

(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
2014年8月28日(28.08.2014)



(10) 国際公開番号
WO 2014/129338 A1

- (51) 国際特許分類:
C08L 15/00 (2006.01) *C08C 19/25* (2006.01)
B60C 1/00 (2006.01) *C08K 3/36* (2006.01)
- (21) 国際出願番号: PCT/JP2014/052997
- (22) 国際出願日: 2014年2月10日(10.02.2014)
- (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 2013-034663 2013年2月25日(25.02.2013) JP
特願 2013-034664 2013年2月25日(25.02.2013) JP
特願 2013-034667 2013年2月25日(25.02.2013) JP
- (71) 出願人: 住友ゴム工業株式会社 (SUMITOMO RUBBER INDUSTRIES, LTD.) [JP/JP]; 〒6510072 兵庫県神戸市中央区脇浜町3丁目6番9号 Hyogo (JP).
- (72) 発明者: 伊藤 博(ITO Hiroshi); 〒6510072 兵庫県神戸市中央区脇浜町3丁目6番9号 住友ゴム工業株式会社内 Hyogo (JP). 向口 大喜(MUKOUGUCHI Daiki); 〒6510072 兵庫県神戸市中央区脇浜町3丁目6番9号 住友ゴム工業株式会社内 Hyogo (JP). 本田 慎一郎(HONDA Shinichiro); 〒6510072 兵庫県神戸市中央区脇浜町3丁目6番9号 住友ゴム工業株式会社内 Hyogo (JP). 時宗 隆一(TOKIMUNE Ryuichi); 〒

6510072 兵庫県神戸市中央区脇浜町3丁目6番9号 住友ゴム工業株式会社内 Hyogo (JP). 西岡和幸(NISHIOKA Kazuyuki); 〒6510072 兵庫県神戸市中央区脇浜町3丁目6番9号 住友ゴム工業株式会社内 Hyogo (JP).

(74) 代理人: 特許業務法人 安富国際特許事務所 (YASUTOMI & Associates); 〒5320003 大阪府大阪市淀川区宮原3丁目5番36号 Osaka (JP).

(81) 指定国 (表示のない限り、全ての種類の国内保護が可能): AE, AG, AL, AM, AO, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BH, BN, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CL, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DK, DM, DO, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, GT, HN, HR, HU, ID, IL, IN, IR, IS, JP, KE, KG, 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, PA, PE, PG, PH, PL, PT, QA, RO, RS, RU, RW, SA, 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), ユーロパ (AM, AZ, BY, KG, KZ, RU, TJ, TM), ヨーロッパ (AL, AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HR, HU, IE, IS, IT, LT, LU, LV, MC, MK, MT, NL, NO, PL, PT, RO, RS, SE, SI, SK, SM, TR), OAPI

[続葉有]

(54) Title: PNEUMATIC TIRE

(54) 発明の名称: 空気入りタイヤ



(57) **Abstract:** Provided is a pneumatic tire having a tread that is capable of improving low fuel consumption, wet grip performance and wear resistance in a balanced manner. A pneumatic tire which has a tread that is produced using a rubber composition which contains a rubber component, silica (I) that has a nitrogen adsorption specific surface area of 100 m²/g or less, and silica (II) that has a nitrogen adsorption specific surface area of 180 m²/g or more. The content of a conjugated diene polymer (A) in 100% by mass of the rubber component is 5% by mass or more, said conjugated diene polymer (A) having a monomer unit based on a conjugated diene, a monomer unit based on a compound represented by formula (1) and a monomer unit based on a compound represented by formula (2), and at least one end of the copolymer being modified with a compound (G) described below or an alkoxysilane compound. The total content of the silica (I) and (II) relative to 100 parts by mass of the rubber component is 30-150 parts by mass, and the contents of the silica (I) and (II) satisfy the following formula. (content of silica (I)) × 0.2 ≤ (content of silica (II)) ≤ (content of silica (I)) × 6.5 Compound (G): at least one compound selected from the compound group consisting of compounds having an optionally substituted amino group and a carbonyl group and compounds having an optionally substituted amino group and a thiocarbonyl group. (In formulae (1) and (2), each of V¹ and V² represents a hydrocarbyl group having a polymerizable carbon-carbon double bond; S¹ represents a substituted silyl group; and A² represents a substituted amino group or a nitrogen-containing heterocyclic group.)

