mg/g
(17) 多価水酸化化合物P : ジエチレングリコール (和光純薬株式会社製、以下、「DEG」という。)
- ・水酸基価 (HV) : 1057 mg/g
(18) 多価水酸化化合物Q : トリエチレングリコール (和光純薬株式会社製、以下、「TEG」という。)
- ・水酸基価 (HV) : 747 mg/g
(19) 多価水酸化化合物R : テトラエチレングリコール (和光純薬株式会社製、以下、「TEEG」という。)
- ・水酸基価 (HV) : 578 mg/g
(20) 多価水酸化化合物S : ペンタエチレングリコール (和光純薬株式会社製、以下、「PEEG」という。)
- ・水酸基価 (HV) : 471 mg/g
(21) 多価水酸化化合物T : ヘキサエチレングリコール (和光純薬株式会社製、以下、「HEEG」という。)
- ・水酸基価 (HV) : 397 mg/g
(22) 多価水酸化化合物U : オクタエチレングリコール (Aldrich社製、以下、「OCEG」という。)
- ・水酸基価 (HV) : 303 mg/g

(23) 多価水酸化化合物V : ドデカエチレングリコール (Aldrich社製、以下、「DDEG」という。)

・水酸基価 (HV) : 205 mg/g

(24) 多価水酸化化合物W : ポリエチレングリコール200 (和光純薬工業株式会社製、以下、「PEG200」という。)

・水酸基価 (HV) : 561 mg/g

(25) 多価水酸化化合物X : ポリエチレングリコール300 (和光純薬工業株式会社製、以下、「PEG300」という。)

・水酸基価 (HV) : 374 mg/g

(26) 多価水酸化化合物Y : ポリエチレングリコール400 (和光純薬工業株式会社製、以下、「PEG400」という。)

・水酸基価 (HV) : 281 mg/g

(27) 多価水酸化化合物Z : メタンジオール水溶液 (以下、「MEOS」という。)

10%ホルムアルデヒド水溶液 (和光純薬株式会社製) を水で希釈して、メタンジオールを含む5%ホルムアルデヒド水溶液を調整した、メタンジオールの濃度は4%であった。

・水酸基価 (HV) : 2336 mg/g (メタンジオールとして)

[0288] (エポキシ化合物)

(28) エポキシ化合物A : フェニルグリシジルエーテル (和光純薬工業株式会社製、以下、「PGE」という。)

・エポキシ当量 (WPE) : 150 g/eq.

(29) エポキシ化合物B : エチレンオキシド (Aldrich社製、以下、「EO」という。)

・エポキシ当量 (WPE) : 44 g/eq.

(30) エポキシ化合物C : プロピレンオキシド (和光純薬工業株式会社製、以下、「PO」という。)

・エポキシ当量 (WPE) : 58 g/eq.

(31) エポキシ化合物D : 1, 2-エポキシブタン (東京化成工業株式会社製、以下、「12EB」という。)

・エポキシ当量 (WPE) : 72 g / eq.

(32) エポキシ化合物E : 1, 2-エポキシペンタン (東京化成工業株式会社製、以下、「12EP」という。)

・エポキシ当量 (WPE) : 86 g / eq.

(33) エポキシ化合物F : 1, 2-エポキシヘキサン (東京化成工業株式会社製、以下、「12EH」という。)

・エポキシ当量 (WPE) : 100 g / eq.

(34) エポキシ化合物G : 1, 2-エポキシヘプタン (東京化成工業株式会社製、以下、「12EHP」という。)

・エポキシ当量 (WPE) : 114 g / eq.

(35) エポキシ化合物H : 1, 2-エポキシオクタン (和光純薬工業株式会社製、以下、「12EO」という。)

・エポキシ当量 (WPE) : 128 g / eq.

(36) エポキシ化合物I : 1, 2-エポキシデカン (和光純薬工業株式会社製、以下、「12ED」という。)

・エポキシ当量 (WPE) : 156 g / eq.

(37) エポキシ化合物J : 1, 2-エポキシドデカン (和光純薬工業株式会社製、以下、「12EDD」という。)

・エポキシ当量 (WPE) : 184 g / eq.

(38) エポキシ化合物K : 1, 2-エポキシテトラデカン (和光純薬工業株式会社製、以下、「12ETD」という。)

・エポキシ当量 (WPE) : 212 g / eq.

(39) エポキシ化合物L : 1, 2-エポキシヘキサデカン (東京化成工業株式会社製、以下、「12EHD」という。)

・エポキシ当量 (WPE) : 240 g / eq.

(40) エポキシ化合物M : 1, 2-エポキシオクタデカン (東京化成工業

株式会社製、以下、「12EOD」という。)

・エポキシ当量 (WPE) : 268 g / eq.

(41) エポキシ化合物N : 1, 2-エポキシエイコサン (東京化成工業株式会社製、以下、「12EEC」という。)

・エポキシ当量 (WPE) : 297 g / eq.

(42) エポキシ化合物O : ビスフェノールA型エポキシ化合物 (以下、「Bis-A-1」という。)

・商品名 : 旭化成エポキシ株式会社製、「AER」

・エポキシ当量 (WPE) : 189 g / eq.

(43) エポキシ化合物P : 水添ビスフェノールA型エポキシ化合物 (以下、「水添Bis-A」という。)

・商品名 : ジャパンエポキシレジン社製、「YX8000」

・エポキシ当量 (WPE) : 205 g / eq.

(44) エポキシ化合物Q : ビスフェノールA型エポキシ化合物 (以下、「Bis-A-2」という。)

・商品名 : 旭化成エポキシ株式会社製、「AER」

・エポキシ当量 (WPE) : 480 g / eq.

(45) エポキシ化合物R : ビスフェノールA型エポキシ化合物 (以下、「Bis-A-3」という。)

・商品名 : 旭化成エポキシ株式会社製、「AER」

・エポキシ当量 (WPE) : 560 g / eq.

(46) エポキシ化合物S : ビスフェノールA型エポキシ化合物 (以下、「Bis-A-4」という。)

・商品名 : 旭化成エポキシ株式会社製、「AER」

・エポキシ当量 (WPE) : 650 g / eq.

(47) エポキシ化合物T : シクロペンテンオキシド (Aldrich社製、以下、「C5O」という。)

・エポキシ当量 (WPE) : 84 g / eq.

(48) エポキシ化合物U：シクロヘキセンオキシド (Aldrich社製、以下、「C60」という。)

・エポキシ当量 (WPE) : 98 g / eq.

(49) エポキシ化合物V：シクロヘプテンオキシド (Aldrich社製、以下、「C70」という。)

・エポキシ当量 (WPE) : 112 g / eq.

(50) エポキシ化合物W：シクロオクテンオキシド (Aldrich社製、以下、「C80」という。)

・エポキシ当量 (WPE) : 126 g / eq.

(51) エポキシ化合物X：脂環式エポキシ化合物 (以下、「CEL」という。)

・商品名：ダイセル化学工業株式会社、「セロキサイド2021P」

・エポキシ当量 (WPE) : 131 g / eq.

(52) エポキシ化合物Y：ビス (2, 3-エポキシプロピル) ジスルフィド (以下、「BEDS」という。)

特開2002-194083に記載の方法に従ってBEDSを合成した。

・エポキシ当量 (WPE) : 91 g / eq.

(53) エポキシ化合物Z：1, 3-ビス (3-グリシドキシプロピル) -1, 1, 3, 3-テトラメチルジシロキサン (以下、「BGTD」という。)

・商品名：信越化学工業株式会社、「LS-7970」

・エポキシ当量 (WPE) : 182 g / eq.

(54) エポキシ化合物AA：ビス [2- (3, 4-エポキシシクロヘキシル) エチル] テトラメチルジシロキサン (以下、「BCTD」という。)

・商品名：Gelest, Inc., 「SIB1092.0」

・エポキシ当量 (WPE) : 192 g / eq.

(55) エポキシ化合物AB：1, 3, 5, 7-テトラ- (3-グリシドキシプロピル) テトラメチルシクロテトラシロキサン (以下、「TGCS」と

いう。)

Euro. Polym. J. 2010, 46, 1545. 記載の方法に従って、TGCSを合成した。

・エポキシ当量 (WPE) : 174 g / eq.

(56) エポキシ化合物AC : 1, 3, 5, 7-テトラ [2-(3, 4-エポキシシクロヘキシルエチル)] テトラメチルシクロテトラシロキサン (以下、「TCCS」という。)

特開2000-103859に記載の方法に従って、TCCSを合成した。

・エポキシ当量 (WPE) : 184 g / eq.

(57) エポキシ化合物AD : ブタジエンモノオキシド (和光純薬工業株式会社製、以下、「BDMO」という。)

・エポキシ当量 (WPE) : 70 g / eq.

(58) エポキシ化合物AE : 1, 2-エポキシ-5-ヘキセン (和光純薬株式会社製、以下、「EPHE」という。)

・エポキシ当量 (WPE) : 98 g / eq.

(59) エポキシ化合物AF : アリルグリシジルエーテル (和光純薬株式会社製、以下、「AGE」という。)

・エポキシ当量 (WPE) : 114 g / eq.

(60) エポキシ化合物AG : 1, 2-エポキシ-4-ビニルシクロヘキサン (Aldrich社製、以下、「EVCH」という。)

・エポキシ当量 (WPE) : 124 g / eq.

(61) エポキシ化合物AH : グリシジルメタクリレート (和光純薬株式会社製、以下、「GLMT」という。)

・エポキシ当量 : 142 g / eq.

[0289] (チア化剤)

(62) チア化剤A : チオ尿素 (和光純薬工業株式会社製、以下、「TU」という。)

(63) チア化剤B：チオシアン酸カリウム（和光純薬工業株式会社製、以下、「TCK」という。）

(64) チア化剤C：チオシアン酸ナトリウム（Aldrich社製、以下、「TCN」という。）

(65) チア化剤D：チオシアン酸アンモニウム（和光純薬工業株式会社製、以下、「TCA」という。）

[0290] (その他)

(66) 一価水酸基化合物A：メタノール（和光純薬工業株式会社製、以下、「MN」という。）

(67) 一価水酸基化合物B：超純水（和光純薬工業株式会社製、以下、「SW」という。）

(68) 添加化合物A：トルエン（和光純薬工業株式会社製、以下、「TOL」という。）

(69) 添加化合物B：アセトニトリル（和光純薬工業株式会社製、以下、「AN」という。）

(70) 添加化合物C：テトラヒドロフラン（和光純薬工業株式会社製、以下、「THF」という。）

(71) 非極性溶媒A：n-ヘキサン（和光純薬工業株式会社製、以下、「NHX」という。）

(72) 非極性溶媒B：ジエチルエーテル（和光純薬工業株式会社製、以下、「DEE」という。）

(73) 非極性溶媒C：酢酸エチル（和光純薬工業株式会社製、以下、「ACET」という。）

[0291] (実施例1)

エピスルフィド化合物を、以下の手順で製造した。

(1) 準備：マグネチックスターラー上に、投げ込み式冷却加熱ユニットが取り付けられたウォーターバスを載せ、そこに水及び攪拌子を入れた。投げ込み式冷却加熱ユニットを起動させ、水の温度が20℃となるように設定し

た。

(2) 表1の組成比率に従って、25℃の雰囲気下で、EG（多価水酸基化合物）、及びTU（チア化剤）を、攪拌子を投入したフラスコに入れて混合攪拌し、チア化剤が溶解した均一な溶液を得た。

(3) PGE（エポキシ化合物）を、(2)の溶液に添加し、混合攪拌した。

(4) この実施例における、混合指標 $\alpha 1$ 、 $\beta 1$ を、表1に示した。

(5) 上述の方法に従って、エポキシ基反応率、及びエピスルフィド基収率を測定した。

(6) (3)のエポキシ化合物を添加した時点を開始点とし、所望のエポキシ基反応率に到達した時点を終了点として、その間に経過した時間を反応時間とした。

[0292] 上述の方法によりエピスルフィド化合物を製造した結果、表4に示すとおり、エポキシ基反応率100%までの反応時間が4時間であることから、反応時間は特に良好と判断した。また、エピスルフィド基収率は86%であることから、良好と判断した。これら結果から、総合判定は合格とした。

[0293] (実施例2)

表1の組成比率に従って、実施例1と同様の方法により、エピスルフィド化合物を製造した。表4に示すとおり、エポキシ基反応率100%までの反応時間が2時間であることから、反応時間は特に良好と判断した。また、エピスルフィド基収率は93%であることから、特に良好と判断した。これら結果から、総合判定は合格とした。

[0294] (実施例3)

表1の組成比率に従って、実施例1と同様の方法により、エピスルフィド化合物を製造した。表4に示すとおり、エポキシ基反応率100%までの反応時間が4時間であることから、反応時間は特に良好と判断した。また、エピスルフィド基収率は91%であることから、特に良好と判断した。これら結果から、総合判定は合格とした。

[0295] (実施例4)

表1の組成比率に従って、実施例1と同様の方法により、エピスルフィド化合物を製造した。表4に示すとおり、エポキシ基反応率100%までの反応時間が2時間であることから、反応時間は特に良好と判断した。また、エピスルフィド基収率は95%であることから、特に良好と判断した。これら結果から、反総合判定は合格とした。

[0296] (実施例5)

表1の組成比率に従って、実施例1と同様の方法により、エピスルフィド化合物を製造した。表4に示すとおり、エポキシ基反応率100%までの反応時間が4時間であることから、反応時間は特に良好と判断した。また、エピスルフィド基収率は92%であることから、特に良好と判断した。これら結果から、総合判定は合格とした。

[0297] (実施例6)

表1の組成比率に従って、実施例1と同様の方法により、エピスルフィド化合物を製造した。表4に示すとおり、エポキシ基反応率100%までの反応時間が2時間であることから、反応時間は特に良好と判断した。また、エピスルフィド基収率は95%であることから、特に良好と判断した。これら結果から、総合判定は合格とした。

[0298] (実施例7)

表1の組成比率に従って、実施例1と同様の方法により、エピスルフィド化合物を製造した。表4に示すとおり、エポキシ基反応率100%までの反応時間が2時間であることから、反応時間は特に良好と判断した。また、エピスルフィド基収率は92%であることから、特に良好と判断した。これら結果から、反総合判定は合格とした。

[0299] (実施例8)

表1の組成比率に従って、実施例1と同様の方法により、エピスルフィド化合物を製造した。表4に示すとおり、エポキシ基反応率100%までの反応時間が2時間であることから、反応時間は特に良好と判断した。また、エ

ピルスルフィド基収率は93%であることから、特に良好と判断した。これら結果から、総合判定は合格とした。

[0300] (実施例9)

表1の組成比率に従って、実施例1と同様の方法により、エピスルフィド化合物を製造した。表4に示すとおり、エポキシ基反応率100%までの反応時間が3時間であることから、反応時間は特に良好と判断した。また、エピスルフィド基収率は92%であることから、特に良好と判断した。これら結果から総合判定は合格とした。

[0301] (実施例10)

表1の組成比率に従って、実施例1と同様の方法により、エピスルフィド化合物を製造した。表4に示すとおり、エポキシ基反応率100%までの反応時間が20時間であることから、反応時間は良好と判断した。また、エピスルフィド基収率は80%であることから、良好と判断した。これら結果から、総合判定は合格とした。

[0302] (実施例11)

表1の組成比率に従って、実施例1と同様の方法により、エピスルフィド化合物を製造した。表4に示すとおり、エポキシ基反応率100%までの反応時間が7時間であることから、反応時間は良好と判断した。また、エピスルフィド基収率は89%であることから、良好と判断した。これら結果から、総合判定は合格とした。

[0303] (実施例12)

表1の組成比率に従って、実施例1と同様の方法により、エピスルフィド化合物を製造した。表4に示すとおり、エポキシ基反応率100%までの反応時間が12時間であることから、反応時間は良好と判断した。また、エピスルフィド基収率は85%であることから、良好と判断した。これら結果から、総合判定は合格とした。

[0304] (実施例13)

表1の組成比率に従って、実施例1と同様の方法により、エピスルフィド

化合物を製造した。表4に示すとおり、エポキシ基反応率100%までの反応時間が12時間であることから、反応時間は良好と判断した。また、エピスルフィド基収率は83%であることから、良好と判断した。これら結果から、総合判定は合格とした。

[0305] (実施例14)

表1の組成比率に従って、実施例1と同様の方法により、エピスルフィド化合物を製造した。表4に示すとおり、エポキシ基反応率100%までの反応時間が15時間であることから、反応時間は良好と判断した。また、エピスルフィド基収率は83%であることから、良好と判断した。これら結果から、総合判定は合格とした。

[0306] (実施例15)

表1の組成比率に従って、実施例1と同様の方法により、エピスルフィド化合物を製造した。表4に示すとおり、エポキシ基反応率100%までの反応時間が19時間であることから、反応時間は良好と判断した。また、エピスルフィド基収率は82%であることから、良好と判断した。これら結果から、総合判定は合格とした。

[0307] (実施例16)

表1の組成比率に従って、混合指標 β に加えて混合指標 ε を用いた以外は、実施例1と同様の方法により、エピスルフィド化合物を製造した。表4に示すとおり、エポキシ基反応率100%までの反応時間が20時間であることから、反応時間は良好と判断した。また、エピスルフィド基収率は82%であることから、良好と判断した。これら結果から、総合判定は合格とした。

[0308] (実施例17)

表1の組成比率に従って、混合指標 β に加えて混合指標 ε を用いた以外は、実施例1と同様の方法により、エピスルフィド化合物を製造した。表4に示すとおり、エポキシ基反応率100%までの反応時間が23時間であることから、反応時間は良好と判断した。また、エピスルフィド基収率は80%

であることから、良好と判断した。これら結果から、総合判定は合格とした。

[0309] (実施例 18)

表 1 の組成比率に従って、実施例 1 と同様の方法により、エピスルフィド化合物を製造した。表 4 に示すとおり、エポキシ基反応率 100% までの反応時間が 8 時間であることから、反応時間は良好と判断した。また、エピスルフィド基収率は 86% であることから、良好と判断した。これら結果から、総合判定は合格とした。

[0310] (実施例 19)

表 1 の組成比率に従って、実施例 1 と同様の方法により、エピスルフィド化合物を製造した。表 4 に示すとおり、エポキシ基反応率 100% までの反応時間が 13 時間であることから、反応時間は良好と判断した。また、エピスルフィド基収率は 83% であることから、良好と判断した。これら結果から、総合判定は合格とした。

[0311] (実施例 20)

表 1 の組成比率に従って、実施例 1 と同様の方法により、エピスルフィド化合物を製造した。表 4 に示すとおり、エポキシ基反応率 100% までの反応時間が 15 時間であることから、反応時間は良好と判断した。また、エピスルフィド基収率は 81% であることから、良好と判断した。これら結果から、総合判定は合格とした。

[0312] (実施例 21)

表 1 の組成比率に従って、実施例 1 と同様の方法により、エピスルフィド化合物を製造した。表 4 に示すとおり、エポキシ基反応率 100% までの反応時間が 2 時間であることから、反応時間は特に良好と判断した。また、エピスルフィド基収率は 92% であることから、特に良好と判断した。これら結果から、総合判定は合格とした。

[0313] (実施例 22)

表 1 の組成比率に従って、実施例 1 と同様の方法により、エピスルフィド

化合物を製造した。表4に示すとおり、エポキシ基反応率100%までの反応時間が1時間であることから、反応時間は特に良好と判断した。また、エピスルフィド基収率は86%であることから、良好と判断した。これら結果から、総合判定は合格とした。

[0314] (実施例23)

表1の組成比率に従って、実施例1と同様の方法により、エピスルフィド化合物を製造した。表4に示すとおり、エポキシ基反応率100%までの反応時間が1時間であることから、反応時間は特に良好と判断した。また、エピスルフィド基収率は80%であることから、良好と判断した。これら結果から、総合判定は合格とした。

[0315] (実施例24)

表1の組成比率に従って、実施例1と同様の方法により、エピスルフィド化合物を製造した。表4に示すとおり、エポキシ基反応率100%までの反応時間が3時間であることから、反応時間は特に良好と判断した。また、エピスルフィド基収率は95%であることから、特に良好と判断した。これら結果から、総合判定は合格とした。

[0316] (実施例25)

表1の組成比率に従って、実施例1と同様の方法により、エピスルフィド化合物を製造した。表4に示すとおり、エポキシ基反応率100%までの反応時間が8時間であることから、反応時間は良好と判断した。また、エピスルフィド基収率は89%であることから、良好と判断した。これら結果から、総合判定は合格とした。

[0317] (実施例26)

表1の組成比率に従って、実施例1と同様の方法により、エピスルフィド化合物を製造した。表4に示すとおり、エポキシ基反応率100%までの反応時間が17時間であることから、反応時間は良好と判断した。また、エピスルフィド基収率は88%であることから、良好と判断した。これら結果から、総合判定は合格とした。

[0318] (実施例 27)

表 1 の組成比率に従って、実施例 1 と同様の方法により、エピスルフィド化合物を製造した。表 4 に示すとおり、エポキシ基反応率 100%までの反応時間が 15 時間であることから、反応時間は良好と判断した。また、エピスルフィド基収率は 97%であることから、特に良好と判断した。これら結果から、総合判定は合格とした。

[0319] (実施例 28)

表 1 の組成比率に従って、実施例 1 と同様の方法により、エピスルフィド化合物を製造した。表 4 に示すとおり、エポキシ基反応率 100%までの反応時間が 12 時間であることから、反応時間は良好と判断した。また、エピスルフィド基収率は 96%であることから、特に良好と判断した。これら結果から、総合判定は合格とした。