(57) 要約:

[続葉有]

WO 2014/129338 A1



(BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, KM, ML, —
MR, NE, SN, TD, TG).

補正された請求の範囲及び説明書（条約第 19
条(1)）

添付公開書類:

— 国際調査報告（条約第 21 条(3)）

低燃費性、ウェットグリップ性能及び耐摩耗性をバランス良く改善できるトレッドを有する空気入りタイヤを提供する。 ゴム成分と、窒素吸着比表面積が $100\text{ m}^2/\text{g}$ 以下のシリカ (I) と、窒素吸着比表面積が $180\text{ m}^2/\text{g}$ 以上のシリカ (II) とを含有し、前記ゴム成分 100 質量%中、共役ジエンに基づく単量体単位、下記式 (1) で表される化合物に基づく単量体単位、及び、下記式 (2) で表される化合物に基づく単量体単位を有し、下記化合物 (G) 又はアルコキシシラン化合物によって共重合体の少なくとも一端が変性されている共役ジエン系重合体 (A) の含有量が 5 質量%以上であり、前記ゴム成分 100 質量部に対する前記シリカ (I) 及び (II) の合計含有量が 30~150 質量部であり、前記シリカ (I) 及び (II) の含有量が以下の式を満たすゴム組成物を用いて作製したトレッドを有する空気入りタイヤ。 (シリカ (I) の含有量) $\times 0.2 \leq$ (シリカ (II) の含有量) $\leq$ (シリカ (I) の含有量) $\times 6.5$ 化合物 (G) : 置換基を有していてもよいアミノ基及びカルボニル基を有する化合物、並びに置換基を有していてもよいアミノ基及びチオカルボニル基を有する化合物からなる化合物群から選ばれる少なくとも 1 種の化合物。 (式 (1)、(2) 中、 V^1 及び V^2 は重合性炭素-炭素二重結合を有するヒドロカルビル基を表し、 S^1 は置換シリル基を表し、 A^2 は置換アミノ基、又は、含窒素複素環基を表す。)

明 細 書

発明の名称：空気入りタイヤ

技術分野

[0001] 本発明は、ゴム組成物を用いて作製したトレッドを有する空気入りタイヤに関するものである。

背景技術

[0002] 自動車タイヤ用のゴム組成物としては、ポリブタジエンやブタジエンスチレン共重合体などの共役ジエン系重合体と、カーボンブラックやシリカなどの充填剤とを含有するゴム組成物などが用いられている。近年、環境問題への関心の高まりから、自動車に対して低燃費化の要求が強くなっており、自動車用タイヤに用いるトレッドに対しても、低燃費性に優れることが求められている。

[0003] 低燃費性を改善する方法として、例えば、特許文献1では、アミノ基及びアルコキシ基を含有する有機ケイ素化合物で変性されたジエン系ゴム（変性ゴム）を用いる方法が提案されている。しかし、変性ゴムを使用すると、加工性が低下する傾向があるという点で改善の余地がある。また、自動車タイヤ用のトレッドに要求される性能としては、ウェットグリップ性能や耐摩耗性も挙げられるが、これらの性能も一般的に低燃費性と背反する関係にある。そのため、低燃費性、ウェットグリップ性能及び耐摩耗性をバランス良く改善する方法が求められている。

先行技術文献

特許文献

[0004] 特許文献1：特開2000-344955号公報

発明の概要

発明が解決しようとする課題

[0005] 本発明は、前記課題を解決し、低燃費性、ウェットグリップ性能及び耐摩耗性をバランス良く改善できるゴム組成物を用いて作製したトレッドを有する

空気入りタイヤ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

[0006] 第一の本発明は、ゴム成分と、窒素吸着比表面積が $100 \text{ m}^2/\text{g}$ 以下のシリカ (I) と、窒素吸着比表面積が $180 \text{ m}^2/\text{g}$ 以上のシリカ (II) とを含有し、前記ゴム成分 100 質量%中、共役ジエンに基づく単量体単位、下記式 (1) で表される化合物に基づく単量体単位、及び、下記式 (2) で表される化合物に基づく単量体単位を有し、下記化合物 (G) 又はアルコキシシラン化合物によって共重合体の少なくとも一端が変性されている共役ジエン系重合体 (A) の含有量が 5 質量%以上であり、前記ゴム成分 100 質量部に対する前記シリカ (I) 及び (II) の合計含有量が $30 \sim 150$ 質量部であり、前記シリカ (I) 及び (II) の含有量が以下の式を満たすゴム組成物を用いて作製したトレッドを有する空気入りタイヤに関する。

$$(\text{シリカ (I) の含有量}) \times 0.2 \leq (\text{シリカ (II) の含有量}) \leq (\text{シリカ (I) の含有量}) \times 6.5$$

[化1]



(式中、 V^1 は重合性炭素-炭素二重結合を有するヒドロカルビル基を表し、 S^1 は置換シリル基を表す。)

[化2]

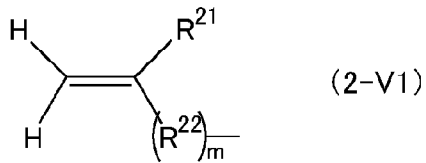


(式中、 V^2 は重合性炭素-炭素二重結合を有するヒドロカルビル基を表し、 A^2 は置換アミノ基、又は、含窒素複素環基を表す。)

化合物 (G) : 置換基を有していてもよいアミノ基及びカルボニル基を有する化合物、並びに置換基を有していてもよいアミノ基及びチオカルボニル基を有する化合物からなる化合物群から選ばれる少なくとも 1 種の化合物。

[0007] 前記式 (2) 中の V^2 で表される基が、下記式 (2-V1) で表される基であることが好ましい。

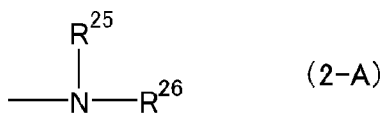
[化3]



(式中、 R^{21} は水素原子又はヒドロカルビル基を表し、 m は0又は1であり、 R^{22} はヒドロカルビレン基を表す。)

[0008] 前記式(2)中の A^2 の置換アミノ基が下記式(2-A)で表される基であることが好ましい。

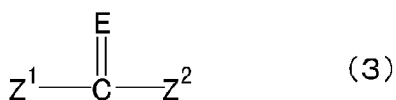
[化4]



(式中、 R^{25} 及び R^{26} は、それぞれ、ヒドロカルビル基、又は、トリヒドロカルビルシリル基、あるいは、 R^{25} と R^{26} とが結合して、窒素原子及び／又は酸素原子をヘテロ原子として有していてもよいヒドロカルビレン基、又は、 R^{25} と R^{26} は1つの基であって、窒素原子に二重結合で結合する基を表す。)

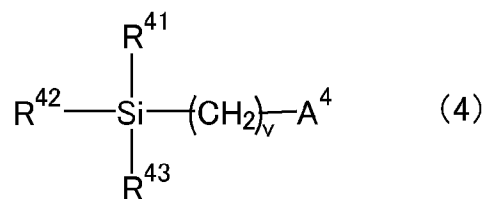
[0009] 前記化合物(G)が下記式(3)で表される化合物であり、前記アルコキシラン化合物が下記式(4)で表される化合物であることが好ましい。

[化5]



(式中、 E は、酸素原子又は硫黄原子を表し、 Z^1 及び Z^2 は、置換アミノ基、水素原子、置換基を有していてもよいヒドロカルビル基、又は、置換基を有していてもよいヒドロカルビルオキシ基を表し、 Z^1 及び Z^2 の少なくとも1つが置換アミノ基を有する基であるか、あるいは、 Z^1 と Z^2 とが結合して、置換アミノ基を有する環構造を Z^1 と Z^2 とカルボニル炭素とで形成する基を表す。)