[0320] (実施例 29)

表 1 の組成比率に従って、実施例 1 と同様の方法により、エピスルフィド化合物を製造した。表 4 に示すとおり、エポキシ基反応率 100%までの反応時間が 3 時間であることから、反応時間は特に良好と判断した。また、エピスルフィド基収率は 96%であることから、特に良好と判断した。これら結果から、総合判定は合格とした。

[0321] (実施例 30)

表 1 の組成比率に従って、実施例 1 と同様の方法により、エピスルフィド化合物を製造した。表 4 に示すとおり、エポキシ基反応率 100%までの反応時間が 2 時間であることから、反応時間は特に良好と判断した。また、エピスルフィド基収率は 87%であることから、良好と判断した。これら結果から、総合判定は合格とした。

[0322] (実施例 31)

表 1 の組成比率に従って、実施例 1 と同様の方法により、エピスルフィド化合物を製造した。表 4 に示すとおり、エポキシ基反応率 100%までの反応時間が 2 時間であることから、反応時間は特に良好と判断した。また、エ

ピルスルフィド基収率は90%であることから、良好と判断した。これら結果から、総合判定は合格とした。

[0323] (実施例32)

表1の組成比率に従って、実施例1と同様の方法により、エピスルフィド化合物を製造した。表4に示すとおり、エポキシ基反応率100%までの反応時間が2時間であることから、反応時間は特に良好と判断した。また、エピスルフィド基収率は90%であることから、特に良好と判断した。これら結果から、総合判定は合格とした。

[0324] (実施例33)

表1の組成比率に従って、実施例1と同様の方法により、エピスルフィド化合物を製造した。表4に示すとおり、エポキシ基反応率100%までの反応時間が3時間であることから、反応時間は特に良好と判断した。また、エピスルフィド基収率は95%であることから、特に良好と判断した。これら結果から、総合判定は合格とした。

[0325] (実施例34)

表1の組成比率に従って、実施例1と同様の方法により、エピスルフィド化合物を製造した。表4に示すとおり、エポキシ基反応率100%までの反応時間が8時間であることから、反応時間は良好と判断した。また、エピスルフィド基収率は96%であることから、特に良好と判断した。これら結果から、総合判定は合格とした。

[0326] (実施例35)

表1の組成比率に従って、実施例1と同様の方法により、エピスルフィド化合物を製造した。表4に示すとおり、エポキシ基反応率100%までの反応時間が15時間であることから、反応時間は良好と判断した。また、エピスルフィド基収率は97%であることから、特に良好と判断した。これら結果から、総合判定は合格とした。

[0327] (実施例36)

表1の組成比率に従って、実施例1と同様の方法により、エピスルフィド

化合物を製造した。表4に示すとおり、エポキシ基反応率100%までの反応時間が1時間であることから、反応時間は特に良好と判断した。また、エピスルフィド基収率は92%であることから、特に良好と判断した。これら結果から総合判定は合格とした。

[0328] (実施例37)

投げ込み式冷却加熱ユニット及びウォーターバスを、オイル及びスターラーの入ったオイルバスに変更し、オイルの設定温度を80℃とした以外は、上記実施例1と同様の方法により、表1の組成比率に従ってエピスルフィド化合物を製造した。表4に示すとおり、エポキシ基反応率100%までの反応時間が1時間であることから、反応時間は特に良好と判断した。また、エピスルフィド基収率は87%であることから、良好と判断した。これら結果から、総合判定は合格とした。

[0329] (実施例38)

表1の組成比率に従って、投げ込み式冷却加熱ユニット及びウォーターバスを、オイル及びスターラーの入ったオイルバスに変更して設定温度を100℃とした以外は、実施例1と同様の方法により、エピスルフィド化合物を製造した。表4に示すとおり、エポキシ基反応率100%までの反応時間が1時間であることから、反応時間は特に良好と判断した。また、エピスルフィド基収率は83%であることから、良好と判断した。これら結果から、総合判定は合格とした。

[0330] (実施例39)

表1の組成比率に従って、実施例1と同様の方法により、エピスルフィド化合物を製造した。表4に示すとおり、エポキシ基反応率100%までの反応時間が6時間であることから、反応時間は特に良好と判断した。また、エピスルフィド基収率は83%であることから、良好と判断した。これら結果から、総合判定は合格とした。

[0331] (実施例40)

表1の組成比率に従って、実施例1と同様の方法により、エピスルフィド

化合物を製造した。表4に示すとおり、エポキシ基反応率100%までの反応時間が6時間であることから、反応時間は特に良好と判断した。また、エピスルフィド基収率は87%であることから、良好と判断した。これら結果から、総合判定は合格とした。

[0332] (実施例41)

表1の組成比率に従って、実施例1と同様の方法により、エピスルフィド化合物を製造した。表4に示すとおり、エポキシ基反応率100%までの反応時間が2時間であることから、反応時間は特に良好と判断した。また、エピスルフィド基収率は87%であることから、良好と判断した。これら結果から、総合判定は合格とした。

[0333] (実施例42)

表1の組成比率に従って、実施例1と同様の方法により、エピスルフィド化合物を製造した。表4に示すとおり、エポキシ基反応率100%までの反応時間が3時間であることから、反応時間は特に良好と判断した。また、エピスルフィド基収率は86%であることから、良好と判断した。これら結果から、総合判定は合格とした。

[0334] (実施例43)

表1の組成比率に従って、実施例1と同様の方法により、エピスルフィド化合物を製造した。表4に示すとおり、エポキシ基反応率100%までの反応時間が3時間であることから、反応時間は特に良好と判断した。また、エピスルフィド基収率は92%であることから、特に良好と判断した。これら結果から、総合判定は合格とした。

[0335] (実施例44)

表2の組成比率に従って、実施例1と同様の方法により、エピスルフィド化合物を製造した。表5に示すとおり、エポキシ基反応率100%までの反応時間が2時間であることから、反応時間は特に良好と判断した。また、エピスルフィド基収率は91%であることから、特に良好と判断した。これら結果から、総合判定は合格とした。

[0336] (実施例 4 5)

表 2 の組成比率に従って、実施例 1 と同様の方法により、エピスルフィド化合物を製造した。表 5 に示すとおり、エポキシ基反応率 100% までの反応時間が 1 時間であることから、反応時間は特に良好と判断した。また、エピスルフィド基収率は 94% であることから、特に良好と判断した。これら結果から、総合判定は合格とした。

[0337] (実施例 4 6)

表 2 の組成比率に従って、実施例 1 と同様の方法により、エピスルフィド化合物を製造した。表 5 に示すとおり、エポキシ基反応率 100% までの反応時間が 3 時間であることから、反応時間は特に良好と判断した。また、エピスルフィド基収率は 92% であることから、特に良好と判断した。これら結果から、総合判定は合格とした。

[0338] (実施例 4 7)

表 2 の組成比率に従って、実施例 1 と同様の方法により、エピスルフィド化合物を製造した。表 5 に示すとおり、エポキシ基反応率 100% までの反応時間が 2 時間であることから、反応時間は特に良好と判断した。また、エピスルフィド基収率は 95% であることから、特に良好と判断した。これら結果から、総合判定は合格とした。

[0339] (実施例 4 8)

表 2 の組成比率に従って、実施例 1 と同様の方法により、エピスルフィド化合物を製造した。表 5 に示すとおり、エポキシ基反応率 100% までの反応時間が 2 時間であることから、反応時間は特に良好と判断した。また、エピスルフィド基収率は 91% であることから、特に良好と判断した。これら結果から、総合判定は合格とした。

[0340] (実施例 4 9)

表 2 の組成比率に従って、実施例 1 と同様の方法により、エピスルフィド化合物を製造した。表 5 に示すとおり、エポキシ基反応率 100% までの反応時間が 4 時間であることから、反応時間は特に良好と判断した。また、エ

ピルスフィド基収率は94%であることから、特に良好と判断した。これら結果から、総合判定は合格とした。

[0341] (実施例50)

表2の組成比率に従って、実施例1と同様の方法により、エピルスフィド化合物を製造した。表5に示すとおり、エポキシ基反応率100%までの反応時間が2時間であることから、反応時間は特に良好と判断した。また、エピルスフィド基収率は94%であることから、特に良好と判断した。これら結果から、総合判定は合格とした。

[0342] (実施例51)

表2の組成比率に従って、実施例1と同様の方法により、エピルスフィド化合物を製造した。表5に示すとおり、エポキシ基反応率100%までの反応時間が3時間であることから、反応時間は特に良好と判断した。また、エピルスフィド基収率は93%であることから、特に良好と判断した。これら結果から、総合判定は合格とした。

[0343] (実施例52)

表2の組成比率に従って、実施例1と同様の方法により、エピルスフィド化合物を製造した。表5に示すとおり、エポキシ基反応率100%までの反応時間が2時間であることから、反応時間は特に良好と判断した。また、エピルスフィド基収率は94%であることから、特に良好と判断した。これら結果から、総合判定は合格とした。

[0344] (実施例53)

表2の組成比率に従って、実施例1と同様の方法により、エピルスフィド化合物を製造した。表5に示すとおり、エポキシ基反応率100%までの反応時間が4時間であることから、反応時間は特に良好と判断した。また、エピルスフィド基収率は94%であることから、特に良好と判断した。これら結果から、総合判定は合格とした。

[0345] (実施例54)

表2の組成比率に従って、実施例1と同様の方法により、エピルスフィド

化合物を製造した。表5に示すとおり、エポキシ基反応率100%までの反応時間が6時間であることから、反応時間は特に良好と判断した。また、エピスルフィド基収率は90%であることから、特に良好と判断した。これら結果から、総合判定は合格とした。

[0346] (実施例55)

表2の組成比率に従って、実施例1と同様の方法により、エピスルフィド化合物を製造した。表5に示すとおり、エポキシ基反応率100%までの反応時間が5時間であることから、反応時間は特に良好と判断した。また、エピスルフィド基収率は88%であることから、良好と判断した。これら結果から、総合判定は合格とした。

[0347] (実施例56)

表2の組成比率に従って、実施例1と同様の方法により、エピスルフィド化合物を製造した。表5に示すとおり、エポキシ基反応率100%までの反応時間が6時間であることから、反応時間は特に良好と判断した。また、エピスルフィド基収率は83%であることから、良好と判断した。これら結果から、総合判定は合格とした。

[0348] (実施例57)

表2の組成比率に従って、実施例1と同様の方法により、エピスルフィド化合物を製造した。表5に示すとおり、エポキシ基反応率100%までの反応時間が4時間であることから、反応時間は特に良好と判断した。また、エピスルフィド基収率は87%であることから、良好と判断した。これら結果から、総合判定は合格とした。

[0349] (実施例58)

表2の組成比率に従って、実施例1と同様の方法により、エピスルフィド化合物を製造した。表5に示すとおり、エポキシ基反応率100%までの反応時間が4時間であることから、反応時間は特に良好と判断した。また、エピスルフィド基収率は88%であることから、良好と判断した。これら結果から、総合判定は合格とした。

[0350] (実施例 59)

表 2 の組成比率に従って、実施例 1 と同様の方法により、エピスルフィド化合物を製造した。表 5 に示すとおり、エポキシ基反応率 100% までの反応時間が 2 時間であることから、反応時間は特に良好と判断した。また、エピスルフィド基収率は 87% であることから、良好と判断した。これら結果から、総合判定は合格とした。

[0351] (実施例 60)

表 2 の組成比率に従って、混合指標 β に加えて混合指標 ε を用いた以外は、実施例 1 と同様の方法により、エピスルフィド化合物を製造した。表 5 に示すとおり、エポキシ基反応率 100% までの反応時間が 6 時間であることから、反応時間は特に良好と判断した。また、エピスルフィド基収率は 94% であることから、特に良好と判断した。これら結果から、総合判定は合格とした。

[0352] (実施例 61)

表 2 の組成比率に従って、実施例 1 と同様の方法により、エピスルフィド化合物を製造した。表 5 に示すとおり、エポキシ基反応率 100% までの反応時間が 5 時間であることから、反応時間は特に良好と判断した。また、エピスルフィド基収率は 90% であることから、特に良好と判断した。これら結果から、総合判定は合格とした。

[0353] (実施例 62)

表 2 の組成比率に従って、実施例 1 と同様の方法により、エピスルフィド化合物を製造した。表 5 に示すとおり、エポキシ基反応率 100% までの反応時間が 5 時間であることから、反応時間は特に良好と判断した。また、エピスルフィド基収率は 91% であることから、特に良好と判断した。これら結果から、総合判定は合格とした。

[0354] (実施例 63)

表 2 の組成比率に従って、実施例 1 と同様の方法により、エピスルフィド化合物を製造した。表 5 に示すとおり、エポキシ基反応率 100% までの反

応時間が5時間であることから、反応時間は特に良好と判断した。また、エピスルフィド基収率は90%であることから、特に良好と判断した。これら結果から、総合判定は合格とした。

[0355] (実施例64)

表2の組成比率に従って、混合指標 β に加えて混合指標 ε を用いた以外は、実施例1と同様の方法により、エピスルフィド化合物を製造した。表5に示すとおり、エポキシ基反応率100%までの反応時間が4時間であることから、反応時間は特に良好と判断した。また、エピスルフィド基収率は92%であることから、特に良好と判断した。これら結果から、総合判定は合格とした。

[0356] (実施例65)

表2の組成比率に従って、実施例1と同様の方法により、エピスルフィド化合物を製造した。表5に示すとおり、エポキシ基反応率100%までの反応時間が12時間であることから、反応時間は良好と判断した。また、エピスルフィド基収率は83%であることから、良好と判断した。これら結果から、総合判定は合格とした。

[0357] (実施例66)

表2の組成比率に従って、実施例1と同様の方法により、エピスルフィド化合物を製造した。表5に示すとおり、エポキシ基反応率100%までの反応時間が8時間であることから、反応時間は良好と判断した。また、エピスルフィド基収率は91%であることから、特に良好と判断した。これら結果から、総合判定は合格とした。

[0358] (実施例67)

表2の組成比率に従って、実施例1と同様の方法により、エピスルフィド化合物を製造した。表5に示すとおり、エポキシ基反応率100%までの反応時間が18時間であることから、反応時間は良好と判断した。また、エピスルフィド基収率は81%であることから、良好と判断した。これら結果から、総合判定は合格とした。

[0359] (実施例 68)

表 2 の組成比率に従って、実施例 1 と同様の方法により、エピスルフィド化合物を製造した。表 5 に示すとおり、エポキシ基反応率 100% までの反応時間が 22 時間であることから、反応時間は良好と判断した。また、エピスルフィド基収率は 84% であることから、良好と判断した。これら結果から、総合判定は合格とした。

[0360] (実施例 69)

表 2 の組成比率に従って、実施例 1 と同様の方法により、エピスルフィド化合物を製造した。表 5 に示すとおり、エポキシ基反応率 100% までの反応時間が 15 時間であることから、反応時間は良好と判断した。また、エピスルフィド基収率は 93% であることから、特に良好と判断した。これら結果から、総合判定は合格とした。

[0361] (実施例 70)

表 2 の組成比率に従って、実施例 1 と同様の方法により、エピスルフィド化合物を製造した。表 5 に示すとおり、エポキシ基反応率 100% までの反応時間が 2 時間であることから、反応時間は特に良好と判断した。また、エピスルフィド基収率は 94% であることから、特に良好と判断した。これら結果から、総合判定は合格とした。

[0362] (実施例 71)

表 2 の組成比率に従って、実施例 1 と同様の方法により、エピスルフィド化合物を製造した。表 5 に示すとおり、エポキシ基反応率 100% までの反応時間が 1 時間であることから、反応時間は特に良好と判断した。また、エピスルフィド基収率は 96% であることから、特に良好と判断した。これら結果から、総合判定は合格とした。

[0363] (実施例 72)

表 2 の組成比率に従って、実施例 1 と同様の方法により、エピスルフィド化合物を製造した。表 5 に示すとおり、エポキシ基反応率 100% までの反応時間が 15 時間であることから、反応時間は良好と判断した。また、エピ

スルフィド基収率は90%であることから、特に良好と判断した。これら結果から、総合判定は合格とした。

[0364] (実施例73)

表2の組成比率に従って、実施例1と同様の方法により、エピスルフィド化合物を製造した。表5に示すとおり、エポキシ基反応率100%までの反応時間が1時間であることから、反応時間は特に良好と判断した。また、エピスルフィド基収率は95%であることから、特に良好と判断した。これら結果から、総合判定は合格とした。

[0365] (実施例74)

表2の組成比率に従って、実施例1と同様の方法により、エピスルフィド化合物を製造した。表5に示すとおり、エポキシ基反応率100%までの反応時間が18時間であることから、反応時間は良好と判断した。また、エピスルフィド基収率は90%であることから、特に良好と判断した。これら結果から、総合判定は合格とした。

[0366] (実施例75)

表2の組成比率に従って、実施例1と同様の方法により、エピスルフィド化合物を製造した。表5に示すとおり、エポキシ基反応率100%までの反応時間が4時間であることから、反応時間は特に良好と判断した。また、エピスルフィド基収率は83%であることから、良好と判断した。これら結果から、総合判定は合格とした。

[0367] (実施例76)

表2の組成比率に従って、実施例1と同様の方法により、エピスルフィド化合物を製造した。表5に示すとおり、エポキシ基反応率100%までの反応時間が2時間であることから、反応時間は特に良好と判断した。また、エピスルフィド基収率は92%であることから、特に良好と判断した。これら結果から、総合判定は合格とした。

[0368] (実施例77)

表2の組成比率に従って、実施例1と同様の方法により、エピスルフィド

化合物を製造した。表5に示すとおり、エポキシ基反応率100%までの反応時間が1時間であることから、反応時間は特に良好と判断した。また、エピスルフィド基収率は94%であることから、特に良好と判断した。これら結果から、総合判定は合格とした。

[0369] (実施例78)

表2の組成比率に従って、実施例1と同様の方法により、エピスルフィド化合物を製造した。表5に示すとおり、エポキシ基反応率100%までの反応時間が20時間であることから、反応時間は良好と判断した。また、エピスルフィド基収率は91%であることから、特に良好と判断した。これら結果から、総合判定は合格とした。

[0370] (実施例79)

表2の組成比率に従って、実施例1と同様の方法により、エピスルフィド化合物を製造した。表5に示すとおり、エポキシ基反応率100%までの反応時間が2時間であることから、反応時間は特に良好と判断した。また、エピスルフィド基収率は92%であることから、特に良好と判断した。これら結果から、総合判定は合格とした。

[0371] (実施例80)

表2の組成比率に従って、実施例1と同様の方法により、エピスルフィド化合物を製造した。表5に示すとおり、エポキシ基反応率100%までの反応時間が9時間であることから、反応時間は良好と判断した。また、エピスルフィド基収率は88%であることから、良好と判断した。これら結果から、総合判定は合格とした。

[0372] (実施例81)

表2の組成比率に従って、実施例1と同様の方法により、エピスルフィド化合物を製造した。表5に示すとおり、エポキシ基反応率100%までの反応時間が12時間であることから、反応時間は良好と判断した。また、エピスルフィド基収率は85%であることから、良好と判断した。これら結果から、総合判定は合格とした。

[0373] (実施例 8 2)

表 2 の組成比率に従って、実施例 1 と同様の方法により、エピスルフィド化合物を製造した。表 5 に示すとおり、エポキシ基反応率 100% までの反応時間が 12 時間であることから、反応時間は良好と判断した。また、エピスルフィド基収率は 85% であることから、良好と判断した。これら結果から、総合判定は合格とした。

[0374] (実施例 8 3)

表 2 の組成比率に従って、実施例 1 と同様の方法により、エピスルフィド化合物を製造した。表 5 に示すとおり、エポキシ基反応率 100% までの反応時間が 16 時間であることから、反応時間は良好と判断した。また、エピスルフィド基収率は 82% であることから、良好と判断した。これら結果から、総合判定は合格とした。

[0375] (実施例 8 4)

表 2 の組成比率に従って、実施例 1 と同様の方法により、エピスルフィド化合物を製造した。表 5 に示すとおり、エポキシ基反応率 100% までの反応時間が 20 時間であることから、反応時間は良好と判断した。また、エピスルフィド基収率は 82% であることから、良好と判断した。これら結果から、総合判定は合格とした。

[0376] (実施例 8 5)

表 2 の組成比率に従って、実施例 1 と同様の方法により、エピスルフィド化合物を製造した。表 5 に示すとおり、エポキシ基反応率 100% までの反応時間が 23 時間であることから、反応時間は良好と判断した。また、エピスルフィド基収率は 80% であることから、良好と判断した。これら結果から、総合判定は合格とした。

[0377] (実施例 8 6)

表 2 の組成比率に従って、実施例 1 と同様の方法により、エピスルフィド化合物を製造した。表 5 に示すとおり、エポキシ基反応率 100% までの反応時間が 22 時間であることから、反応時間は良好と判断した。また、エピ

スルフィド基収率は81%であることから、良好と判断した。これら結果から、総合判定は合格とした。

[0378] (比較例1)

表3の組成比率に従って、混合指標 β に代えて混合指標 ε を用いた以外は、実施例1と同様の方法により、エピスルフィド化合物を製造した。表6に示すとおり、エポキシ基反応率100%までの反応時間が32時間であることから、反応時間は不良と判断した。また、エピスルフィド基収率は72%であることから、不良と判断した。これら結果から、総合判定は不合格とした。

[0379] (比較例2)

表3の組成比率に従って、混合指標 β に代えて混合指標 ε を用いた以外は、実施例1と同様の方法により、エピスルフィド化合物を製造した。表6に示すとおり、エポキシ基反応率100%までの反応時間が150時間であることから、反応時間は不良と判断した。また、エピスルフィド基収率は69%であることから、不良と判断した。これら結果から、総合判定は不合格とした。