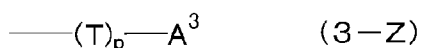
[化6]



(式中、 v は1～10の整数を表し、 R^{41} 、 R^{42} 及び R^{43} は、それぞれ独立にアルキル基又はアルコキシ基を表し、 R^{41} 、 R^{42} 及び R^{43} の少なくとも1つがアルコキシ基であり、 A^4 は置換アミノ基を表す。)

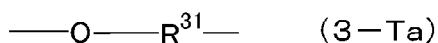
[0010] 前記式(3)において、 E が酸素原子であり、 Z^1 が下記式(3-Z)で表される基であり、 Z^2 がヒドロカルビル基又は下記式(3-Z)で表される基であることが好ましい。

[化7]



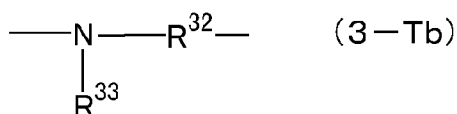
(式中、 p は0又は1であり、 T は炭素原子数1～10のヒドロカルビル基、下記式(3-Ta)で表される基、又は、下記式(3-Tb)で表される基を表し、 A^3 は置換アミノ基を表し、式(3)の Z^2 がヒドロカルビル基である場合、 Z^1 の A^3 と Z^2 のヒドロカルビル基とは結合していてもよく、式(3)の Z^2 が式(3-Z)で表される基である場合、 Z^1 の A^3 と Z^2 の A^3 とは結合していてもよい。)

[化8]



(式中、 R^{31} は炭素原子数1～10のヒドロカルビル基を表し、 R^{31} が A^3 と結合する。)

[化9]

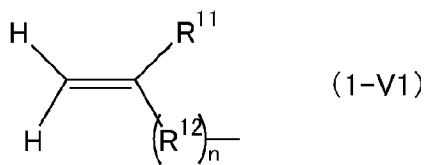


(式中、 R^{32} は炭素原子数1～10のヒドロカルビル基を表し、 R^{33} は水

素原子又は炭素原子数 1 ～ 10 のヒドロカルビル基を表し、 R^{32} が A^3 と結合する。)

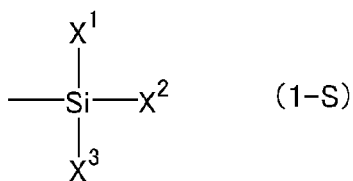
[0011] 前記式 (1) 中の V^1 で表される基が下記式 (1-V1) で表される基であり、式 (1) 中の S^1 で表される基が下記式 (1-S) で表される基であることが好ましい。

[化10]



(式中、 R^{11} は水素原子又はヒドロカルビル基を表し、 n は 0 又は 1 であり、 R^{12} はヒドロカルビレン基を表す。)

[化11]



(式中、 X^1 、 X^2 及び X^3 は、それぞれ独立に、置換アミノ基、又は、置換基を有していてもよいヒドロカルビル基を表し、 X^1 、 X^2 及び X^3 の少なくとも 1 つが置換アミノ基である。)

[0012] 前記式 (1-V1) の R^{11} が水素原子であり、 n が 0 であることが好ましい。

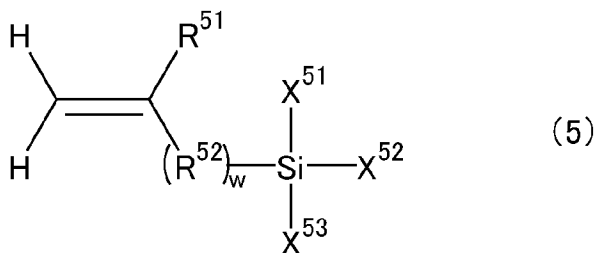
[0013] 前記共役ジエン系重合体 (A) のビニル結合量が、共役ジエンに基づく構成単位の含有量を 100 モル% として、20 モル% 以上 70 モル% 以下であることが好ましい。

[0014] 第二の本発明は、ゴム成分と、窒素吸着比表面積が $100 \text{ m}^2/\text{g}$ 以下のシリカ (I) と、窒素吸着比表面積が $180 \text{ m}^2/\text{g}$ 以上のシリカ (II) とを含有し、前記ゴム成分 100 質量% 中、共役ジエンに基づく単量体単位、下記式 (5) で表される化合物に基づく単量体単位、及び、下記式 (6) で表さ

れる化合物に基づく単量体単位を有する共役ジエン系重合体（Ｂ）の含有量が５質量％以上であり、前記ゴム成分１００質量部に対する前記シリカ（１）及び（１１）の合計含有量が３０～１５０質量部であり、前記シリカ（１）及び（１１）の含有量が以下の式を満たすゴム組成物を用いて作製したトレッドを有する空気入りタイヤに関する。

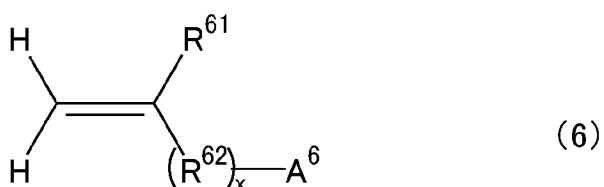
$(\text{シリカ (1) の含有量}) \times 0.2 \leq (\text{シリカ (11) の含有量}) \leq (\text{シリカ (1) の含有量}) \times 6.5$

[化12]



（式中、 R^{51} は水素原子又はヒドロカルビル基を表し、 w は０又は１であり、 R^{52} はヒドロカルビレン基を表し、 X^{51} 、 X^{52} 及び X^{53} は、それぞれ独立に、置換アミノ基、又は、置換基を有していてもよいヒドロカルビル基を表し、 X^{51} 、 X^{52} 及び X^{53} の少なくとも１つが置換アミノ基である。）

[化13]

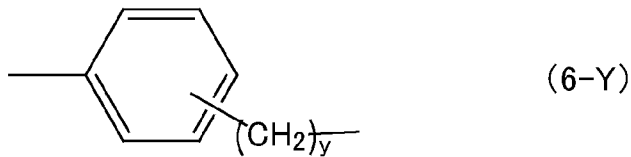


（式中、 R^{61} は水素原子又はヒドロカルビル基を表し、 x は０又は１であり、 R^{62} はヒドロカルビレン基を表し、 A^6 は置換アミノ基、又は、含窒素複素環基を表す。）

[0015] 前記式（５）の R^{51} が水素原子であり、 w が０であることが好ましい。

[0016] 前記式（６）の R^{61} が水素原子であり、 x が１であり、 R^{62} が下記式（６－Ｙ）で表される基であり、 A^6 が置換アミノ基であることが好ましい。

[化14]



(式中、 y は0～5の整数を表し、 y が1～5の整数である場合、 $(CH_2)_y$ はベンゼン環上の置換基であり、 $(CH_2)_y$ が A^6 と結合し、 y が0である場合、 $(CH_2)_y$ はベンゼン環と A^6 との結合を表す。)

[0017] 前記共役ジエン系重合体 (B) のビニル結合量が、共役ジエンに基づく構成単位の含有量を100モル%として、20モル%以上70モル%以下であることが好ましい。

発明の効果

[0018] 本発明によれば、特定の単量体単位を有し、かつ末端が特定の化合物で変性された共役ジエン系重合体 (A)、及び／又は、特定の単量体単位を有する共役ジエン系重合体 (B) と、特定の窒素吸着比表面積を有するシリカ (I) 及び (II) とを所定量配合したトレッド用ゴム組成物であるので、低燃費性、ウェットグリップ性能及び耐摩耗性がバランス良く改善された空気入りタイヤを提供できる。

発明を実施するための形態

[0019] 先ず、前記トレッドを構成するゴム組成物について説明する。

第一の本発明に係る共役ジエン系重合体 (A) は、共役ジエンに基づく単量体単位、下記式 (1) で表される化合物に基づく単量体単位、及び、下記式 (2) で表される化合物に基づく単量体単位を有し、下記化合物 (G) 又はアルコキシシラン化合物によって共重合体の少なくとも一端が変性されている。