[0380] (比較例3)

表3の組成比率に従って、混合指標 β に代えて混合指標 ε を用いた以外は実施例1と同様の方法により、エピスルフィド化合物を製造した。表6に示すとおり、エポキシ基反応率100%までの反応時間が4時間であることから、反応時間は特に良好と判断した。また、エピスルフィド基収率は60%であることから、不良と判断した。これら結果から、総合判定は不合格とした。

[0381] (比較例4)

表3の組成比率に従って、混合指標 β に代えて混合指標 ε を用いた以外は、実施例1と同様の方法により、エピスルフィド化合物を製造した。表6に示すとおり、エポキシ基反応率100%までの反応時間が130時間であることから、反応時間は不良と判断した。また、エピスルフィド基収率は74

%であることから、不良と判断した。これら結果から、総合判定は不合格とした。

[0382] (比較例5)

表3の組成比率に従って、混合指標 β に代えて混合指標 ε を用いた以外は、実施例1と同様の方法により、エピスルフィド化合物を製造した。表6に示すとおり、エポキシ基反応率100%までの反応時間が4時間であることから、反応時間は特に良好と判断した。また、エピスルフィド基収率は53%であることから、不良と判断した。これら結果から、総合判定は不合格とした。本比較例においては、チオ尿素が反応液中に未溶解のまま残留していることが確認された。

[0383] (比較例6)

表3の組成比率に従って、混合指標 β に代えて混合指標 ε を用いた以外は、上記実施例1と同様の方法により、エピスルフィド化合物を製造した。表6に示すとおり、エポキシ基反応率100%までの反応時間が400時間であることから、反応時間は不良と判断した。また、エピスルフィド基収率は76%であることから、不良と判断した。これら結果から、総合判定は不合格とした。

[0384] (比較例7)

表3の組成比率に従って、混合指標 β に代えて混合指標 ε を用い、投げ込み式冷却加熱ユニット及びウォーターバスをオイル及びスターラーの入ったオイルバスに変更し、オイルの設定温度を100℃とした以外は、上記実施例1と同様の方法により、エピスルフィド化合物を製造した。表6に示すとおり、エポキシ基反応率100%までの反応時間が8時間であることから、反応時間は良好と判断した。また、エピスルフィド基収率は58%であることから、不良と判断した。これら結果から、総合判定は不合格とした。

[0385] (比較例8)

表3の組成比率に従って、混合指標 β に代えて混合指標 ε を用いた以外は、実施例1と同様の方法により、エピスルフィド化合物を製造した。表6に

示すとおり、エポキシ基反応率100%までの反応時間が25時間であることから、反応時間は不良と判断した。また、エピスルフィド基収率は62%であることから、不良と判断した。これら結果から、総合判定は不合格とした。

[0386] (比較例9)

表3の組成比率に従って、混合指標 β に代えて混合指標 ε を用いた以外は、実施例1と同様の方法により、エピスルフィド化合物を製造した。表6に示すとおり、エポキシ基反応率100%までの反応時間が30時間であることから、反応時間は不良と判断した。また、エピスルフィド基収率は55%であることから、不良と判断した。これら結果から、同時に不良であることから、総合判定は不合格とした。

[0387] (比較例10)

表3の組成比率に従って、混合指標 β に代えて混合指標 ε を用いた以外は、実施例1と同様の方法により、エピスルフィド化合物を製造した。表6に示すとおり、エポキシ基反応率100%までの反応時間が28時間であることから、反応時間は不良と判断した。また、エピスルフィド基収率は50%であることから、不良と判断した。これら結果から、総合判定は不合格とした。

[0388] (比較例11)

表3の組成比率に従って、混合指標 β に代えて混合指標 ε を用いた以外は、実施例1と同様の方法により、エピスルフィド化合物を製造した。表6に示すとおり、エポキシ基反応率100%までの反応時間が33時間であることから、反応時間は不良と判断した。また、エピスルフィド基収率は57%であることから、不良と判断した。これら結果から、総合判定は不合格とした。

[0389] (比較例12)

表3の組成比率に従って、混合指標 β に代えて混合指標 ε を用いた以外は、実施例1と同様の方法により、エピスルフィド化合物を製造した。表6に

示すとおり、エポキシ基反応率100%までの反応時間が40時間であることから、反応時間は不良と判断した。また、エピスルフィド基収率は60%であることから、不良と判断した。これら結果から、総合判定は不合格とした。

[0390] (比較例13)

表3の組成比率に従って、混合指標 β に代えて混合指標 ε を用いた以外は、実施例1と同様の方法により、エピスルフィド化合物を製造した。表6に示すとおり、エポキシ基反応率100%までの反応時間が28時間であることから、反応時間は不良と判断した。また、エピスルフィド基収率は54%であることから、不良と判断した。これら結果から、総合判定は不合格とした。

[0391] (比較例14)

表3の組成比率に従って、混合指標 β に代えて混合指標 ε を用いた以外は、実施例1と同様の方法により、エピスルフィド化合物を製造した。表6に示すとおり、エポキシ基反応率100%までの反応時間が30時間であることから、反応時間は不良と判断した。また、エピスルフィド基収率は54%であることから、不良と判断した。これら結果から、総合判定は不合格とした。

[0392] (比較例15)

表3の組成比率に従って、混合指標 β に代えて混合指標 ε を用いた以外は、実施例1と同様の方法により、エピスルフィド化合物を製造した。表6に示すとおり、エポキシ基反応率100%までの反応時間が32時間であることから、反応時間は不良と判断した。また、エピスルフィド基収率は58%であることから、不良と判断した。これら結果から、総合判定は不合格とした。

[0393] (比較例16)

表3の組成比率に従って、混合指標 β に代えて混合指標 ε を用いた以外は、実施例1と同様の方法により、エピスルフィド化合物を製造した。表6に

示すとおり、エポキシ基反応率100%までの反応時間が29時間であることから、反応時間は不良と判断した。また、エピスルフィド基収率は52%であることから、不良と判断した。これら結果から、総合判定は不合格とした。

[0394] (比較例17)

表3の組成比率に従って、混合指標 β に代えて混合指標 ε を用いた以外は、実施例1と同様の方法により、エピスルフィド化合物を製造した。表6に示すとおり、エポキシ基反応率100%までの反応時間が34時間であることから、反応時間は不良と判断した。また、エピスルフィド基収率は55%であることから、不良と判断した。これら結果から、総合判定は不合格とした。

[0395] (比較例18)

表3の組成比率に従って、混合指標 β に代えて混合指標 ε を用いた以外は、上記実施例1と同様の方法により、エピスルフィド化合物を製造した。表6に示すとおり、エポキシ基反応率100%までの反応時間が40時間であることから、反応時間は不良と判断した。また、エピスルフィド基収率は57%であることから、不良と判断した。これら結果から、総合判定は不合格とした。

[0396] (比較例19)

表3の組成比率に従って、混合指標 β に代えて混合指標 ε を用いた以外は実施例1と同様の方法により、エピスルフィド化合物を製造した。表6に示すとおり、エポキシ基反応率100%までの反応時間が26時間であることから、反応時間は不良と判断した。また、エピスルフィド基収率は49%であることから、不良と判断した。これら結果から、総合判定は不合格とした。

[0397] (比較例20)

表3の組成比率に従って、混合指標 β に代えて混合指標 ε を用いた以外は、実施例1と同様の方法により、エピスルフィド化合物を製造した。表6に

示すとおり、エポキシ基反応率100%までの反応時間が28時間であることから、反応時間は不良と判断した。また、エピスルフィド基収率は50%であることから、不良と判断した。これら結果から、総合判定は不合格とした。

[0398] (比較例21)

表3の組成比率に従って、混合指標 β に代えて混合指標 ε を用いた以外は、実施例1と同様の方法により、エピスルフィド化合物を製造した。表6に示すとおり、エポキシ基反応率100%までの反応時間が55時間であることから、反応時間は不良と判断した。また、エピスルフィド基収率は60%であることから、不良と判断した。これら結果から、総合判定は不合格とした。

[0399] (比較例22)

表3の組成比率に従って、混合指標 β に代えて混合指標 ε を用いた以外は、実施例1と同様の方法により、エピスルフィド化合物を製造した。表6に示すとおり、エポキシ基反応率100%までの反応時間が60時間であることから、反応時間は不良と判断した。また、エピスルフィド基収率は62%であることから、不良と判断した。これら結果から、総合判定は不合格とした。

[0400] (比較例23)

表3の組成比率に従って、混合指標 β に代えて混合指標 ε を用いた以外は、実施例1と同様の方法により、エピスルフィド化合物を製造した。表6に示すとおり、エポキシ基反応率100%までの反応時間が17時間であることから、反応時間は良好と判断した。また、エピスルフィド基収率は62%であることから、不良と判断した。これら結果から、総合判定は不合格とした。

[0401] (比較例24)

表3の組成比率に従って、混合指標 β に代えて混合指標 ε を用いた以外は、実施例1と同様の方法により、エピスルフィド化合物を製造した。表6に

示すとおり、エポキシ基反応率100%までの反応時間が12時間であることから、反応時間は良好と判断した。また、エピスルフィド基収率は53%であることから、不良と判断した。これら結果から、総合判定は不合格とした。

[0402] (比較例25)

表3の組成比率に従って、混合指標 β に代えて混合指標 ε を用い、投げ込み式冷却加熱ユニット及びウォーターバスを、オイル及びスターラーの入ったオイルバスに変更し、設定温度を80℃とした以外は、実施例1と同様の方法により、エピスルフィド化合物を製造した。表6に示すとおり、エポキシ基反応率100%までの反応時間が8時間であることから、反応時間は良好と判断した。また、エピスルフィド基収率は66%であることから、不良と判断した。これら結果から、総合判定は不合格とした。

[0403] (比較例26)

表3の組成比率に従って、混合指標 β に代えて混合指標 ε を用いた以外は、実施例1と同様の方法により、エピスルフィド化合物を製造した。表6に示すとおり、エポキシ基反応率100%までの反応時間が15時間であることから、反応時間は良好と判断した。また、エピスルフィド基収率は62%であることから、不良と判断した。これら結果から、総合判定は不合格とした。

[0404] (比較例27)

表3の組成比率に従って、混合指標 β に代えて混合指標 ε を用いた以外は、実施例1と同様の方法により、エピスルフィド化合物を製造した。表6に示すとおり、エポキシ基反応率100%までの反応時間が100時間であることから、反応時間は不良と判断した。また、エピスルフィド基収率は66%であることから、不良と判断した。これら結果から、総合判定は不合格とした。

[0405] (比較例28)

表3の組成比率に従って、混合指標 β に代えて混合指標 ε を用いた以外は

、実施例 1 と同様の方法により、エピスルフィド化合物を製造した。表 6 に示すとおり、エポキシ基反応率 100%までの反応時間が 30 時間であることから、反応時間は不良と判断した。また、エピスルフィド基収率は 60%であることから、不良と判断した。これら結果から、総合判定は不合格とした。

[0406] (比較例 29)

表 3 の組成比率に従って、混合指標 β に代えて混合指標 ε を用いた以外は、実施例 1 と同様の方法により、エピスルフィド化合物を製造した。表 6 に示すとおり、エポキシ基反応率 100%までの反応時間が 35 時間であることから、反応時間は不良と判断した。また、エピスルフィド基収率は 55%であることから、不良と判断した。これら結果から、総合判定は不合格とした。

[0407] (比較例 30)

表 3 の組成比率に従って、混合指標 β に代えて混合指標 ε を用いた以外は、実施例 1 と同様の方法により、エピスルフィド化合物を製造した。表 6 に示すとおり、エポキシ基反応率 100%までの反応時間が 60 時間であることから、反応時間は不良と判断した。また、エピスルフィド基収率は 50%であることから、不良と判断した。これら結果から、総合判定は不合格とした。

[0408] (比較例 31)

表 3 の組成比率に従って、混合指標 β に代えて混合指標 ε を用いた以外は、実施例 1 と同様の方法により、エピスルフィド化合物を製造した。表 6 に示すとおり、エポキシ基反応率 100%までの反応時間が 48 時間であることから、反応時間は不良と判断した。また、エピスルフィド基収率は 58%であることから、不良と判断した。これら結果から、総合判定は不合格とした。

[0409] (比較例 32)

表 3 の組成比率に従って、混合指標 β に代えて混合指標 ε を用いた以外は

、実施例 1 と同様の方法により、エピスルフィド化合物を製造した。表 6 に示すとおり、エポキシ基反応率 100%までの反応時間が 90 時間であることから、反応時間は不良と判断した。また、エピスルフィド基収率は 52%であることから、不良と判断した。これら結果から総合判定は不合格とした。

[0410] (比較例 33)

表 3 の組成比率に従って、混合指標 β に代えて混合指標 ε を用いた以外は、実施例 1 と同様の方法により、エピスルフィド化合物を製造した。表 6 に示すとおり、エポキシ基反応率 100%までの反応時間が 84 時間であることから、反応時間は不良と判断した。また、エピスルフィド基収率は 55%であることから、不良と判断した。これら結果から、総合判定は不合格とした。

[0411] (比較例 34)

表 3 の組成比率に従って、混合指標 β に代えて混合指標 ε を用いた以外は、実施例 1 と同様の方法により、エピスルフィド化合物を製造した。表 6 に示すとおり、エポキシ基反応率 100%までの反応時間が 76 時間であることから、反応時間は不良と判断した。また、エピスルフィド基収率は 60%であることから、不良と判断した。これら結果から、総合判定は不合格とした。

[0412] (比較例 35)

表 3 の組成比率に従って、混合指標 β に代えて混合指標 ε を用いた以外は、実施例 1 と同様の方法により、エピスルフィド化合物を製造した。表 6 に示すとおり、エポキシ基反応率 100%までの反応時間が 5 時間であることから、反応時間は特に良好と判断した。また、エピスルフィド基収率は 63%であることから、不良と判断した。これら結果から、総合判定は不合格とした。

[0413] (比較例 36)

表 3 の組成比率に従って、混合指標 β に代えて混合指標 ε を用いた以外は

、実施例 1 と同様の方法により、エピスルフィド化合物を製造した。表 6 に示すとおり、エポキシ基反応率 100%までの反応時間が 7 時間であることから、反応時間は良好と判断した。また、エピスルフィド基収率は 56%であることから、不良と判断した。これら結果から、総合判定は不合格とした。

[0414] (比較例 37)

表 3 の組成比率に従って、混合指標 β に代えて混合指標 ε を用いた以外は、実施例 1 と同様の方法により、エピスルフィド化合物を製造した。表 6 に示すとおり、エポキシ基反応率 100%までの反応時間が 48 時間であることから、反応時間は不良と判断した。また、エピスルフィド基収率は 50%であることから、不良と判断した。これら結果から、総合判定は不合格とした。

[0415] (比較例 38)

表 3 の組成比率に従って、混合指標 β に代えて混合指標 ε を用いた以外は、実施例 1 と同様の方法により、エピスルフィド化合物を製造した。表 6 に示すとおり、エポキシ基反応率 100%までの反応時間が 8 時間であることから、反応時間は良好と判断した。また、エピスルフィド基収率は 52%であることから、不良と判断した。これら結果から、総合判定は不合格とした。

[0416] (比較例 39)

表 3 の組成比率に従って、混合指標 β に代えて混合指標 ε を用いた以外は、実施例 1 と同様の方法により、エピスルフィド化合物を製造した。表 6 に示すとおり、エポキシ基反応率 100%までの反応時間が 38 時間であることから、反応時間は不良と判断した。また、エピスルフィド基収率は 50%であることから、不良と判断した。これら結果から、反応時間、及びエピスルフィド基収率が、同時に不良であることから、総合判定は不合格とした。

[0417] (比較例 40)

表 3 の組成比率に従って、混合指標 β に代えて混合指標 ε を用いた以外は

、実施例 1 と同様の方法により、エピスルフィド化合物を製造した。表 6 に示すとおり、エポキシ基反応率 100%までの反応時間が 10 時間であることから、反応時間は良好と判断した。また、エピスルフィド基収率は 52%であることから、不良と判断した。これら結果から、総合判定は不合格とした。

[0418] (比較例 4 1)

表 3 の組成比率に従って、混合指標 β に代えて混合指標 ε を用いた以外は、実施例 1 と同様の方法により、エピスルフィド化合物を製造した。表 6 に示すとおり、エポキシ基反応率 100%までの反応時間が 16 時間であることから、反応時間は良好と判断した。また、エピスルフィド基収率は 60%であることから、不良と判断した。これら結果から、総合判定は不合格とした。

[0419] (比較例 4 2)

表 3 の組成比率に従って、混合指標 β に代えて混合指標 ε を用いた以外は、実施例 1 と同様の方法により、エピスルフィド化合物を製造した。表 6 に示すとおり、エポキシ基反応率 100%までの反応時間が 8 時間であることから、反応時間は良好と判断した。また、エピスルフィド基収率は 54%であることから、不良と判断した。これら結果から、総合判定は不合格とした。

[0420] (比較例 4 3)

表 3 の組成比率に従って、混合指標 β に代えて混合指標 ε を用いた以外は、実施例 1 と同様の方法により、エピスルフィド化合物を製造した。表 6 に示すとおり、エポキシ基反応率 100%までの反応時間が 60 時間であることから、反応時間は不良と判断した。また、エピスルフィド基収率は 44%であることから、不良と判断した。これら結果から、総合判定は不合格とした。

[0421] (比較例 4 4)

表 3 の組成比率に従って、混合指標 β に代えて混合指標 ε を用いた以外は

、実施例1と同様の方法により、エピスルフィド化合物を製造した。表6に示すとおり、エポキシ基反応率100%までの反応時間が12時間であることから、反応時間は良好と判断した。また、エピスルフィド基収率は52%であることから、不良と判断した。これら結果から、総合判定は不合格とした。

[0422] [表1]

	多価水酸基化合物		一価水酸基化合物		エポキシ化合物		チア化剤		添加化合物	
	名称	質量%	名称	質量%	名称	質量%	名称	質量%	名称	質量%
実施例1	EG	63	—	—	PGE	18	TU	18	—	—
実施例2	12PG	63	—	—	PGE	18	TU	18	—	—
実施例3	13PG	63	—	—	PGE	18	TU	18	—	—
実施例4	12BD	64	—	—	PGE	18	TU	18	—	—
実施例5	13BD	68	—	—	PGE	16	TU	16	—	—
実施例6	14BD	66	—	—	PGE	17	TU	17	—	—
実施例7	12PD	72	—	—	PGE	14	TU	14	—	—
実施例8	12HD	81	—	—	PGE	10	TU	10	—	—
実施例9	12OD	86	—	—	PGE	7	TU	7	—	—
実施例10	GL	81	—	—	PGE	10	TU	10	—	—
実施例11	DEG	72	—	—	PGE	14	TU	14	—	—
実施例12	TEG	75	—	—	PGE	13	TU	13	—	—
実施例13	TEEG	75	—	—	PGE	13	TU	13	—	—
実施例14	PEEG	77	—	—	PGE	11	TU	12	—	—
実施例15	HEEG	79	—	—	PGE	10	TU	10	—	—
実施例16	OCEG	70	SW	14	PGE	8	TU	8	—	—
実施例17	DDEG	71	SW	14	PGE	7	TU	7	—	—
実施例18	PEG200	75	—	—	PGE	13	TU	13	—	—
実施例19	PEG300	76	—	—	PGE	12	TU	12	—	—
実施例20	PEG400	77	—	—	PGE	11	TU	12	—	—
実施例21	12BD	84	—	—	PGE	5	TU	11	—	—
実施例22	12BD	73	—	—	PGE	7	TU	20	—	—
実施例23	12BD	87	—	—	PGE	2	TU	10	—	—
実施例24	12BD	61	—	—	PGE	22	TU	17	—	—
実施例25	12BD	63	—	—	PGE	23	TU	14	—	—
実施例26	12BD	55	—	—	PGE	30	TU	15	—	—
実施例27	12PG	98	—	—	PGE	1	TU	1	—	—
実施例28	12PG	97	—	—	PGE	1	TU	1	—	—
実施例29	12PG	96	—	—	PGE	2	TU	2	—	—
実施例30	12PG	50	—	—	PGE	25	TU	25	—	—
実施例31	12PG	53	—	—	PGE	23	TU	24	—	—
実施例32	12PG	55	—	—	PGE	23	TU	23	—	—
実施例33	12BD	64	—	—	PGE	18	TU	18	—	—
実施例34	12BD	64	—	—	PGE	18	TU	18	—	—
実施例35	12BD	64	—	—	PGE	18	TU	18	—	—
実施例36	12BD	64	—	—	PGE	18	TU	18	—	—
実施例37	12BD	64	—	—	PGE	18	TU	18	—	—
実施例38	12BD	64	—	—	PGE	18	TU	18	—	—
実施例39	12PD	89	—	—	EO	3	TU	9	—	—
実施例40	12BD	72	—	—	PO	8	TU	20	—	—
実施例41	13PG	73	—	—	12EB	9	TU	18	—	—
実施例42	12BD	70	—	—	12EP	11	TU	19	—	—
実施例43	12PG	68	—	—	12EH	13	TU	20	—	—

[0423]

[表2]

	多価水酸基化合物		一価水酸基化合物		エポキシ化合物		チア化剤		添加化合物	
	名称	質量%	名称	質量%	名称	質量%	名称	質量%	名称	質量%
実施例44	1 2 B D	67	—	—	1 2 E H P	14	T U	19	—	—
実施例45	1 2 B D	66	—	—	1 2 E O	16	T U	18	—	—
実施例46	1 2 B D	64	—	—	1 2 E D	18	T U	18	—	—
実施例47	1 2 B D	62	—	—	1 2 E D D	21	T U	17	—	—
実施例48	1 2 B D	60	—	—	1 2 E T D	23	T U	17	—	—
実施例49	1 2 B D	58	—	—	1 2 E H D	26	T U	16	—	—
実施例50	1 2 B D	56	—	—	1 2 E O D	28	T U	16	—	—
実施例51	1 2 B D	55	—	—	1 2 E E C	30	T U	15	—	—
実施例52	1 3 B D	68	—	—	B i s - A - 1	18	T U	14	—	—
実施例53	1 3 B D	67	—	—	水添 B i s - A	19	T U	14	—	—
実施例54	1 2 B D	75	—	—	B i s - A - 2	19	T U	6	—	—
実施例55	1 2 B D	81	—	—	B i s - A - 3	15	T U	4	—	—
実施例56	1 2 B D	83	—	—	B i s - A - 4	14	T U	3	—	—
実施例57	1 2 B D	67	—	—	P G E	14	T C K	19	—	—
実施例58	1 2 B D	65	—	—	P G E	17	T C N	18	—	—
実施例59	1 2 B D	55	—	—	P G E	22	T C A	23	—	—
実施例60	1 2 B D	60	M N	6	P G E	17	T U	17	—	—
実施例61	1 2 B D	60	—	—	P G E	17	T U	17	T O L	6
実施例62	1 2 B D	60	—	—	P G E	17	T U	17	A N	6
実施例63	1 2 B D	60	—	—	P G E	17	T U	17	T H F	6
実施例64	1 2 B D	60	S W	6	P G E	17	T U	17	—	—
実施例65	1 2 B D	70	—	—	C 5 O	11	T U	20	—	—
実施例66	1 2 B D	68	—	—	C 6 O	12	T U	19	—	—
実施例67	1 2 B D	67	—	—	C 7 O	14	T U	19	—	—
実施例68	1 2 B D	66	—	—	C 8 O	15	T U	19	—	—
実施例69	1 2 B D	66	—	—	C E L	16	T U	18	—	—
実施例70	1 2 B D	69	—	—	B E D S	12	T U	19	—	—
実施例71	1 2 B D	62	—	—	B G T D	21	T U	17	—	—
実施例72	1 2 B D	61	—	—	B C T D	22	T U	17	—	—
実施例73	1 2 B D	62	—	—	T G C S	20	T U	17	—	—
実施例74	1 2 B D	62	—	—	T C C S	21	T U	17	—	—
実施例75	1 2 B D	71	—	—	B D M O	9	T U	20	—	—
実施例76	1 2 B D	68	—	—	E P H E	12	T U	19	—	—
実施例77	1 2 B D	67	—	—	A G E	14	T U	19	—	—
実施例78	1 2 B D	66	—	—	E V C H	15	T U	19	—	—
実施例79	1 2 B D	65	—	—	G L M T	17	T U	18	—	—
実施例80	E T T	15	S W	74	P G E	6	T U	6	—	—
実施例81	X T	15	S W	74	P G E	6	T U	6	—	—
実施例82	D M T	15	S W	74	P G E	6	T U	6	—	—
実施例83	V L T	12	S W	78	P G E	5	T U	5	—	—
実施例84	D L C	13	S W	76	P G E	5	T U	5	—	—
実施例85	S C R	12	S W	77	P G E	5	T U	5	—	—
実施例86	M E O S	96	—	—	P G E	2	T U	2	—	—

[0424]

[表3]

	多価水酸基化合物		一価水酸基化合物		エポキシ化合物		チア化剤		添加化合物	
	名称	質量%	名称	質量%	名称	質量%	名称	質量%	名称	質量%
比較例1	—	—	MN	93	PGE	4	TU	4	—	—
比較例2	—	—	MN	89	PGE	7	TU	4	—	—
比較例3	—	—	MN	95	PGE	1	TU	4	—	—
比較例4	—	—	MN	98	PGE	1	TU	1	—	—
比較例5	—	—	MN	56	PGE	22	TU	22	—	—
比較例6	—	—	MN	93	PGE	4	TU	4	—	—
比較例7	—	—	MN	93	PGE	4	TU	4	—	—
比較例8	—	—	MN	95	EO	1	TU	4	—	—
比較例9	—	—	MN	95	PO	1	TU	4	—	—
比較例10	—	—	MN	94	12EB	2	TU	4	—	—
比較例11	—	—	MN	94	12EP	2	TU	4	—	—
比較例12	—	—	MN	94	12EH	2	TU	4	—	—
比較例13	—	—	MN	93	12EHP	3	TU	4	—	—
比較例14	—	—	MN	93	12EO	3	TU	4	—	—
比較例15	—	—	MN	93	12ED	4	TU	4	—	—
比較例16	—	—	MN	92	12EDD	4	TU	4	—	—
比較例17	—	—	MN	91	12ETD	5	TU	4	—	—
比較例18	—	—	MN	91	12EHD	6	TU	4	—	—
比較例19	—	—	MN	90	12EOD	6	TU	4	—	—
比較例20	—	—	MN	89	12EEC	7	TU	4	—	—
比較例21	—	—	MN	92	Bis-A-1	5	TU	4	—	—
比較例22	—	—	MN	91	水添Bis-A	5	TU	4	—	—
比較例23	—	—	MN	86	Bis-A-2	11	TU	3	—	—
比較例24	—	—	MN	84	Bis-A-3	12	TU	3	—	—
比較例25	—	—	MN	83	Bis-A-4	14	TU	3	—	—
比較例26	—	—	MN	55	PGE	22	TCA	23	—	—
比較例27	—	—	SW	88	PGE	5	TCA	7	—	—
比較例28	—	—	MN	65	PGE	17	TCK	18	—	—
比較例29	—	—	MN	66	PGE	16	TGN	18	—	—
比較例30	—	—	MN	94	C5O	2	TU	4	—	—
比較例31	—	—	MN	94	C6O	2	TU	4	—	—
比較例32	—	—	MN	94	C7O	3	TU	4	—	—
比較例33	—	—	MN	93	C8O	3	TU	4	—	—
比較例34	—	—	MN	93	CEL	3	TU	4	—	—
比較例35	—	—	MN	94	BEDS	2	TU	4	—	—
比較例36	—	—	MN	92	BGTD	4	TU	4	—	—
比較例37	—	—	MN	92	BCTD	5	TU	4	—	—
比較例38	—	—	MN	92	TGCS	4	TU	4	—	—
比較例39	—	—	MN	92	TCCS	4	TU	4	—	—
比較例40	—	—	MN	94	BDMO	2	TU	4	—	—
比較例41	—	—	MN	94	EPHE	2	TU	4	—	—
比較例42	—	—	MN	93	AGE	3	TU	4	—	—
比較例43	—	—	MN	93	EVCH	3	TU	4	—	—
比較例44	—	—	MN	93	GLMT	3	TU	4	—	—

[0425]

[表4]

<判定> AA: 特に良好、A: 良好、C: 不良、<総合判定> AA、A: 合格、C: 不合格

	H V	W P E	α	β	ϵ	反応温度	エポキシ基反応率	エビスルフィド基収率	反応時間		総合判定	
	(m g / g)	(g / eq)				(°C)	(%)	(%)	判定	H R		判定
実施例1	1808	150	2	0.29	—	20	100	86	A	4	AA	A
実施例2	1475	150	2	0.29	—	20	100	93	AA	2	AA	AA
実施例3	1475	150	2	0.29	—	20	100	91	AA	4	AA	AA
実施例4	1245	150	2	0.28	—	20	100	95	AA	2	AA	AA
実施例5	1245	150	2	0.24	—	20	100	92	AA	4	AA	AA
実施例6	1245	150	2	0.26	—	20	100	95	AA	2	AA	AA
実施例7	1078	150	2	0.20	—	20	100	92	AA	2	AA	AA
実施例8	950	150	2	0.12	—	20	100	93	AA	2	AA	AA
実施例9	767	150	2	0.08	—	20	100	92	AA	3	AA	AA
実施例10	1828	150	2	0.12	—	20	100	80	A	20	A	A
実施例11	1057	150	2	0.2	—	20	100	89	A	7	A	A
実施例12	747	150	2	0.17	—	20	100	85	A	12	A	A
実施例13	578	150	2	0.17	—	20	100	83	A	12	A	A
実施例14	471	150	2	0.15	—	20	100	83	A	15	A	A
実施例15	397	150	2	0.13	—	20	100	82	A	19	A	A
実施例16	303	150	2	0.11	0.55	20	100	82	A	20	A	A
実施例17	205	150	2	0.1	0.50	20	100	80	A	23	A	A
実施例18	561	150	2	0.17	—	20	100	86	A	8	A	A
実施例19	374	150	2	0.16	—	20	100	83	A	13	A	A
実施例20	281	150	2	0.15	—	20	100	81	A	15	A	A
実施例21	1245	150	4	0.13	—	20	100	92	AA	2	AA	AA
実施例22	1245	150	6	0.28	—	20	100	86	A	1	AA	A
実施例23	1245	150	10	0.12	—	20	100	80	A	1	AA	A
実施例24	1245	150	1.5	0.28	—	20	100	95	AA	3	AA	AA
実施例25	1245	150	1.2	0.22	—	20	100	89	A	8	A	A
実施例26	1245	150	1	0.28	—	20	100	88	A	17	A	A
実施例27	1475	150	2	0.01	—	20	100	97	AA	15	A	A
実施例28	1475	150	2	0.015	—	20	100	96	AA	12	A	A
実施例29	1475	150	2	0.02	—	20	100	96	AA	3	AA	AA
実施例30	1475	150	2	0.5	—	20	100	87	A	2	AA	A
実施例31	1475	150	2	0.45	—	20	100	90	A	2	AA	A
実施例32	1475	150	2	0.42	—	20	100	90	AA	2	AA	AA
実施例33	1245	150	2	0.28	—	10	100	95	AA	3	AA	AA
実施例34	1245	150	2	0.28	—	5	100	96	AA	8	A	A
実施例35	1245	150	2	0.28	—	0	100	97	AA	15	A	A
実施例36	1245	150	2	0.28	—	60	100	92	AA	1	AA	AA
実施例37	1245	150	2	0.28	—	80	100	87	A	1	AA	A
実施例38	1245	150	2	0.28	—	100	100	83	A	1	AA	A
実施例39	1078	44	2	0.1	—	0	100	83	A	6	AA	A
実施例40	1245	58	2	0.28	—	20	100	87	A	6	AA	A
実施例41	1475	72	2	0.25	—	20	100	87	A	2	AA	A
実施例42	1245	86	2	0.28	—	20	100	86	A	3	AA	A
実施例43	1475	100	2	0.29	—	20	100	92	AA	3	AA	AA

[0426]

[表5]

<判定> AA: 特に良好、A: 良好、C: 不良、<総合判定> AA、A: 合格、C: 不合格

	H V	W P E	α	β	ϵ	反応温度		エポキシ基反応率		エビスルフィド基収率		反応時間		総合判定
	(m g / g)	(g / e q)				(°C)	(%)	(%)	判定	H R	判定			
実施例44	1245	114	2	0.28	—	20	100	91	AA	2	AA	AA	AA	
実施例45	1245	128	2	0.28	—	20	100	94	AA	1	AA	AA	AA	
実施例46	1245	156	2	0.28	—	20	100	92	AA	3	AA	AA	AA	
実施例47	1245	184	2	0.28	—	20	100	95	AA	2	AA	AA	AA	
実施例48	1245	212	2	0.28	—	20	100	91	AA	2	AA	AA	AA	
実施例49	1245	240	2	0.28	—	20	100	94	AA	4	AA	AA	AA	
実施例50	1245	268	2	0.28	—	20	100	94	AA	2	AA	AA	AA	
実施例51	1245	297	2	0.28	—	20	100	93	AA	3	AA	AA	AA	
実施例52	1245	189	2	0.21	—	20	100	94	AA	2	AA	AA	AA	
実施例53	1245	205	2	0.21	—	20	100	94	AA	4	AA	AA	AA	
実施例54	1245	480	2	0.08	—	60	100	90	AA	6	AA	AA	AA	
実施例55	1245	560	2	0.05	—	80	100	88	A	5	AA	A	A	
実施例56	1245	650	2	0.04	—	80	100	83	A	6	AA	A	A	
実施例57	1245	150	2	0.28	—	20	100	87	A	4	AA	A	A	
実施例58	1245	150	2	0.28	—	20	100	88	A	4	AA	A	A	
実施例59	1245	150	2	0.41	—	20	100	87	A	2	AA	A	A	
実施例60	1245	150	2	0.28	2.8	20	100	94	AA	6	AA	AA	AA	
実施例61	1245	150	2	0.28	—	20	100	90	AA	5	AA	AA	AA	
実施例62	1245	150	2	0.28	—	20	100	91	AA	5	AA	AA	AA	
実施例63	1245	150	2	0.28	—	20	100	90	AA	5	AA	AA	AA	
実施例64	1245	150	2	0.28	2.8	20	100	92	AA	4	AA	AA	AA	
実施例65	1245	84	2	0.28	—	20	100	83	A	12	A	A	A	
実施例66	1245	98	2	0.28	—	20	100	91	AA	8	A	A	A	
実施例67	1245	112	2	0.28	—	20	100	81	A	18	A	A	A	
実施例68	1245	126	2	0.28	—	20	100	84	A	22	A	A	A	
実施例69	1245	131	2	0.28	—	20	100	93	AA	15	A	A	A	
実施例70	1245	91	2	0.28	—	20	100	94	AA	2	AA	AA	AA	
実施例71	1245	181	2	0.28	—	20	100	96	AA	1	AA	AA	AA	
実施例72	1245	191	2	0.28	—	20	100	90	AA	15	A	A	A	
実施例73	1245	174	2	0.28	—	20	100	95	AA	1	AA	AA	AA	
実施例74	1245	184	2	0.28	—	20	100	90	AA	18	A	A	A	
実施例75	1245	70	2	0.28	—	20	100	83	A	4	AA	A	A	
実施例76	1245	98	2	0.28	—	20	100	92	AA	2	AA	AA	AA	
実施例77	1245	114	2	0.28	—	20	100	94	AA	1	AA	AA	AA	
実施例78	1245	124	2	0.28	—	20	100	91	AA	20	A	A	A	
実施例79	1245	142	2	0.28	—	20	100	92	AA	2	AA	AA	AA	
実施例80	1838	150	2	0.38	0.08	20	100	88	A	9	A	A	A	
実施例81	1844	150	2	0.4	0.08	20	100	85	A	12	A	A	A	
実施例82	1848	150	2	0.38	0.08	20	100	85	A	12	A	A	A	
実施例83	1851	150	2	0.42	0.06	20	100	82	A	16	A	A	A	
実施例84	1557	150	2	0.4	0.07	20	100	82	A	20	A	A	A	
実施例85	1311	150	2	0.42	0.07	20	100	80	A	23	A	A	A	
実施例86	2336	150	2	0.5	—	20	100	81	A	22	A	A	A	

[0427]

[表6]

<判定> AA: 特に良好、A: 良好、C: 不良、<総合判定> AA、A: 合格、C: 不合格

	WPE (g/eq)	α	β	ε	反応温度	エポキシ基反応率	エピスルフィド基収率	反応時間		総合判定	
					(°C)	(%)	(%)	判定	H R		判定
比較例1	150	2	—	0.04	20	100	72	C	32	C	C
比較例2	150	1	—	0.04	20	100	69	C	150	C	C
比較例3	150	10	—	0.04	20	100	60	C	4	AA	C
比較例4	150	2	—	0.01	20	100	74	C	130	C	C
比較例5	150	2	—	0.4	20	100	53	C	4	AA	C
比較例6	150	2	—	0.04	0	100	76	C	400	C	C
比較例7	150	2	—	0.04	100	100	58	C	8	A	C
比較例8	44	2	—	0.04	20	100	62	C	25	C	C
比較例9	58	2	—	0.04	20	100	55	C	30	C	C
比較例10	72	2	—	0.04	20	100	50	C	28	C	C
比較例11	86	2	—	0.04	20	100	57	C	33	C	C
比較例12	100	2	—	0.04	20	100	60	C	40	C	C
比較例13	114	2	—	0.04	20	100	54	C	28	C	C
比較例14	128	2	—	0.04	20	100	54	C	30	C	C
比較例15	156	2	—	0.04	20	100	58	C	32	C	C
比較例16	184	2	—	0.04	20	100	52	C	29	C	C
比較例17	212	2	—	0.04	20	100	55	C	34	C	C
比較例18	240	2	—	0.04	20	100	57	C	40	C	C
比較例19	268	2	—	0.04	20	100	49	C	26	C	C
比較例20	297	2	—	0.04	20	100	50	C	28	C	C
比較例21	189	2	—	0.04	20	100	60	C	55	C	C
比較例22	205	2	—	0.04	20	100	62	C	60	C	C
比較例23	480	2	—	0.04	60	100	60	C	17	A	C
比較例24	560	2	—	0.04	80	100	53	C	12	A	C
比較例25	650	2	—	0.04	80	100	66	C	8	A	C
比較例26	150	2	—	0.41	20	100	62	C	15	A	C
比較例27	150	2	—	0.08	20	100	66	C	100	C	C
比較例28	150	2	—	0.27	20	100	60	C	30	C	C
比較例29	150	2	—	0.27	20	100	55	C	35	C	C
比較例30	84	2	—	0.04	20	100	50	C	60	C	C
比較例31	98	2	—	0.04	20	100	58	C	48	C	C
比較例32	112	2	—	0.04	20	100	52	C	90	C	C
比較例33	126	2	—	0.04	20	100	55	C	84	C	C
比較例34	131	2	—	0.04	20	100	60	C	76	C	C
比較例35	91	2	—	0.04	20	100	63	C	5	AA	C
比較例36	181	2	—	0.04	20	100	56	C	7	A	C
比較例37	191	2	—	0.04	20	100	48	C	50	C	C
比較例38	174	2	—	0.04	20	100	52	C	8	A	C
比較例39	184	2	—	0.04	20	100	50	C	38	C	C
比較例40	70	2	—	0.04	20	100	52	C	10	A	C
比較例41	98	2	—	0.04	20	100	60	C	16	A	C
比較例42	114	2	—	0.04	20	100	54	C	8	A	C
比較例43	124	2	—	0.04	20	100	44	C	60	C	C
比較例44	142	2	—	0.04	20	100	52	C	12	A	C

[0428] 表1～6に示すように、本実施形態に係る（A）2個以上の水酸基を有する多価水酸化化合物の存在下、（B）エポキシ化合物のエポキシ基を（C）チア化剤との反応によりチア化する工程を備える、エピスルフィド化合物を製造する方法は、反応時間が短く、エピスルフィド基収率が高く、金属触媒等を用いない環境負荷の小さい、優れた方法であることが確認された。これに対して、1個の水酸基を有するアルコール、又は水の存在下で反応を行った比較例によれば、エピスルフィド基の収率が十分でなく、反応時間も長い場合が多かった。

[0429] （実施例87）

実施例1の反応終了後の反応液から、以下の手順でエピスルフィド化合物

を含有する反応生成物を分離した。

(1) 反応液にNHX（非極性溶媒）及びSW（水酸化化合物）を加え、混合攪拌した後、攪拌を止め、エピスルフィド化合物を含有するNHX層と、SW層とが層分離するまで静置した。

(2) NHX層のみを取り出した。

(3) 上記(2)で得られたNHX層に飽和食塩水を加え、混合攪拌した後、攪拌を止め、NHX層と、飽和食塩水層とが、層分離するまで静置し、NHX層のみを取り出した。

(4) 上記(3)で得られたNHX層に無水硫酸マグネシウム（和光純薬株式会社製）を加え、混合攪拌し、濾過により無水硫酸マグネシウムを除去し、NHX層を得た。

(5) 上記(4)で得られたNHX層に含有される低沸点化合物（NHXを含む）を、ロータリーエバポレーターを用いて溜去し、エピスルフィド化合物を含有する反応生成物を得た。

なお、上記(3)、及び(4)の操作は、(2)で得られたNHX層に含有される低沸点化合物（NHXを含む）を、ロータリーエバポレーターを用いて溜去する際、水が溜去するまでの時間を短縮するために行った操作であり、必要がない場合には、(3)、及び(4)の操作を省くことができる。

(6) 上述の方法にしたがって、得られた反応生成物中のエピスルフィド化合物含有量を測定した。上述の方法により反応生成物の貯蔵安定性を評価した結果、変質率は18%であり、良好と判断した。

[0430] (実施例88～146)

実施例2～86でそれぞれで得られた反応液を用いた以外は、実施例87と同様の方法によりエピスルフィド化合物を含有する反応生成物を分離した。得られた反応生成物の貯蔵安定性を評価した結果を表7に示す。

[0431] 実施例2～86でそれぞれで得られた反応液、及び表7に示す非極性溶媒を用いた以外は、実施例87と同様の方法によりエピスルフィド化合物を含有する反応生成物を分離した。得られた反応生成物の貯蔵安定性を評価した

結果を表 7 に示す。

[0432] (比較例 4 5 ~ 7 8)

比較例 1 ~ 4 4 でそれぞれ得られた反応液を用いた以外は、実施例 8 7 と同様の方法によりエピスルフィド化合物を含有する反応生成物を分離した。得られた反応生成物の貯蔵安定性を評価した結果を表 8 に示す。

[0433] 実施例 1 ~ 4 4 でそれぞれで得られた反応液、及び表 8 に示す非極性溶媒を用いた以外は、実施例 8 7 と同様の方法によりエピスルフィド化合物を含有する反応生成物を分離した。得られた反応生成物の貯蔵安定性を評価した結果を表 8 に示す。

[0434]

[表7]

<判定> AA: 特に良好、A: 良好、C: 不良

	非極性溶媒	エピスルフィド化合物含有量		変質率 %	貯蔵安定性 判定
		保持前 (%)	1年保持後 (%)		
実施例87	H N X	88	78	11	A
実施例88	H N X	93	86	8	AA
実施例89	H N X	92	86	7	AA
実施例90	H N X	96	92	4	AA
実施例91	H N X	94	89	5	AA
実施例92	H N X	96	91	5	AA
実施例93	H N X	93	86	7	AA
実施例94	H N X	94	87	7	AA
実施例95	H N X	93	83	11	A
実施例96	H N X	82	67	18	A
実施例97	H N X	89	79	11	A
実施例98	H N X	85	74	13	A
実施例99	H N X	85	74	13	A
実施例100	H N X	83	69	17	A
実施例101	H N X	84	71	16	A
実施例102	H N X	85	70	18	A
実施例103	H N X	83	67	19	A
実施例104	H N X	88	77	12	A
実施例105	H N X	85	72	15	A
実施例106	H N X	81	67	18	A
実施例107	D E E	85	69	19	A
実施例108	D E E	89	74	17	A
実施例109	H N X	87	75	14	A
実施例110	H N X	87	77	12	A
実施例111	H N X	93	87	6	AA
実施例112	H N X	93	86	7	AA
実施例113	H N X	94	89	5	AA
実施例114	H N X	94	88	6	AA
実施例115	H N X	95	91	4	AA
実施例116	H N X	92	87	5	AA
実施例117	H N X	94	88	6	AA
実施例118	H N X	95	91	4	AA
実施例119	H N X	94	87	7	AA
実施例120	A C E T	94	91	4	AA
実施例121	A C E T	95	89	6	AA
実施例122	A C E T	92	87	5	AA
実施例123	A C E T	89	78	12	A
実施例124	A C E T	83	71	15	A
実施例125	H N X	95	78	18	A
実施例126	H N X	92	75	18	A
実施例127	H N X	83	70	16	A
実施例128	H N X	85	72	15	A
実施例129	A C E T	93	77	17	A
実施例130	A C E T	94	89	5	AA
実施例131	H N X	96	90	6	AA
実施例132	H N X	92	80	13	A
実施例133	H N X	96	91	5	AA
実施例134	H N X	92	79	14	A
実施例135	H N X	84	70	17	A
実施例136	H N X	93	86	7	AA
実施例137	H N X	95	90	5	AA
実施例138	H N X	92	76	17	A
実施例139	H N X	92	85	8	AA
実施例140	H N X	88	77	12	A
実施例141	H N X	86	76	12	A
実施例142	H N X	87	74	15	A
実施例143	H N X	85	71	16	A
実施例144	H N X	85	70	18	A
実施例145	H N X	83	67	19	A
実施例146	H N X	83	68	18	A

[0435]

[表8]

<判定> AA:特に良好、A:良好、C:不良

	非極性溶媒	エピスルフィド化合物含有量		変質率	貯蔵安定性
		保持前 (%)	1年保持後 (%)	%	判定
比較例45	H N X	74	36	52	C
比較例46	D E E	65	26	60	C
比較例47	D E E	56	21	62	C
比較例48	H N X	55	28	50	C
比較例49	H N X	57	30	48	C
比較例50	H N X	62	28	55	C
比較例51	H N X	56	25	56	C
比較例52	H N X	56	26	54	C
比較例53	H N X	60	29	52	C
比較例54	H N X	55	23	58	C
比較例55	H N X	56	29	48	C
比較例56	H N X	57	25	56	C
比較例57	H N X	51	24	52	C
比較例58	H N X	55	26	52	C
比較例59	A C E T	63	20	68	C
比較例60	A C E T	64	22	66	C
比較例61	A C E T	62	19	70	C
比較例62	A C E T	55	20	64	C
比較例63	A C E T	66	22	66	C
比較例64	H N X	53	15	72	C
比較例65	H N X	58	17	70	C
比較例66	H N X	55	19	65	C
比較例67	H N X	60	19	68	C
比較例68	H N X	62	21	66	C
比較例69	H N X	63	30	52	C
比較例70	H N X	58	30	48	C
比較例71	H N X	52	20	62	C
比較例72	H N X	52	26	50	C
比較例73	H N X	54	17	68	C
比較例74	H N X	54	18	66	C
比較例75	H N X	64	18	72	C
比較例76	H N X	56	24	58	C
比較例77	H N X	48	24	50	C
比較例78	H N X	56	18	68	C

[0436] (実施例148)

実施例39の反応終了後の反応液を、新実験科学講座（丸善株式会社）及び化学実験マニュアル（技報堂出版株式会社）に例示されている方法を参考に、蒸留することで、エピスルフィド化合物を含有する反応生成物を分離した。

蒸留操作の条件としては、常圧、減圧、加圧であってもよく、前記圧力条件下、エピスルフィド化合物の沸点を超える温度とすればよい。例えば、本実施例においては、常圧下60℃の条件、及び20kPa下20℃の条件が挙げられる。蒸留後に得られる反応生成物の収量を高めるには、蒸留を低温で行うことが好ましい。得れた反応生成物中のエピスルフィド化合物含有量を測定した結果、99%であった。

[0437] (実施例149)

実施例40の反応終了後の反応液を用いた以外は、実施例148と同様の方法によりエピスルフィド化合物を含有する反応生成物を分離した。得れた反応生成物中のエピスルフィド化合物含有量を測定した結果、99%であった。

[0438] (実施例150)

実施例41の反応終了の反応液を用いた以外は、実施例148と同様の方法によりエピスルフィド化合物を含有する反応生成物を分離した。得れた反応生成物中のエピスルフィド化合物含有量を測定した結果、99%であった。

[0439] (実施例151)

実施例87の分離操作後の反応生成物を用いた以外は、実施例148と同様の方法によりエピスルフィド化合物を含有する反応生成物を分離した。得られた反応生成物中のエピスルフィド化合物含有量を測定した結果、99%であった。

[0440] (実施例152)

実施例107の分離操作後の反応生成物を用いた以外は、実施例148と同様の方法によりエピスルフィド化合物を含有する反応生成物を分離した。得られた反応生成物中のエピスルフィド化合物含有量を測定した結果、99%であった。

[0441] (実施例153)

実施例108の分離操作後の反応生成物を用いた以外は、実施例148と

同様の方法によりエピスルフィド化合物を含有する反応生成物を分離した。得られた反応生成物中のエピスルフィド化合物含有量を測定した結果、99%であった。

[0442] (実施例154)

実施例109の分離操作後の反応生成物を用いた以外は、実施例148と同様の方法によりエピスルフィド化合物を含有する反応生成物を分離した。得られた反応生成物中のエピスルフィド化合物含有量を測定した結果、99%であった。

[0443] (実施例155)

実施例110の分離操作後の反応生成物を用いた以外は、実施例148と同様の方法によりエピスルフィド化合物を含有する反応生成物を分離した。得られた反応生成物中のエピスルフィド化合物含有量を測定した結果、99%であった。

[0444] (実施例156)

実施例111の分離操作後の反応生成物を用いた以外は、実施例148と同様の方法によりエピスルフィド化合物を含有する反応生成物を分離した。得られた反応生成物中のエピスルフィド化合物含有量を測定した結果、99%であった。

[0445] (実施例157)

実施例112の分離操作後の反応生成物を用いた以外は、実施例148と同様の方法によりエピスルフィド化合物を含有する反応生成物を分離した。得られた反応生成物中のエピスルフィド化合物含有量を測定した結果、99%であった。

[0446] (実施例158)

実施例113の分離操作後の反応生成物を用いた以外は、実施例148と同様の方法によりエピスルフィド化合物を含有する反応生成物を分離した。得られた反応生成物中のエピスルフィド化合物含有量を測定した結果、99%であった。

[0447] (実施例 1 5 9)

実施例 1 2 5 の分離操作後の反応生成物を用いた以外は、実施例 1 4 8 と同様の方法によりエピスルフィド化合物を含有する反応生成物を分離した。得られた反応生成物中のエピスルフィド化合物含有量を測定した結果、99%であった。

[0448] (実施例 1 6 0)

実施例 1 2 6 の分離操作後の反応生成物を用いた以外は、実施例 1 4 8 と同様の方法によりエピスルフィド化合物を含有する反応生成物を分離した。得られた反応生成物中のエピスルフィド化合物含有量を測定した結果、99%であった。

[0449] (実施例 1 6 1)

実施例 1 2 7 の分離操作後の反応生成物を用いた以外は、実施例 1 4 8 と同様の方法によりエピスルフィド化合物を含有する反応生成物を分離した。得られた反応生成物中のエピスルフィド化合物含有量を測定した結果、99%であった。

[0450] (実施例 1 6 2)

実施例 1 2 8 の分離操作後の反応生成物を用いた以外は、実施例 1 4 8 と同様の方法によりエピスルフィド化合物を含有する反応生成物を分離した。得られた反応生成物中のエピスルフィド化合物含有量を測定した結果、99%であった。

[0451] (実施例 1 6 3)

実施例 1 3 5 の分離操作後の反応生成物を用いた以外は、実施例 1 4 8 と同様の方法によりエピスルフィド化合物を含有する反応生成物を分離した。得られた反応生成物中のエピスルフィド化合物含有量を測定した結果、99%であった。

[0452] (実施例 1 6 4)

実施例 1 3 6 の分離操作後の反応生成物を用いた以外は、実施例 1 4 8 と同様の方法によりエピスルフィド化合物を含有する反応生成物を分離した。

得られた反応生成物中のエピスルフィド化合物含有量を測定した結果、99%であった。

[0453] (実施例165)

実施例137の分離操作後の反応生成物を用いた以外は、実施例148と同様の方法によりエピスルフィド化合物を含有する反応生成物を分離した。得られた反応生成物中のエピスルフィド化合物含有量を測定した結果、99%であった。

[0454] (実施例166)

実施例138の分離操作後の反応生成物を用いた以外は、実施例148と同様の方法によりエピスルフィド化合物を含有する反応生成物を分離した。得られた反応生成物中のエピスルフィド化合物含有量を測定した結果、99%であった。

[0455] (実施例167)

実施例139の分離操作後の反応生成物を用いた以外は、実施例148と同様の方法によりエピスルフィド化合物を含有する反応生成物を分離した。得られた反応生成物中のエピスルフィド化合物含有量を測定した結果、99%であった。

[0456] (実施例168)

実施例1の反応終了後の反応液を、新実験科学講座（丸善株式会社）及び化学実験マニュアル（技報堂出版株式会社）に例示されている方法を参考に、カラムクロマトグラフィーにより分離し、用いた展開溶媒を溜去することで、エピスルフィド化合物を含有する反応生成物を精製した。

なお、カラムクロマトグラフィーの条件としては、充填剤、及び展開溶媒をエピスルフィド化合物の性状に合わせて選択すればよい。例えば、本実施例においては、充填剤としてシリカゲル60N（球状、中性）（関東化学株式会社製）又は活性アルミナ（和光純薬工業株式会社製）を用い、展開溶媒としてn-ヘキサンから徐々に酢酸エチルの含有量を増やした混合溶媒を用いる条件が挙げられる。

精製後の反応生成物中のエピスルフィド化合物含有量を測定した結果、99%であった。

[0457] (実施例169)

実施例111の分離操作後の反応生成物を用いた以外は、実施例168と同様の方法によりエピスルフィド化合物を含有する反応生成物を精製した。精製後の反応生成物中のエピスルフィド化合物含有量を測定した結果、99%であった。

[0458] (実施例170)

実施例112の分離操作後の反応生成物液を用いた以外は、実施例168と同様の方法によりエピスルフィド化合物を含有する反応生成物を精製した。精製後の反応生成物中のエピスルフィド化合物含有量を測定した結果、99%であった。

[0459] (実施例171)

実施例113の分離操作後の反応生成物を用いた以外は、実施例168と同様の方法によりエピスルフィド化合物を含有する反応生成物を精製した。精製後の反応生成物中のエピスルフィド化合物含有量を測定した結果、99%であった。

[0460] (実施例172)

実施例114の分離操作後の反応生成物を用いた以外は、実施例168と同様の方法によりエピスルフィド化合物を含有する反応生成物を精製した。精製後の反応生成物中のエピスルフィド化合物含有量を測定した結果、99%であった。

[0461] (実施例173)

実施例115の分離操作後の反応生成物を用いた以外は、実施例168と同様の方法によりエピスルフィド化合物を含有する反応生成物を精製した。精製後の反応生成物中のエピスルフィド化合物含有量を測定した結果、99%であった。

[0462] (実施例174)

実施例 1 1 6 の分離操作後の反応生成物を用いた以外は、実施例 1 6 8 と同様の方法によりエピスルフィド化合物を含有する反応生成物を精製した。精製後の反応生成物中のエピスルフィド化合物含有量を測定した結果、9 9 %であった。

[0463] (実施例 1 7 5)

実施例 1 1 7 の分離操作後の反応生成物を用いた以外は、実施例 1 6 8 と同様の方法によりエピスルフィド化合物を含有する反応生成物を精製した。精製後の反応生成物中のエピスルフィド化合物含有量を測定した結果、9 9 %であった。

[0464] (実施例 1 7 6)

実施例 1 1 8 の分離操作後の反応生成物を用いた以外は、実施例 1 6 8 と同様の方法によりエピスルフィド化合物を含有する反応生成物を精製した。精製後の反応生成物中のエピスルフィド化合物含有量を測定した結果、9 9 %であった。

[0465] (実施例 1 7 7)

実施例 1 1 9 の分離操作後の反応生成物を用いた以外は、実施例 1 6 8 と同様の方法によりエピスルフィド化合物を含有する反応生成物を精製した。精製後の反応生成物中のエピスルフィド化合物含有量を測定した結果、9 9 %であった。

[0466] (実施例 1 7 8)

実施例 1 2 0 の分離操作後の反応生成物を用いた以外は、実施例 1 6 8 と同様の方法によりエピスルフィド化合物を含有する反応生成物を精製した。精製後の反応生成物中のエピスルフィド化合物含有量を測定した結果、9 9 %であった。

[0467] (実施例 1 7 9)

実施例 1 2 1 の分離操作後の反応生成物を用いた以外は、実施例 1 6 8 と同様の方法によりエピスルフィド化合物を含有する反応生成物を精製した。精製後の反応生成物中のエピスルフィド化合物含有量を測定した結果、9 9 %であった。

%であった。

[0468] (実施例 180)

実施例 122 の分離操作後の反応生成物を用いた以外は、実施例 168 と同様の方法によりエピスルフィド化合物を含有する反応生成物を精製した。精製後の反応生成物中のエピスルフィド化合物含有量を測定した結果、99%であった。

[0469] (実施例 181)

実施例 123 の分離操作後の反応生成物を用いた以外は、実施例 168 と同様の方法によりエピスルフィド化合物を含有する反応生成物を精製した。精製後の反応生成物中のエピスルフィド化合物含有量を測定した結果、99%であった。

[0470] (実施例 182)

実施例 124 の分離操作後の反応生成物を用いた以外は、実施例 168 と同様の方法によりエピスルフィド化合物を含有する反応生成物を精製した。精製後の反応生成物中のエピスルフィド化合物含有量を測定した結果、99%であった。

[0471] (実施例 183)

実施例 126 の分離操作後の反応生成物を用いた以外は、実施例 168 と同様の方法によりエピスルフィド化合物を含有する反応生成物を精製した。精製後の反応生成物中のエピスルフィド化合物含有量を測定した結果、99%であった。

[0472] (実施例 184)

実施例 127 の分離操作後の反応生成物を用いた以外は、実施例 168 と同様の方法によりエピスルフィド化合物を含有する反応生成物を精製した。精製後の反応生成物中のエピスルフィド化合物含有量を測定した結果、99%であった。

[0473] (実施例 185)

実施例 128 の分離操作後の反応生成物を用いた以外は、実施例 168 と

同様の方法によりエピスルフィド化合物を含有する反応生成物を精製した。精製後の反応生成物中のエピスルフィド化合物含有量を測定した結果、99%であった。

[0474] (実施例186)

実施例129の分離操作後の反応生成物を用いた以外は、実施例168と同様の方法によりエピスルフィド化合物を含有する反応生成物を精製した。精製後の反応生成物中のエピスルフィド化合物含有量を測定した結果、99%であった。

[0475] (実施例187)

実施例130の分離操作後の反応生成物を用いた以外は、実施例168と同様の方法によりエピスルフィド化合物を含有する反応生成物を精製した。精製後の反応生成物中のエピスルフィド化合物含有量を測定した結果、99%であった。

[0476] (実施例188)

実施例131の分離操作後の反応生成物を用いた以外は、実施例168と同様の方法によりエピスルフィド化合物を含有する反応生成物を精製した。精製後の反応生成物中のエピスルフィド化合物含有量を測定した結果、99%であった。

[0477] (実施例189)

実施例132の分離操作後の反応生成物を用いた以外は、実施例168と同様の方法によりエピスルフィド化合物を含有する反応生成物を精製した。精製後の反応生成物中のエピスルフィド化合物含有量を測定した結果、99%であった。

[0478] (実施例190)

実施例133の分離操作後の反応生成物を用いた以外は、実施例168と同様の方法によりエピスルフィド化合物を含有する反応生成物を精製した。精製後の反応生成物中のエピスルフィド化合物含有量を測定した結果、99%であった。

[0479] (実施例 191)

実施例 134 の分離操作後の反応生成物を用いた以外は、実施例 168 と同様の方法によりエピスルフィド化合物を含有する反応生成物を精製した。精製後の反応生成物中のエピスルフィド化合物含有量を測定した結果、99%であった。

[0480] (実施例 192)

実施例 135 の分離操作後の反応生成物を用いた以外は、実施例 168 と同様の方法によりエピスルフィド化合物を含有する反応生成物を精製した。精製後の反応生成物中のエピスルフィド化合物含有量を測定した結果、99%であった。

[0481] (実施例 193)

実施例 136 の分離操作後の反応生成物を用いた以外は、実施例 168 と同様の方法によりエピスルフィド化合物を含有する反応生成物を精製した。精製後の反応生成物中のエピスルフィド化合物含有量を測定した結果、99%であった。

[0482] (実施例 194)

実施例 137 の分離操作後の反応生成物を用いた以外は、実施例 168 と同様の方法によりエピスルフィド化合物を含有する反応生成物を精製した。精製後の反応生成物中のエピスルフィド化合物含有量を測定した結果、99%であった。

[0483] (実施例 195)

実施例 138 の分離操作後の反応生成物を用いた以外は、実施例 168 と同様の方法によりエピスルフィド化合物を含有する反応生成物を精製した。精製後の反応生成物中のエピスルフィド化合物含有量を測定した結果、99%であった。

[0484] (実施例 196)

実施例 139 の分離操作後の反応生成物を用いた以外は、実施例 168 と同様の方法によりエピスルフィド化合物を含有する反応生成物を精製した。

精製後の反応生成物中のエピスルフィド化合物含有量を測定した結果、99%であった。

[0485] (実施例197)

反応時間を1時間に変更した以外は、実施例4と同様の方法によりエピスルフィド化合物を製造した。その後、実施例87と同様の方法により反応生成物を分離し、得られた反応生成物を、実施例148と同様の方法により、エポキシ化合物と、エピスルフィド化合物とに分離した。

[0486] (実施例198)

反応時間を2時間に変更した以外は、実施例39と同様の方法によりエピスルフィド化合物を製造した。その後、実施例87の方法により反応生成物を分離し、得られた反応生成物を、実施例148と同様の方法により、エポキシ化合物と、エピスルフィド化合物とに分離した。

[0487] (実施例199)

反応時間を2時間に変更した以外は、実施例40と同様の方法によりエピスルフィド化合物を製造した。その後、実施例87の方法により反応生成物を分離し、得られた反応生成物を、実施例148と同様の方法により、エポキシ化合物と、エピスルフィド化合物とに分離した。

[0488] (実施例200)

反応時間を1時間に変更した以外は、実施例41と同様の方法によりエピスルフィド化合物を製造した。その後、実施例87の方法により反応生成物を分離し、得られた反応生成物を、実施例148と同様の方法により、エポキシ化合物と、エピスルフィド化合物とに分離した。

[0489] (実施例201)

反応時間を1時間に変更した以外は、実施例42と同様の方法によりエピスルフィド化合物を製造した。その後、実施例87の方法により反応生成物を分離し、得られた反応生成物を、実施例148と同様の方法により、エポキシ化合物と、エピスルフィド化合物とに分離した。

[0490] (実施例202)

反応時間を1時間に変更した以外は、実施例43と同様の方法によりエピスルフィド化合物を製造した。その後、実施例87の方法により反応生成物を分離し、得られた反応生成物を、実施例148と同様の方法により、エポキシ化合物と、エピスルフィド化合物とに分離した。

[0491] (実施例203)

反応時間を1時間に変更した以外は、実施例44と同様の方法によりエピスルフィド化合物を製造した。その後、実施例87の方法により反応生成物を分離し、得られた反応生成物を、実施例148と同様の方法により、エポキシ化合物と、エピスルフィド化合物とに分離した。

[0492] (実施例204)

反応時間を0.5時間に変更した以外は、実施例45と同様の方法によりエピスルフィド化合物を製造した。その後、実施例87の方法により反応生成物を分離し、得られた反応生成物を、実施例148と同様の方法により、エポキシ化合物と、エピスルフィド化合物とに分離した。

[0493] (実施例205)

反応時間を1時間に変更した以外は、実施例46と同様の方法によりエピスルフィド化合物を製造した。その後、実施例87の方法により反応生成物を分離し、得られた反応生成物を、実施例168と同様の方法により、エポキシ化合物と、エピスルフィド化合物とに分離した。

[0494] (実施例206)

反応時間を1時間に変更した以外は、実施例47と同様の方法によりエピスルフィド化合物を製造した。その後、実施例87の方法により反応生成物を分離し、得られた反応生成物を、実施例168と同様の方法により、エポキシ化合物と、エピスルフィド化合物とに分離した。

[0495] (実施例207)

反応時間を1時間に変更した以外は、実施例48と同様の方法によりエピスルフィド化合物を製造した。その後、実施例87の方法により反応生成物を分離し、得られた反応生成物を、実施例168と同様の方法により、エポ

キシ化合物と、エピスルフィド化合物とに分離した。

[0496] (実施例 208)

反応時間を 2 時間に変更した以外は、実施例 49 と同様の方法によりエピスルフィド化合物を製造した。その後、実施例 87 の方法により反応生成物を分離し、得られた反応生成物を、実施例 168 と同様の方法により、エポキシ化合物と、エピスルフィド化合物とに分離した。

[0497] (実施例 209)

反応時間を 1 時間に変更した以外は、実施例 50 と同様の方法によりエピスルフィド化合物を製造した。その後、実施例 87 の方法により反応生成物を分離し、得られた反応生成物を、実施例 168 と同様の方法により、エポキシ化合物と、エピスルフィド化合物とに分離した。

[0498] (実施例 210)

反応時間を 1 時間に変更した以外は、実施例 51 と同様の方法によりエピスルフィド化合物を製造した。その後、実施例 87 の方法により反応生成物を分離し、得られた反応生成物を、実施例 168 と同様の方法により、エポキシ化合物と、エピスルフィド化合物とに分離した。

[0499] (実施例 211)

反応時間を 1 時間に変更した以外は、実施例 52 と同様の方法によりエピスルフィド化合物を製造した。その後、実施例 87 の方法により反応生成物を分離し、得られた反応生成物を、実施例 168 と同様の方法により、エポキシ化合物と、エピスルフィド化合物とに分離した。

[0500] (実施例 212)

反応時間を 2 時間に変更した以外は、実施例 53 と同様の方法によりエピスルフィド化合物を製造した。その後、実施例 87 の方法により反応生成物を分離し、得られた反応生成物を、実施例 168 と同様の方法により、エポキシ化合物と、エピスルフィド化合物とに分離した。

[0501] (実施例 213)

反応時間を 2 時間に変更した以外は、実施例 54 と同様の方法によりエピ

スルフィド化合物を製造した。その後、実施例 87 の方法により反応生成物を分離し、得られた反応生成物を、実施例 168 と同様の方法により、エポキシ化合物と、エピスルフィド化合物とに分離した。

[0502] (実施例 214)

反応時間を 2 時間に変更した以外は、実施例 55 と同様の方法によりエピスルフィド化合物を製造した。その後、実施例 87 の方法により反応生成物を分離し、得られた反応生成物を、実施例 168 と同様の方法により、エポキシ化合物と、エピスルフィド化合物とに分離した。

[0503] (実施例 215)

反応時間を 2 時間に変更した以外は、実施例 56 と同様の方法によりエピスルフィド化合物を製造した。その後、実施例 87 の方法により反応生成物を分離し、得られた反応生成物を、実施例 168 と同様の方法により、エポキシ化合物と、エピスルフィド化合物とに分離した。

[0504] (実施例 216)

反応時間を 4 時間に変更した以外は、実施例 65 と同様の方法によりエピスルフィド化合物を製造した。その後、実施例 87 の方法により反応生成物を分離し、得られた反応生成物を、実施例 148 と同様の方法により、エポキシ化合物と、エピスルフィド化合物とに分離した。

[0505] (実施例 217)

反応時間を 3 時間に変更した以外は、実施例 66 と同様の方法によりエピスルフィド化合物を製造した。その後、実施例 87 の方法により反応生成物を分離し、得られた反応生成物を、実施例 148 と同様の方法により、エポキシ化合物と、エピスルフィド化合物とに分離した。

[0506] (実施例 218)

反応時間を 6 時間に変更した以外は、実施例 67 と同様の方法によりエピスルフィド化合物を製造した。その後、実施例 87 の方法により反応生成物を分離し、得られた反応生成物を、実施例 148 と同様の方法により、エポキシ化合物と、エピスルフィド化合物とに分離した。

[0507] (実施例 2 1 9)

反応時間を 7 時間に変更した以外は、実施例 6 8 と同様の方法によりエピスルフィド化合物を製造した。その後、実施例 8 7 の方法により反応生成物を分離し、得られた反応生成物を、実施例 1 4 8 と同様の方法により、エポキシ化合物と、エピスルフィド化合物とに分離した。

[0508] (実施例 2 2 0)

反応時間を 5 時間に変更した以外は、実施例 6 9 と同様の方法によりエピスルフィド化合物を製造した。その後、実施例 8 7 の方法により反応生成物を分離し、得られた反応生成物を、実施例 1 6 8 と同様の方法により、エポキシ化合物と、エピスルフィド化合物とに分離した。

[0509] (実施例 2 2 1)

反応時間を 1 時間に変更した以外は、実施例 7 0 と同様の方法によりエピスルフィド化合物を製造した。その後、実施例 8 7 の方法により反応生成物を分離し、得られた反応生成物を、実施例 1 6 8 と同様の方法により、エポキシ化合物と、エピスルフィド化合物とに分離した。

[0510] (実施例 2 2 2)

反応時間を 0. 5 時間に変更した以外は、実施例 7 1 と同様の方法によりエピスルフィド化合物を製造した。その後、実施例 8 7 の方法により反応生成物を分離し、得られた反応生成物を、実施例 1 6 8 と同様の方法により、エポキシ化合物と、エピスルフィド化合物とに分離した。

[0511] (実施例 2 2 3)

反応時間を 5 時間に変更した以外は、実施例 7 2 と同様の方法によりエピスルフィド化合物を製造した。その後、実施例 8 7 の方法により反応生成物を分離し、得られた反応生成物を、実施例 1 6 8 と同様の方法により、エポキシ化合物と、エピスルフィド化合物とに分離した。

[0512] (実施例 2 2 4)

反応時間を 0. 5 時間に変更した以外は、実施例 7 3 と同様の方法によりエピスルフィド化合物を製造した。その後、実施例 8 7 の方法により反応生

成物を分離し、得られた反応生成物を、実施例 1 6 8 と同様の方法により、エポキシ化合物と、エピスルフィド化合物とに分離した。

[0513] (実施例 2 2 5)

反応時間を 6 時間に変更した以外は、実施例 7 4 と同様の方法によりエピスルフィド化合物を製造した。その後、実施例 8 7 の方法により反応生成物を分離し、得られた反応生成物を、実施例 1 6 8 と同様の方法により、エポキシ化合物と、エピスルフィド化合物とに分離した。

[0514] (実施例 2 2 6)

反応時間を 1 時間に変更した以外は、実施例 7 5 と同様の方法によりエピスルフィド化合物を製造した。その後、実施例 8 7 の方法により反応生成物を分離し、得られた反応生成物を、実施例 1 4 8 と同様の方法により、エポキシ化合物と、エピスルフィド化合物とに分離した。

[0515] (実施例 2 2 7)

反応時間を 1 時間に変更した以外は、実施例 7 6 と同様の方法によりエピスルフィド化合物を製造した。その後、実施例 8 7 の方法により反応生成物を分離し、得られた反応生成物を、実施例 1 4 8 と同様の方法により、エポキシ化合物と、エピスルフィド化合物とに分離した。

[0516] (実施例 2 2 8)

反応時間を 0. 5 時間に変更した以外は、実施例 7 7 と同様の方法によりエピスルフィド化合物を製造した。その後、実施例 8 7 の方法により反応生成物を分離し、得られた反応生成物を、実施例 1 4 8 と同様の方法により、エポキシ化合物と、エピスルフィド化合物とに分離した。

[0517] (実施例 2 2 9)

反応時間を 7 時間に変更した以外は、実施例 7 8 と同様の方法によりエピスルフィド化合物を製造した。その後、実施例 8 7 の方法により反応生成物を分離し、得られた反応生成物を、実施例 1 4 8 と同様の方法により、エポキシ化合物と、エピスルフィド化合物とに分離した。

[0518] (実施例 2 3 0)

反応時間を1時間に変更した以外は、実施例79と同様の方法によりエピスルフィド化合物を製造した。その後、実施例87の方法により反応生成物を分離し、得られた反応生成物を、実施例148と同様の方法により、エポキシ化合物と、エピスルフィド化合物とに分離した。

[0519] 実施例197～230における製造結果、分離したエポキシ化合物のエポキシ化合物含有量、及び分離したエピスルフィド化合物のエピスルフィド化合物含有量を表9に示した。

[0520] [表9]

	エポキシ基反応率	エピスルフィド基収率	反応時間	エポキシ化合物含有量	エピスルフィド化合物含有量
	(%)	(%)	HR	(%)	(%)
実施例197	72	71	1	99	99
実施例198	53	50	2	99	99
実施例199	56	54	2	99	99
実施例200	71	68	1	99	99
実施例201	58	55	1	99	99
実施例202	74	72	1	99	99
実施例203	82	80	1	99	99
実施例204	71	70	0.5	99	99
実施例205	70	68	1	99	99
実施例206	80	79	1	99	99
実施例207	79	77	1	99	99
実施例208	74	73	2	99	99
実施例209	80	78	1	99	99
実施例210	68	66	1	99	99
実施例211	75	74	1	99	99
実施例212	72	70	2	99	99
実施例213	63	61	2	99	99
実施例214	66	63	2	99	99
実施例215	61	58	2	99	99
実施例216	54	51	4	99	99
実施例217	70	68	3	99	99
実施例218	57	53	6	99	99
実施例219	58	55	7	99	99
実施例220	68	66	5	99	99
実施例221	72	71	1	99	99
実施例222	79	78	0.5	99	99
実施例223	65	63	5	99	99
実施例224	80	79	0.5	99	99
実施例225	70	68	6	99	99
実施例226	53	50	1	99	99
実施例227	74	72	1	99	99
実施例228	80	78	0.5	99	99
実施例229	65	63	7	99	99
実施例230	72	70	1	99	99

[0521] (実施例231)

実施例197で反応生成物から分離されたエポキシ化合物を用いた以外は、実施例4と同様の方法により、エピスルフィド化合物を製造した。表10に示すとおり、エポキシ基反応率100%までの反応時間が2時間であることから、反応時間は特に良好と判断した。また、エピスルフィド基収率は9

5%であることから、特に良好と判断した。これら結果から、総合判定は合格とした。

[0522] (実施例232)

実施例198で反応生成物から分離されたエポキシ化合物を用いた以外は、実施例39と同様の方法により、エピスルフィド化合物を製造した。表10に示すとおり、エポキシ基反応率100%までの反応時間が6時間であることから、反応時間は特に良好と判断した。また、エピスルフィド基収率は84%であることから、良好と判断した。これら結果から、総合判定は合格とした。

[0523] (実施例233)

実施例199で反応生成物から分離されたエポキシ化合物を用いた以外は、実施例40と同様の方法により、エピスルフィド化合物を製造した。表10に示すとおり、エポキシ基反応率100%までの反応時間が6時間であることから、反応時間は特に良好と判断した。また、エピスルフィド基収率は88%であることから、良好と判断した。これら結果から、総合判定は合格とした。

[0524] (実施例234)

実施例200で反応生成物から分離されたエポキシ化合物を用いた以外は、実施例41と同様の方法により、エピスルフィド化合物を製造した。表10に示すとおり、エポキシ基反応率100%までの反応時間が2時間であることから、反応時間は特に良好と判断した。また、エピスルフィド基収率は87%であることから、良好と判断した。これら結果から、総合判定は合格とした。

[0525] (実施例235)

実施例201で反応生成物から分離されたエポキシ化合物を用いた以外は、実施例42と同様の方法により、エピスルフィド化合物を製造した。表10に示すとおり、エポキシ基反応率100%までの反応時間が3時間であることから、反応時間は特に良好と判断した。また、エピスルフィド基収率は

88%であることから、良好と判断した。これら結果から、総合判定は合格とした。

[0526] (実施例236)

実施例202で反応生成物から分離されたエポキシ化合物を用いた以外は、実施例43と同様の方法により、エピスルフィド化合物を製造した。表10に示すとおり、エポキシ基反応率100%までの反応時間が3時間であることから、反応時間は特に良好と判断した。また、エピスルフィド基収率は93%であることから、特に良好と判断した。これら結果から、総合判定は合格とした。

[0527] (実施例237)

実施例203で反応生成物から分離されたエポキシ化合物を用いた以外は、実施例44と同様の方法により、エピスルフィド化合物を製造した。表10に示すとおり、エポキシ基反応率100%までの反応時間が2時間であることから、反応時間は特に良好と判断した。また、エピスルフィド基収率は93%であることから、特に良好と判断した。これら結果から、総合判定は合格とした。

[0528] (実施例238)

実施例204で反応生成物から分離されたエポキシ化合物を用いた以外は、実施例45と同様の方法により、エピスルフィド化合物を製造した。表10に示すとおり、エポキシ基反応率100%までの反応時間が1時間であることから、反応時間は特に良好と判断した。また、エピスルフィド基収率は95%であることから、特に良好と判断した。これら結果から、総合判定は合格とした。

[0529] (実施例239)

実施例205で反応生成物から分離されたエポキシ化合物を用いた以外は、実施例46と同様の方法により、エピスルフィド化合物を製造した。表10に示すとおり、エポキシ基反応率100%までの反応時間が3時間であることから、反応時間は特に良好と判断した。また、エピスルフィド基収率は

93%であることから、特に良好と判断した。これら結果から、総合判定は合格とした。

[0530] (実施例240)

実施例206で反応生成物から分離されたエポキシ化合物を用いた以外は、実施例47と同様の方法により、エピスルフィド化合物を製造した。表10に示すとおり、エポキシ基反応率100%までの反応時間が2時間であることから、反応時間は特に良好と判断した。また、エピスルフィド基収率は95%であることから、特に良好と判断した。これら結果から、総合判定は合格とした。

[0531] (実施例241)

実施例207で反応生成物から分離されたエポキシ化合物を用いた以外は、実施例48と同様の方法により、エピスルフィド化合物を製造した。表10に示すとおり、エポキシ基反応率100%までの反応時間が2時間であることから、反応時間は特に良好と判断した。また、エピスルフィド基収率は93%であることから、特に良好と判断した。これら結果から、総合判定は合格とした。

[0532] (実施例242)

実施例208で反応生成物から分離されたエポキシ化合物を用いた以外は、実施例49と同様の方法により、エピスルフィド化合物を製造した。表10に示すとおり、エポキシ基反応率100%までの反応時間が4時間であることから、反応時間は特に良好と判断した。また、エピスルフィド基収率は95%であることから、特に良好と判断した。これら結果から、総合判定は合格とした。

[0533] (実施例243)

実施例209で反応生成物から分離されたエポキシ化合物を用いた以外は、実施例50と同様の方法により、エピスルフィド化合物を製造した。表10に示すとおり、エポキシ基反応率100%までの反応時間が2時間であることから、反応時間は特に良好と判断した。また、エピスルフィド基収率は

94%であることから、特に良好と判断した。これら結果から、総合判定は合格とした。

[0534] (実施例244)

実施例210で反応生成物から分離されたエポキシ化合物を用いた以外は、実施例51と同様の方法により、エピスルフィド化合物を製造した。表10に示すとおり、エポキシ基反応率100%までの反応時間が3時間であることから、反応時間は特に良好と判断した。また、エピスルフィド基収率は95%であることから、特に良好と判断した。これら結果から、総合判定は合格とした。

[0535] (実施例245)

実施例211で反応生成物から分離されたエポキシ化合物を用いた以外は、実施例52と同様の方法により、エピスルフィド化合物を製造した。表10に示すとおり、エポキシ基反応率100%までの反応時間が2時間であることから、反応時間は特に良好と判断した。また、エピスルフィド基収率は96%であることから、特に良好と判断した。これら結果から、総合判定は合格とした。

[0536] (実施例246)

実施例212で反応生成物から分離されたエポキシ化合物を用いた以外は、実施例53と同様の方法により、エピスルフィド化合物を製造した。表10に示すとおり、エポキシ基反応率100%までの反応時間が4時間であることから、反応時間は特に良好と判断した。また、エピスルフィド基収率は94%であることから、特に良好と判断した。これら結果から、総合判定は合格とした。

[0537] (実施例247)

実施例213で反応生成物から分離されたエポキシ化合物を用いた以外は、実施例54と同様の方法により、エピスルフィド化合物を製造した。表10に示すとおり、エポキシ基反応率100%までの反応時間が6時間であることから、反応時間は特に良好と判断した。また、エピスルフィド基収率は

92%であることから、特に良好と判断した。これら結果から、総合判定は合格とした。

[0538] (実施例248)

実施例214で反応生成物から分離されたエポキシ化合物を用いた以外は、実施例55と同様の方法により、エピスルフィド化合物を製造した。表10に示すとおり、エポキシ基反応率100%までの反応時間が5時間であることから、反応時間は特に良好と判断した。また、エピスルフィド基収率は88%であることから、良好と判断した。これら結果から、総合判定は合格とした。

[0539] (実施例249)

実施例215で反応生成物から分離されたエポキシ化合物を用いた以外は、実施例56と同様の方法により、エピスルフィド化合物を製造した。表10に示すとおり、エポキシ基反応率100%までの反応時間が6時間であることから、反応時間は特に良好と判断した。また、エピスルフィド基収率は84%であることから、良好と判断した。これら結果から、総合判定は合格とした。

[0540] (実施例250)

実施例216で反応生成物から分離されたエポキシ化合物を用いた以外は、実施例65と同様の方法により、エピスルフィド化合物を製造した。表10に示すとおり、エポキシ基反応率100%までの反応時間が12時間であることから、反応時間は良好と判断した。また、エピスルフィド基収率は84%であることから、良好と判断した。これら結果から、総合判定は合格とした。

[0541] (実施例251)

実施例217で反応生成物から分離されたエポキシ化合物を用いた以外は、実施例66と同様の方法により、エピスルフィド化合物を製造した。表10に示すとおり、エポキシ基反応率100%までの反応時間が8時間であることから、反応時間は良好と判断した。また、エピスルフィド基収率は92

%であることから、特に良好と判断した。これら結果から、総合判定は合格とした。

[0542] (実施例 2 5 2)

実施例 2 1 8 で反応生成物から分離されたエポキシ化合物を用いた以外は、実施例 6 7 と同様の方法により、エピスルフィド化合物を製造した。表 1 0 に示すとおり、エポキシ基反応率 1 0 0 % までの反応時間が 1 8 時間であることから、反応時間は良好と判断した。また、エピスルフィド基収率は 8 2 % であることから、良好と判断した。これら結果から、総合判定は合格とした。

[0543] (実施例 2 5 3)

実施例 2 1 9 で反応生成物から分離されたエポキシ化合物を用いた以外は、実施例 6 8 と同様の方法により、エピスルフィド化合物を製造した。表 1 0 に示すとおり、エポキシ基反応率 1 0 0 % までの反応時間が 2 2 時間であることから、反応時間は良好と判断した。また、エピスルフィド基収率は 8 5 % であることから、良好と判断した。これら結果から、総合判定は合格とした。

[0544] (実施例 2 5 4)

実施例 2 2 0 で反応生成物から分離されたエポキシ化合物を用いた以外は、実施例 6 9 と同様の方法により、エピスルフィド化合物を製造した。表 1 0 に示すとおり、エポキシ基反応率 1 0 0 % までの反応時間が 1 5 時間であることから、反応時間は良好と判断した。また、エピスルフィド基収率は 9 4 % であることから、特に良好と判断した。これら結果から、総合判定は合格とした。

[0545] (実施例 2 5 5)

実施例 2 2 1 で反応生成物から分離されたエポキシ化合物を用いた以外は、実施例 7 0 と同様の方法により、エピスルフィド化合物を製造した。表 1 0 に示すとおり、エポキシ基反応率 1 0 0 % までの反応時間が 2 時間であることから、反応時間は特に良好と判断した。また、エピスルフィド基収率は

95%であることから、特に良好と判断した。これら結果から、総合判定は合格とした。

[0546] (実施例256)

実施例222で反応生成物から分離されたエポキシ化合物を用いた以外は、実施例71と同様の方法により、エピスルフィド化合物を製造した。表10に示すとおり、エポキシ基反応率100%までの反応時間が1時間であることから、反応時間は特に良好と判断した。また、エピスルフィド基収率は96%であることから、特に良好と判断した。これら結果から、総合判定は合格とした。

[0547] (実施例257)

実施例223で反応生成物から分離されたエポキシ化合物を用いた以外は、実施例72と同様の方法により、エピスルフィド化合物を製造した。表10に示すとおり、エポキシ基反応率100%までの反応時間が15時間であることから、反応時間は良好と判断した。また、エピスルフィド基収率は92%であることから、特に良好と判断した。これら結果から、総合判定は合格とした。

[0548] (実施例258)

実施例224で反応生成物から分離されたエポキシ化合物を用いた以外は、実施例73と同様の方法により、エピスルフィド化合物を製造した。表10に示すとおり、エポキシ基反応率100%までの反応時間が1時間であることから、反応時間は特に良好と判断した。また、エピスルフィド基収率は96%であることから、特に良好と判断した。これら結果から、総合判定は合格とした。

[0549] (実施例259)

実施例225で反応生成物から分離されたエポキシ化合物を用いた以外は、実施例74と同様の方法により、エピスルフィド化合物を製造した。表10に示すとおり、エポキシ基反応率100%までの反応時間が18時間であることから、反応時間は良好と判断した。また、エピスルフィド基収率は9

1%であることから、特に良好と判断した。これら結果から、総合判定は合格とした。

[0550] (実施例260)

実施例226で反応生成物から分離されたエポキシ化合物を用いた以外は、実施例75と同様の方法により、エピスルフィド化合物を製造した。表10に示すとおり、エポキシ基反応率100%までの反応時間が4時間であることから、反応時間は特に良好と判断した。また、エピスルフィド基収率は84%であることから、良好と判断した。これら結果から、総合判定は合格とした。

[0551] (実施例261)

実施例227で反応生成物から分離されたエポキシ化合物を用いた以外は、実施例76と同様の方法により、エピスルフィド化合物を製造した。表10に示すとおり、エポキシ基反応率100%までの反応時間が2時間であることから、反応時間は特に良好と判断した。また、エピスルフィド基収率は93%であることから、特に良好と判断した。これら結果から、総合判定は合格とした。

[0552] (実施例262)

実施例228で反応生成物から分離されたエポキシ化合物を用いた以外は、実施例77と同様の方法により、エピスルフィド化合物を製造した。表10に示すとおり、エポキシ基反応率100%までの反応時間が1時間であることから、反応時間は特に良好と判断した。また、エピスルフィド基収率は95%であることから、特に良好と判断した。これら結果から、総合判定は合格とした。

[0553] (実施例263)

実施例229で反応生成物から分離されたエポキシ化合物を用いた以外は、実施例78と同様の方法により、エピスルフィド化合物を製造した。表10に示すとおり、エポキシ基反応率100%までの反応時間が20時間であることから、反応時間は良好と判断した。また、エピスルフィド基収率は9

2%であることから、特に良好と判断した。これら結果から、総合判定は合格とした。

[0554] (実施例264)

実施例230で反応生成物から分離されたエポキシ化合物を用いた以外は、実施例79と同様の方法により、エピスルフィド化合物を製造した。表10に示すとおり、エポキシ基反応率100%までの反応時間が2時間であることから、反応時間は特に良好と判断した。また、エピスルフィド基収率は93%であることから、特に良好と判断した。これら結果から、総合判定は合格とした。

[0555] (実施例265～279)

実施例87～102でそれぞれ得られた超純水層から、実施例148と同様の方法により、多価水酸基化合物を分離した。

[0556] (実施例280)

実施例102で得られた超純水層から、以下の手順で多価水酸基化合物を分離した。

(1) 超純水層に含有される低沸点化合物(水を含む)を、ロータリーエバポレーターを用いて溜去し、多価水酸基化合物含有粗生成物を得た。

(2) 前記(1)で得られた多価水酸基化合物含有粗生成物から、実施例168と同様の方法により、多価水酸基化合物を分離した。

[0557] (実施例281～287)

実施例103、140～145でそれぞれ得られた超純水を用いた以外は、実施例280と同様の方法により、多価水酸基化合物を分離した。

[0558] (実施例288)

実施例265で得られた多価水酸基化合物を用いた以外は、実施例1と同様の方法により、エピスルフィド化合物を製造した。表11に示すとおり、エポキシ基反応率100%までの反応時間が4時間であることから、反応時間は特に良好と判断した。また、エピスルフィド基収率は87%であることから、良好と判断した。これら結果から、総合判定は合格とした。

[0559] (実施例 289)

実施例 266 で得られた多価水酸化基化合物を用いた以外は、実施例 2 と同様の方法により、エピスルフィド化合物を製造した。表 11 に示すとおり、エポキシ基反応率 100% までの反応時間が 2 時間であることから、反応時間は特に良好と判断した。また、エピスルフィド基収率は 93% であることから、特に良好と判断した。これら結果から、総合判定は合格とした。

[0560] (実施例 290)

実施例 267 で得られた多価水酸化基化合物を用いた以外は、実施例 3 と同様の方法により、エピスルフィド化合物を製造した。表 11 に示すとおり、エポキシ基反応率 100% までの反応時間が 4 時間であることから、反応時間は特に良好と判断した。また、エピスルフィド基収率は 92% であることから、特に良好と判断した。これら結果から、総合判定は合格とした。

[0561] (実施例 291)

実施例 268 で得られた多価水酸化基化合物を用いた以外は、実施例 4 と同様の方法により、エピスルフィド化合物を製造した。表 11 に示すとおり、エポキシ基反応率 100% までの反応時間が 2 時間であることから、反応時間は特に良好と判断した。また、エピスルフィド基収率は 96% であることから、特に良好と判断した。これら結果から、総合判定は合格とした。

[0562] (実施例 292)

実施例 269 で得られた多価水酸化基化合物を用いた以外は、実施例 5 と同様の方法により、エピスルフィド化合物を製造した。表 11 に示すとおり、エポキシ基反応率 100% までの反応時間が 4 時間であることから、反応時間は特に良好と判断した。また、エピスルフィド基収率は 93% であることから、特に良好と判断した。これら結果から、同時に特に良好であることから、総合判定は合格とした。

[0563] (実施例 293)

実施例 270 で得られた多価水酸化基化合物を用いた以外は、実施例 6 と同様の方法により、エピスルフィド化合物を製造した。表 11 に示すとおり、

エポキシ基反応率100%までの反応時間が2時間であることから、反応時間は特に良好と判断した。また、エピスルフィド基収率は95%であることから、特に良好と判断した。これら結果から、総合判定は合格とした。

[0564] (実施例294)

実施例271で得られた多価水酸化基化合物を用いた以外は、実施例7と同様の方法により、エピスルフィド化合物を製造した。表11に示すとおり、エポキシ基反応率100%までの反応時間が2時間であることから、反応時間は特に良好と判断した。また、エピスルフィド基収率は93%であることから、特に良好と判断した。これら結果から、総合判定は合格とした。

[0565] (実施例295)

実施例272で得られた多価水酸化基化合物を用いた以外は、実施例8と同様の方法により、エピスルフィド化合物を製造した。表11に示すとおり、エポキシ基反応率100%までの反応時間が2時間であることから、反応時間は特に良好と判断した。また、エピスルフィド基収率は93%であることから、特に良好と判断した。これら結果から、総合判定は合格とした。

[0566] (実施例296)

実施例273で得られた多価水酸化基化合物を用いた以外は、実施例9と同様の方法により、エピスルフィド化合物を製造した。表11に示すとおり、エポキシ基反応率100%までの反応時間が3時間であることから、反応時間は特に良好と判断した。また、エピスルフィド基収率は92%であることから、特に良好と判断した。これら結果から、総合判定は合格とした。

[0567] (実施例297)

実施例274で得られた多価水酸化基化合物を用いた以外は、実施例10と同様の方法により、エピスルフィド化合物を製造した。表11に示すとおり、エポキシ基反応率100%までの反応時間が20時間であることから、反応時間は良好と判断した。また、エピスルフィド基収率は81%であることから、良好と判断した。これら結果から、同時に良好であることから、総合判定は合格とした。

[0568] (実施例 298)

実施例 275 で得られた多価水酸化基化合物を用いた以外は、実施例 11 と同様の方法により、エピスルフィド化合物を製造した。表 11 に示すとおり、エポキシ基反応率 100% までの反応時間が 7 時間であることから、反応時間は良好と判断した。また、エピスルフィド基収率は 89% であることから、良好と判断した。これら結果から、総合判定は合格とした。

[0569] (実施例 299)

実施例 276 で得られた多価水酸化基化合物を用いた以外は、実施例 12 と同様の方法により、エピスルフィド化合物を製造した。表 11 に示すとおり、エポキシ基反応率 100% までの反応時間が 12 時間であることから、反応時間は良好と判断した。また、エピスルフィド基収率は 86% であることから、良好と判断した。これら結果から、総合判定は合格とした。

[0570] (実施例 300)

実施例 277 で得られた多価水酸化基化合物を用いた以外は、実施例 13 と同様の方法により、エピスルフィド化合物を製造した。表 11 に示すとおり、エポキシ基反応率 100% までの反応時間が 12 時間であることから、反応時間は良好と判断した。また、エピスルフィド基収率は 84% であることから、良好と判断した。これら結果から、総合判定は合格とした。

[0571] (実施例 301)

実施例 278 で得られた多価水酸化基化合物を用いた以外は、実施例 14 と同様の方法により、エピスルフィド化合物を製造した。表 11 に示すとおり、エポキシ基反応率 100% までの反応時間が 15 時間であることから、反応時間は良好と判断した。また、エピスルフィド基収率は 85% であることから、良好と判断した。これら結果から、総合判定は合格とした。

[0572] (実施例 302)

実施例 279 で得られた多価水酸化基化合物を用いた以外は、実施例 15 と同様の方法により、エピスルフィド化合物を製造した。表 11 に示すとおり、エポキシ基反応率 100% までの反応時間が 19 時間であることから、反

応時間は良好と判断した。また、エピスルフィド基収率は83%であることから、良好と判断した。これら結果から、総合判定は合格とした。

[0573] (実施例303)

実施例280で得られた多価水酸化基化合物を用いた以外は、実施例16と同様の方法により、エピスルフィド化合物を製造した。表11に示すとおり、エポキシ基反応率100%までの反応時間が20時間であることから、反応時間は良好と判断した。また、エピスルフィド基収率は82%であることから、良好と判断した。これら結果から、総合判定は合格とした。

[0574] (実施例304)

実施例281で得られた多価水酸化基化合物を用いた以外は、実施例17と同様の方法により、エピスルフィド化合物を製造した。表11に示すとおり、エポキシ基反応率100%までの反応時間が23時間であることから、反応時間は良好と判断した。また、エピスルフィド基収率は81%であることから、良好と判断した。これら結果から、総合判定は合格とした。

[0575] (実施例305)

実施例282で得られた多価水酸化基化合物を用いた以外は、実施例80と同様の方法により、エピスルフィド化合物を製造した。表11に示すとおり、エポキシ基反応率100%までの反応時間が9時間であることから、反応時間は良好と判断した。また、エピスルフィド基収率は89%であることから、良好と判断した。これら結果から、総合判定は合格とした。

[0576] (実施例306)

実施例283で得られた多価水酸化基化合物を用いた以外は、実施例81と同様の方法により、エピスルフィド化合物を製造した。表11に示すとおり、エポキシ基反応率100%までの反応時間が12時間であることから、反応時間は良好と判断した。また、エピスルフィド基収率は87%であることから、良好と判断した。これら結果から、総合判定は合格とした。

[0577] (実施例307)

実施例284で得られた多価水酸化基化合物を用いた以外は、実施例82と

同様の方法により、エピスルフィド化合物を製造した。表 1 1 に示すとおり、エポキシ基反応率 1 0 0 % までの反応時間が 1 2 時間であることから、反応時間は良好と判断した。また、エピスルフィド基収率は 8 5 % であることから、良好と判断した。これら結果から、総合判定は合格とした。

[0578] (実施例 3 0 8)

実施例 2 8 5 で得られた多価水酸基化合物を用いた以外は、実施例 8 3 と同様の方法により、エピスルフィド化合物を製造した。表 1 1 に示すとおり、エポキシ基反応率 1 0 0 % までの反応時間が 1 6 時間であることから、反応時間は良好と判断した。また、エピスルフィド基収率は 8 3 % であることから、良好と判断した。これら結果から、総合判定は合格とした。

[0579] (実施例 3 0 9)

実施例 2 8 6 で得られた多価水酸基化合物を用いた以外は、実施例 8 4 と同様の方法により、エピスルフィド化合物を製造した。表 1 1 に示すとおり、エポキシ基反応率 1 0 0 % までの反応時間が 2 0 時間であることから、反応時間は良好と判断した。また、エピスルフィド基収率は 8 2 % であることから、良好と判断した。これら結果から、総合判定は合格とした。

[0580] (実施例 3 1 0)

実施例 2 8 7 で得られた多価水酸基化合物を用いた以外は、実施例 8 5 と同様の方法により、エピスルフィド化合物を製造した。表 1 1 に示すとおり、エポキシ基反応率 1 0 0 % までの反応時間が 2 3 時間であることから、反応時間は良好と判断した。また、エピスルフィド基収率は 8 1 % であることから、良好と判断した。これら結果から、総合判定は合格とした。

[0581] (実施例 3 1 1 ~ 3 1 3)

実施例 5 7 ~ 5 9 でそれぞれ得られた反応液を用いた以外は、実施例 1 4 8 と同様の方法により蒸留残渣を得た。

[0582] (実施例 3 1 4)

実施例 2 6 5 で多価水酸基化合物を分離したときに得られた蒸留残渣を用い、以下の手順でチア化剤を再生した。

(1) 蒸留残渣に沸騰した超純水（和光純薬株式会社製）を加え、飽和溶液とした。

(2) 前記(1)の飽和溶液を室温まで冷却し、チア化剤の硫黄原子が酸素原子に置換されて生成した化合物とチア化剤の混合物を析出させ、濾過することで、回収した。

(3) 前記(2)のチア化剤の硫黄原子が酸素原子に置換されて生成した化合物とチア化剤の混合物を用い、

「Faming Zhuanli Shenqing Gongkai Shuomingshu (2009), CN 101602702」に記載の方法に従い、再生チア化剤を得た。

(4) 得られた再生チア化剤の純度を、上述の方法に従い測定した結果、99%であった。

[0583] (実施例315～330)

実施例266～281それぞれで多価水酸基化合物を分離したときに得られた蒸留残渣を用いた以外は、実施例314と同様の手法により再生チア化剤を得た。いずれの場合も、得られた再生チア化剤の純度は、99%であった。

[0584] (実施例331)

実施例311で得られた蒸留残渣を用い、以下の手順でチア化剤を再生した。

(1) 蒸留残渣に沸騰した超純水（和光純薬株式会社製）を加え、飽和溶液とした。

(2) 前記(1)の飽和溶液を室温まで冷却し、チア化剤の硫黄原子が酸素原子に置換されて生成した化合物とチア化剤の混合物を析出させ、濾過することで、回収した。

(3) 2,4-ビス(メチルチオ)-1,3,2,4-ジチアジホスフェタン-2,4-ジスルフィドを、「Encyclopedia of Reagents for Organic Synthesis (John W

iley and Sons社製)」に記載の方法に従い、製造した。

(4) 前記(2)の混合物及び(3)の化合物を、1,4-ジオキサン(和光純薬株式会社製)及び超純水(和光純薬株式会社製)の混合溶媒に溶解した。

(5) マグネチックスターラー上に、オイル及びスターラーの入ったオイルバスを載せ、オイルの温度が80℃となるように設定した。

(6) 前記(4)の溶液、及び攪拌子をフラスコに入れ、混合攪拌し、オイルバスに漬けた。

(7) 30時間経過後、前記(6)のフラスコをオイルバスから出し、室温まで冷却した。

(8) 前記(7)のフラスコに、酢酸エチル(和光純薬株式会社製)及び超純水(和光純薬株式会社製)を加え、混合攪拌した後、酢酸エチル層、及び超純水層が層分離するまで静置した。

(9) 超純水層を分離した後、超純水層に含有される低沸点化合物(水を含む)を、ロータリーエバポレーターを用いて溜去し、粗再生チア化剤を得た。

(10) 粗再生チア化剤に、沸騰した超純水(和光純薬株式会社製)を加え、飽和溶液とした。

(11) 前記(10)の飽和溶液を室温まで冷却し、再生チア化剤を析出させ、濾過することで、再生チア化剤を得た。

(12) 得られた再生チア化剤の純度を、上述の方法に従い測定した結果、99%であった。

[0585] (実施例332、333)

実施例312、313それぞれで得られた蒸留残渣を用いた以外は、実施例331と同様の手法により再生チア化剤を得た。いずれの場合も、得られた再生チア化剤の純度は、99%であった。

[0586] (実施例334)

実施例314で得られた再生チア化剤を用いた以外は、実施例1と同様の

方法により、エピスルフィド化合物を製造した。表 1 2 に示すとおり、エポキシ基反応率 1 0 0 % までの反応時間が 4 時間であることから、反応時間は特に良好と判断した。また、エピスルフィド基収率は 8 7 % であることから、良好と判断した。これら結果から、総合判定は合格とした。

[0587] (実施例 3 3 5)

実施例 3 1 5 で得られた再生チア化剤を用いた以外は、実施例 2 と同様の方法により、エピスルフィド化合物を製造した。表 1 2 に示すとおり、エポキシ基反応率 1 0 0 % までの反応時間が 2 時間であることから、反応時間は特に良好と判断した。また、エピスルフィド基収率は 9 4 % であることから、特に良好と判断した。これら結果から、総合判定は合格とした。

[0588] (実施例 3 3 6)

実施例 3 1 6 で得られた再生チア化剤を用いた以外は、実施例 3 と同様の方法により、エピスルフィド化合物を製造した。表 1 2 に示すとおり、エポキシ基反応率 1 0 0 % までの反応時間が 4 時間であることから、反応時間は特に良好と判断した。また、エピスルフィド基収率は 9 2 % であることから、特に良好と判断した。これら結果から、総合判定は合格とした。

[0589] (実施例 3 3 7)

実施例 3 1 7 で得られた再生チア化剤を用いた以外は、実施例 4 と同様の方法により、エピスルフィド化合物を製造した。表 1 2 に示すとおり、エポキシ基反応率 1 0 0 % までの反応時間が 2 時間であることから、反応時間は特に良好と判断した。また、エピスルフィド基収率は 9 5 % であることから、特に良好と判断した。これら結果から、総合判定は合格とした。

[0590] (実施例 3 3 8)

実施例 3 1 8 で得られた再生チア化剤を用いた以外は、実施例 5 と同様の方法により、エピスルフィド化合物を製造した。表 1 2 に示すとおり、エポキシ基反応率 1 0 0 % までの反応時間が 4 時間であることから、反応時間は特に良好と判断した。また、エピスルフィド基収率は 9 2 % であることから、特に良好と判断した。これら結果から、総合判定は合格とした。

[0591] (実施例 3 3 9)

実施例 3 1 9 で得られた再生チア化剤を用いた以外は、実施例 6 と同様の方法により、エピスルフィド化合物を製造した。表 1 2 に示すとおり、エポキシ基反応率 1 0 0 % までの反応時間が 2 時間であることから、反応時間は特に良好と判断した。また、エピスルフィド基収率は 9 6 % であることから、特に良好と判断した。これら結果から、総合判定は合格とした。

[0592] (実施例 3 4 0)

実施例 3 2 0 で得られた再生チア化剤を用いた以外は、実施例 7 と同様の方法により、エピスルフィド化合物を製造した。表 1 2 に示すとおり、エポキシ基反応率 1 0 0 % までの反応時間が 2 時間であることから、反応時間は特に良好と判断した。また、エピスルフィド基収率は 9 2 % であることから、特に良好と判断した。これら結果から、総合判定は合格とした。

[0593] (実施例 3 4 1)

実施例 3 2 1 で得られた再生チア化剤を用いた以外は、実施例 8 と同様の方法により、エピスルフィド化合物を製造した。表 1 2 に示すとおり、エポキシ基反応率 1 0 0 % までの反応時間が 2 時間であることから、反応時間は特に良好と判断した。また、エピスルフィド基収率は 9 4 % であることから、特に良好と判断した。これら結果から、総合判定は合格とした。

[0594] (実施例 3 4 2)

実施例 3 2 2 で得られた再生チア化剤を用いた以外は、実施例 9 と同様の方法により、エピスルフィド化合物を製造した。表 1 2 に示すとおり、エポキシ基反応率 1 0 0 % までの反応時間が 3 時間であることから、反応時間は特に良好と判断した。また、エピスルフィド基収率は 9 2 % であることから、特に良好と判断した。これら結果から、総合判定は合格とした。

[0595] (実施例 3 4 3)

実施例 3 2 3 で得られた再生チア化剤を用いた以外は、実施例 1 0 と同様の方法により、エピスルフィド化合物を製造した。表 1 2 に示すとおり、エポキシ基反応率 1 0 0 % までの反応時間が 2 0 時間であることから、反応時

間は良好と判断した。また、エピスルフィド基収率は81%であることから、良好と判断した。これら結果から、総合判定は合格とした。

[0596] (実施例344)

実施例324で得られた再生チア化剤を用いた以外は、実施例11と同様の方法により、エピスルフィド化合物を製造した。表12に示すとおり、エポキシ基反応率100%までの反応時間が7時間であることから、反応時間は良好と判断した。また、エピスルフィド基収率は89%であることから、良好と判断した。これら結果から、総合判定は合格とした。

[0597] (実施例345)

実施例325で得られた再生チア化剤を用いた以外は、実施例12と同様の方法により、エピスルフィド化合物を製造した。表12に示すとおり、エポキシ基反応率100%までの反応時間が12時間であることから、反応時間は良好と判断した。また、エピスルフィド基収率は86%であることから、良好と判断した。これら結果から、総合判定は合格とした。

[0598] (実施例346)

実施例326で得られた再生チア化剤を用いた以外は、実施例13と同様の方法により、エピスルフィド化合物を製造した。表12に示すとおり、エポキシ基反応率100%までの反応時間が12時間であることから、反応時間は良好と判断した。また、エピスルフィド基収率は83%であることから、良好と判断した。これら結果から、総合判定は合格とした。

[0599] (実施例347)

実施例327で得られた再生チア化剤を用いた以外は、実施例14と同様の方法により、エピスルフィド化合物を製造した。表12に示すとおり、エポキシ基反応率100%までの反応時間が15時間であることから、反応時間は良好と判断した。また、エピスルフィド基収率は85%であることから、良好と判断した。これら結果から、総合判定は合格とした。

[0600] (実施例348)

実施例328で得られた再生チア化剤を用いた以外は、実施例15と同様

の方法により、エピスルフィド化合物を製造した。表 1 2 に示すとおり、エポキシ基反応率 1 0 0 % までの反応時間が 1 9 時間であることから、反応時間は良好と判断した。また、エピスルフィド基収率は 8 2 % であることから、良好と判断した。これら結果から、総合判定は合格とした。

[0601] (実施例 3 4 9)

実施例 3 3 1 で得られた再生チア化剤を用いた以外は、実施例 5 7 と同様の方法により、エピスルフィド化合物を製造した。表 1 2 に示すとおり、エポキシ基反応率 1 0 0 % までの反応時間が 4 時間であることから、反応時間は特に良好と判断した。また、エピスルフィド基収率は 8 8 % であることから、良好と判断した。これら結果から、総合判定は合格とした。

[0602] (実施例 3 5 0)

実施例 3 3 2 で得られた再生チア化剤を用いた以外は、実施例 5 8 と同様の方法により、エピスルフィド化合物を製造した。表 1 2 に示すとおり、エポキシ基反応率 1 0 0 % までの反応時間が 4 時間であることから、反応時間は特に良好と判断した。また、エピスルフィド基収率は 8 8 % であることから、良好と判断した。これら結果から、総合判定は合格とした。

[0603] (実施例 3 5 1)

実施例 3 3 3 で得られた再生チア化剤を用いた以外は、実施例 5 9 と同様の方法により、エピスルフィド化合物を製造した。表 1 2 に示すとおり、エポキシ基反応率 1 0 0 % までの反応時間が 4 時間であることから、反応時間は特に良好と判断した。また、エピスルフィド基収率は 8 8 % であることから、良好と判断した。これら結果から、反応時間が特に良好であり、エピスルフィド基収率が良好であることから、総合判定は合格とした。

[0604] (実施例 3 5 2)

実施例 2 6 5 で多価水酸化化合物を分離したときに得られた蒸留残渣を用い、以下の手順でチア化剤を分離した。

(1) 蒸留残渣に沸騰した超純水 (和光純薬株式会社製) を加え、飽和溶液とした。

(2) 前記(1)の飽和溶液を室温まで冷却し、チア化剤の硫黄原子が酸素原子に置換されて生成した化合物とチア化剤の混合物を析出させ、濾過することで、回収した。

(3) 前記(2)のチア化剤の硫黄原子が酸素原子に置換されて生成した化合物とチア化剤の混合物を用い、上記(1)、(2)の操作を繰返し、チア化剤を分離した。

(4) 得られたチア化剤の純度を、上述の方法に従い測定した結果、99%であった。

[0605] (実施例353~355)

実施例311~313で多価水酸化化合物を分離したときに得られた蒸留残渣を用いた以外は、実施例352と同様の方法によりチア化剤を分離した。いずれの場合も、得られたチア化剤の純度は、99%であった。

[0606] (実施例356)

実施例352で得られたチア化剤を用いた以外は、実施例4と同様の方法により、エピスルフィド化合物を製造した。その結果、エポキシ基反応率100%までの反応時間が2時間であることから、反応時間は特に良好と判断した。また、エピスルフィド基収率は95%であることから、特に良好と判断した。これら結果から、総合判定は合格とした。

[0607] (実施例357)

実施例353で得られたチア化剤を用いた以外は、実施例57と同様の方法により、エピスルフィド化合物を製造した。その結果、エポキシ基反応率100%までの反応時間が4時間であることから、反応時間は特に良好と判断した。また、エピスルフィド基収率は87%であることから、良好と判断した。これら結果から、総合判定は合格とした。

[0608] (実施例358)

実施例354で得られたチア化剤を用いた以外は、実施例58と同様の方法により、エピスルフィド化合物を製造した。その結果、エポキシ基反応率100%までの反応時間が4時間であることから、反応時間は特に良好と判

断した。また、エピスルフィド基収率は88%であることから、良好と判断した。これら結果から、総合判定は合格とした。

[0609] (実施例359)

実施例355で得られたチア化剤を用いた以外は、実施例59と同様の方法により、エピスルフィド化合物を製造した。その結果、エポキシ基反応率100%までの反応時間が2時間であることから、反応時間は特に良好と判断した。また、エピスルフィド基収率は87%であることから、良好と判断した。これら結果から、総合判定は合格とした。

[0610]

[表10]

	HV (mg/g)	WPE (g/eq)	α	β	ϵ	反応温度 (°C)	エポキシ基反応率 (%)		エピスルフィド基収率 (%)		反応時間 判定	総合判定
							エポキシ基反応率 (%)	エピスルフィド基収率 (%)	判定	判定		
実施例231	1245	150	2	0.28	—	20	100	95	AA	2	AA	AA
実施例232	1078	44	2	0.10	—	0	100	84	A	6	AA	A
実施例233	1245	58	2	0.28	—	20	100	88	A	6	AA	A
実施例234	1475	72	2	0.25	—	20	100	87	A	2	AA	A
実施例235	1245	86	2	0.28	—	20	100	88	A	3	AA	A
実施例236	1475	100	2	0.29	—	20	100	93	AA	3	AA	AA
実施例237	1245	114	2	0.28	—	20	100	93	AA	2	AA	AA
実施例238	1245	128	2	0.3	—	20	100	95	AA	1	AA	AA
実施例239	1245	156	2	0.28	—	20	100	93	AA	3	AA	AA
実施例240	1245	184	2	0.28	—	20	100	95	AA	2	AA	AA
実施例241	1245	212	2	0.28	—	20	100	93	AA	2	AA	AA
実施例242	1245	240	2	0.28	—	20	100	95	AA	4	AA	AA
実施例243	1245	268	2	0.28	—	20	100	94	AA	2	AA	AA
実施例244	1245	297	2	0.3	—	20	100	95	AA	3	AA	AA
実施例245	1245	189	2	0.21	—	20	100	96	AA	2	AA	AA
実施例246	1245	205	2	0.21	—	20	100	94	AA	4	AA	AA
実施例247	1245	480	2	0.08	—	60	100	92	AA	6	AA	AA
実施例248	1245	560	2	0.05	—	80	100	88	A	5	AA	A
実施例249	1245	650	2	0.04	—	80	100	84	A	6	AA	A
実施例250	1245	84	2	0.28	—	20	100	84	A	12	A	A
実施例251	1245	98	2	0.28	—	20	100	92	AA	8	A	A
実施例252	1245	112	2	0.28	—	20	100	82	A	18	A	A
実施例253	1245	126	2	0.28	—	20	100	85	A	22	A	A
実施例254	1245	131	2	0.28	—	20	100	94	AA	15	A	A
実施例255	1245	91	2	0.28	—	20	100	95	AA	2	AA	AA
実施例256	1245	181	2	0.28	—	20	100	96	AA	1	AA	AA
実施例257	1245	191	2	0.3	—	20	100	92	AA	15	A	A
実施例258	1245	174	2	0.28	—	20	100	96	AA	1	AA	AA
実施例259	1245	184	2	0.28	—	20	100	91	AA	18	A	A
実施例260	1245	70	2	0.28	—	20	100	84	A	4	AA	A
実施例261	1245	98	2	0.28	—	20	100	93	AA	2	AA	AA
実施例262	1245	114	2	0.28	—	20	100	95	AA	1	AA	AA
実施例263	1245	124	2	0.28	—	20	100	92	AA	20	A	A
実施例264	1245	142	2	0.28	—	20	100	93	AA	2	AA	AA

[表11]

	HV (m g / g)	WPE (g / e q)	α	β	ϵ	反応温度 (°C)		エポキシ基反応率 (%)		エピスルフィド基収率 (%)		反応時間 判定		総合判定
						判定	判定	判定	判定	H R	判定			
実施例288	1808	150	2	0.29	—	20	100	87	A	4	AA	A		
実施例289	1475	150	2	0.29	—	20	100	93	AA	2	AA	AA		
実施例290	1475	150	2	0.29	—	20	100	92	AA	4	AA	AA		
実施例291	1245	150	2	0.28	—	20	100	96	AA	2	AA	AA		
実施例292	1245	150	2	0.24	—	20	100	93	AA	4	AA	AA		
実施例293	1245	150	2	0.26	—	20	100	95	AA	2	AA	AA		
実施例294	1078	150	2	0.20	—	20	100	93	AA	2	AA	AA		
実施例295	950	150	2	0.12	—	20	100	93	AA	2	AA	AA		
実施例296	767	150	2	0.08	—	20	100	92	AA	3	AA	AA		
実施例297	1828	150	2	0.12	—	20	100	81	A	20	A	A		
実施例298	1057	150	2	0.2	—	20	100	89	A	7	A	A		
実施例299	747	150	2	0.17	—	20	100	86	A	12	A	A		
実施例300	578	150	2	0.17	—	20	100	84	A	12	A	A		
実施例301	471	150	2	0.15	—	20	100	85	A	15	A	A		
実施例302	397	150	2	0.13	—	20	100	83	A	19	A	A		
実施例303	303	150	2	0.11	—	20	100	82	A	20	A	A		
実施例304	205	150	2	0.1	—	20	100	81	A	23	A	A		
実施例305	1838	150	2	0.38	0.08	20	100	89	A	9	A	A		
実施例306	1844	150	2	0.40	0.08	20	100	87	A	12	A	A		
実施例307	1848	150	2	0.38	0.08	20	100	85	A	12	A	A		
実施例308	1851	150	2	0.42	0.06	20	100	83	A	16	A	A		
実施例309	1557	150	2	0.40	0.07	20	100	82	A	20	A	A		
実施例310	1311	150	2	0.42	0.07	20	100	81	A	23	A	A		

[表12]

	HV (m.g/g)	WPE (g/eq)	α	β	ϵ	反応温度 (°C)		エポキシ基反応率 (%)		エピスルフィド基収率 (%)		反応時間 判定	総合判定
						判定	判定	判定	判定				
実施例334	1808	150	2	0.29	—	20	100	87	A	4	AA	A	
実施例335	1475	150	2	0.29	—	20	100	94	AA	2	AA	AA	
実施例336	1475	150	2	0.29	—	20	100	92	AA	4	AA	AA	
実施例337	1245	150	2	0.28	—	20	100	95	AA	2	AA	AA	
実施例338	1245	150	2	0.24	—	20	100	92	AA	4	AA	AA	
実施例339	1245	150	2	0.26	—	20	100	96	AA	2	AA	AA	
実施例340	1078	150	2	0.20	—	20	100	92	AA	2	AA	AA	
実施例341	950	150	2	0.12	—	20	100	94	AA	2	AA	AA	
実施例342	767	150	2	0.08	—	20	100	92	AA	3	AA	AA	
実施例343	1828	150	2	0.12	—	20	100	81	A	20	A	A	
実施例344	1057	150	2	0.2	—	20	100	89	A	7	A	A	
実施例345	747	150	2	0.17	—	20	100	86	A	12	A	A	
実施例346	578	150	2	0.17	—	20	100	83	A	12	A	A	
実施例347	471	150	2	0.15	—	20	100	85	A	15	A	A	
実施例348	397	150	2	0.13	—	20	100	82	A	19	A	A	
実施例349	1245	150	2	0.28	—	20	100	88	A	4	AA	A	
実施例350	1245	150	2	0.3	—	20	100	88	A	4	AA	A	
実施例351	1245	150	2	0.41	—	20	100	87	A	2	AA	A	

＜判定＞ AA：特に良好、A：良好、C：不良、＜総合判定＞ AA、A：合格、C：不合格

請求の範囲

- [請求項1] (A) 2個以上の水酸基を有する多価水酸化基化合物の存在下で、(B) エポキシ化合物のエポキシ基を(C) チア化剤との反応によりチア化する工程を備える、エピスルフィド化合物を製造する方法。
- [請求項2] (A) 多価水酸化基化合物の水酸基価が300～1870 mg/gである、請求項1記載の方法。
- [請求項3] (A) 多価水酸化基化合物の水酸基価が1870 mg/gを超え3000 mg/g以下である、請求項1記載の方法。
- [請求項4] (A) 多価水酸化基化合物が、水酸基を2個有する化合物である、請求項1記載の方法。
- [請求項5] (A) 多価水酸化基化合物が、水酸基を3個以上有する化合物である、請求項1記載の方法。
- [請求項6] (A) 多価水酸化基化合物の炭素数が3～20である、請求項1記載の方法。
- [請求項7] (A) 多価水酸化基化合物が、水酸基を2個有し、炭素数が3～20であり、水酸基価が300～1870 mg/gである化合物である、請求項1記載の方法。
- [請求項8] (A) 多価水酸化基化合物が、水酸基を3個有し、炭素数が4～20であり、水酸基価が300～1870 mg/gである化合物である、請求項1記載の方法。
- [請求項9] (A) 多価水酸化基化合物が、水酸基を4個以上有し、水酸基価が300～1870 mg/gである化合物である、請求項1記載の方法。
- [請求項10] (A) 多価水酸化基化合物が、鎖状、分岐状又は環状の脂肪族炭化水素基を有する化合物であり、かつ、(A) 多価水酸化基化合物に含有される2個以上の水酸基が、前記脂肪族炭化水素基中の互いに異なる炭素原子に1個ずつ結合している、請求項1記載のエピスルフィド化合物を製造する方法。
- [請求項11] (C) チア化剤が、チオシアン酸塩及びチオ尿素類からなる群より

選ばれる少なくとも1種の化合物を含む、請求項1記載の方法。

[請求項12] 下記式(1)で表される、(B)エポキシ化合物と(C)チア化剤との混合指標 α が1~10である、請求項1記載の方法。

$$\text{混合指標 } \alpha = \alpha_t / \alpha_e \quad (1)$$

α_t : チア化剤に含まれる、エピスルフィド基の生成に用いられ得る硫黄原子の物質質量 (mol)

α_e : エポキシ化合物に含まれるエポキシ基の物質質量 (mol)

[請求項13] 下記式(2)で表される、(A)多価水酸基化合物と(C)チア化剤との混合指標 β が0.010~0.500である、請求項1記載の方法。

$$\text{混合指標 } \beta = \beta_t / \beta_o \quad (2)$$

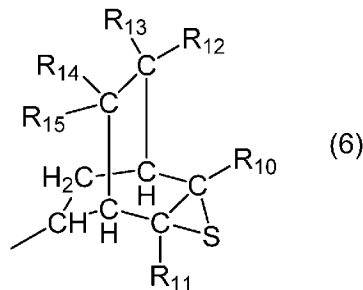
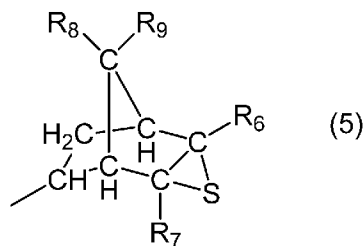
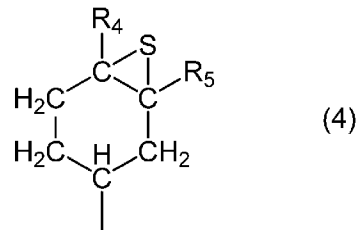
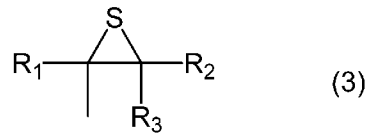
β_t : チア化剤の質量 (g)

β_o : 多価水酸基化合物の質量 (g)

[請求項14] (B)エポキシ化合物のエポキシ当量が、55~700 g/eq.である、請求項1記載の方法。

[請求項15] (B)エポキシ化合物が、下記式(3)、(4)、(5)又は(6)で表される部分構造を有する、請求項1記載の方法。

[化1]



[式中、 R_1 、 R_2 、 R_3 、 R_4 、 R_5 、 R_6 、 R_7 、 R_8 、 R_9 、 R_{10} 、 R_{11} 、 R_{12} 、 R_{13} 、 R_{14} 、及び R_{15} はそれぞれ独立に、水素原子又は炭素数1～10の有機基を示す。]

[請求項16] (B) エポキシ化合物のエポキシ基をチア化する前記工程の反応液から未反応のエポキシ化合物を回収する工程と、
回収されたエポキシ化合物を含む (B) エポキシ化合物のエポキシ基を (C) チア化剤との反応によりチア化する工程と、
を更に備える、請求項1記載の方法。

[請求項17] (B) エポキシ化合物のエポキシ基をチア化する前記工程の反応液から多価水酸基化合物を回収する工程と、
回収された多価水酸基化合物を含む (A) 多価水酸基化合物の存在

下で、(B) エポキシ化合物のエポキシ基を (C) チア化剤との反応によりチア化する工程と、
を更に備える、請求項 1 記載の方法。

[請求項18] (B) エポキシ化合物のエポキシ基をチア化する前記工程において (C) チア化剤の硫黄原子が酸素原子に置換されて生成した化合物から、チア化剤を再生する工程を更に備える、
請求項 1 に記載の方法。

[請求項19] (B) エポキシ化合物のエポキシ基をチア化する前記工程の反応液から回収された未反応のチア化剤を含む (C) チア化剤との反応により (B) エポキシ化合物のエポキシ基をチア化する工程を更に備える、
請求項 1 に記載の方法。

[請求項20] 再生されたチア化剤を含む (C) チア化剤との反応により (B) エポキシ化合物のエポキシ基をチア化する工程を更に備える、請求項 18 記載の方法。

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2012/060705

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

C07D331/02 (2006.01) i

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

C07D331/02

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

Jitsuyo Shinan Koho	1922-1996	Jitsuyo Shinan Toroku Koho	1996-2012
Kokai Jitsuyo Shinan Koho	1971-2012	Toroku Jitsuyo Shinan Koho	1994-2012

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

CA/REGISTRY (STN)

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	DAS, B. et al, An efficient catalyst-free synthesis of thiiranes from oxiranes using polyethylene glycol as the reaction medium, Tetrahedron Letters, 2006, Vol.47, No.48, p. 8471-8473 Scheme 1, Table 1, p.8471	1, 2, 4, 6, 7, 10-20
A		3, 5, 8, 9
A	JP 2000-186086 A (Mitsubishi Gas Chemical Co., Inc.), 04 July 2000 (04.07.2000), claims; paragraph [0020]; examples (Family: none)	1-20
A	JP 2000-186087 A (Mitsubishi Gas Chemical Co., Inc.), 04 July 2000 (04.07.2000), claims; paragraph [0020]; examples (Family: none)	1-20

 Further documents are listed in the continuation of Box C. See patent family annex.

* Special categories of cited documents:

"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance

"E" earlier application or patent but published on or after the international filing date

"L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)

"O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means

"P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed

"T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention

"X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone

"Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art

"&" document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search
21 May, 2012 (21.05.12)Date of mailing of the international search report
29 May, 2012 (29.05.12)Name and mailing address of the ISA/
Japanese Patent Office

Authorized officer

Facsimile No.

Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2012/060705

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	JP 2003-342274 A (Mitsui Chemicals, Inc.), 03 December 2003 (03.12.2003), claims; paragraph [0011]; examples (Family: none)	1-20

A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (IPC)) Int.Cl. C07D331/02 (2006.01) i		
B. 調査を行った分野 調査を行った最小限資料 (国際特許分類 (IPC)) Int.Cl. C07D331/02		
最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの 日本国実用新案公報 1922-1996年 日本国公開実用新案公報 1971-2012年 日本国実用新案登録公報 1996-2012年 日本国登録実用新案公報 1994-2012年		
国際調査で使用した電子データベース (データベースの名称、調査に使用した用語) CA/REGISTRY (STN)		
C. 関連すると認められる文献		
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求項の番号
X A	DAS, B. et al, An efficient catalyst-free synthesis of thiiranes from oxiranes using polyethylene glycol as the reaction medium, Tetrahedron Letters, 2006, Vol.47, No.48, p.8471-8473 Scheme 1, Table 1, p.8471	1, 2, 4, 6, 7, 10-20 3, 5, 8, 9
<input checked="" type="checkbox"/> C欄の続きにも文献が列挙されている。 <input type="checkbox"/> パテントファミリーに関する別紙を参照。		
* 引用文献のカテゴリー 「A」特に関連のある文献ではなく、一般的な技術水準を示すもの 「E」国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの 「L」優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献 (理由を付す) 「O」口頭による開示、使用、展示等に言及する文献 「P」国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願日の後に公表された文献 「T」国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの 「X」特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの 「Y」特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの 「&」同一パテントファミリー文献		
国際調査を完了した日 21.05.2012	国際調査報告の発送日 29.05.2012	
国際調査機関の名称及びあて先 日本国特許庁 (ISA/J P) 郵便番号100-8915 東京都千代田区霞が関三丁目4番3号	特許庁審査官 (権限のある職員) 深谷 良範 電話番号 03-3581-1101 内線 3492	4 P 3852

C (続き) . 関連すると認められる文献		
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求項の番号
A	JP 2000-186086 A (三菱瓦斯化学株式会社) 2000.07.04, 特許請求の範囲, 段落【0020】, 実施例 (ファミリーなし)	1-20
A	JP 2000-186087 A (三菱瓦斯化学株式会社) 2000.07.04, 特許請求の範囲, 段落【0020】, 実施例 (ファミリーなし)	1-20
A	JP 2003-342274 A (三井化学株式会社) 2003.12.03, 特許請求の範囲, 段落【0011】, 実施例 (ファミリーなし)	1-20