[化15]



(式中、 V^1 は重合性炭素－炭素二重結合を有するヒドロカルビル基を表し、 S^1 は置換シリル基を表す。)

[化16]



(式中、 V^2 は重合性炭素-炭素二重結合を有するヒドロカルビル基を表し、 A^2 は置換アミノ基、又は、含窒素複素環基を表す。)

化合物(G)：置換基を有していてもよいアミノ基及びカルボニル基を有する化合物、並びに置換基を有していてもよいアミノ基及びチオカルボニル基を有する化合物からなる化合物群から選ばれる少なくとも1種の化合物。

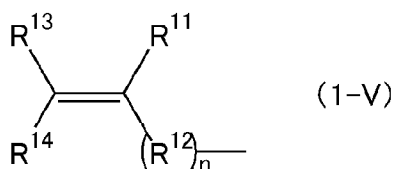
[0020] 本明細書では、ヒドロカルビル基は炭化水素残基を表す。ヒドロカルビレン基は、2価の炭化水素残基を表す。含窒素複素環基は、含窒素複素環を有する化合物の複素環の炭素原子から1つの水素原子を除いた基を表し、含窒素複素環は、環を構成するヘテロ原子として窒素原子を有する芳香族複素環を表す。

[0021] 共役ジエンとしては、1, 3-ブタジエン、イソプレン、1, 3-ペンタジエン、2, 3-ジメチル-1, 3-ブタジエン、1, 3-ヘキサジエンなどをあげることができ、これらは1種以上用いられる。共役ジエンとして好ましくは、1, 3-ブタジエン、イソプレンである。

[0022] 式(1)中の V^1 は、重合性炭素-炭素二重結合を有するヒドロカルビル基を表す。

[0023] V^1 としては、好ましくは下記式(1-V)で表される基である。

[0024] [化17]



(式中、 n は0又は1であり、 R^{11} 、 R^{13} 及び R^{14} は、それぞれ独立に水素原子又はヒドロカルビル基を表し、 R^{12} はヒドロカルビレン基を表す。)

[0025] 式(1-V)において、 n は0又は1を表す。

[0026] R^{11} 、 R^{13} 及び R^{14} のヒドロカルビル基としては、アルキル基、アルケニル基、アリール基などをあげることができる。アルキル基としては、メチル基

、エチル基、*n*-プロピル基、イソプロピル基、*n*-ブチル基、*sec*-ブチル基、*tert*-ブチル基などをあげることができ、好ましくはメチル基である。アルケニル基としては、ビニル基、アリル基、1-プロペニル基、1-メチルエテニル基などをあげることができ、好ましくはビニル基である。アリール基としては、フェニル基、メチルフェニル基、エチルフェニル基などをあげることができ、好ましくはフェニル基である。

[0027] R^{11} 、 R^{13} 及び R^{14} として、好ましくは、水素原子、メチル基、ビニル基、フェニル基であり、より好ましくは水素原子である。

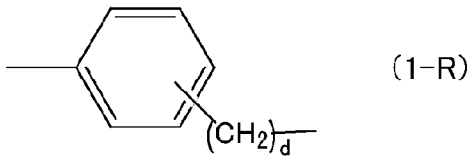
[0028] R^{12} のヒドロカルビレン基としては、アルキレン基、アリレーン基、アリレーン基とアルキレン基とが結合した基などをあげることができる。

[0029] アルキレン基としては、メチレン基、エチレン基、トリメチレン基などをあげることができる。好ましくは、メチレン基又はエチレン基である。アリレーン基としては、フェニレン基、ナフチレン基、ビフェニレン基などをあげることができる。好ましくはフェニレン基である。

[0030] アリレーン基とアルキレン基とが結合した基としては、フェニレン基とアルキレン基とが結合した基、ナフチレン基とアルキレン基とが結合した基、ビフェニレン基とアルキレン基とが結合した基をあげることができる。
また、アリレーン基とアルキレン基とが結合した基としては、式(1-V)の R^{11} が結合している炭素原子に、当該基のアリレーン基の炭素原子が結合していることが好ましい。

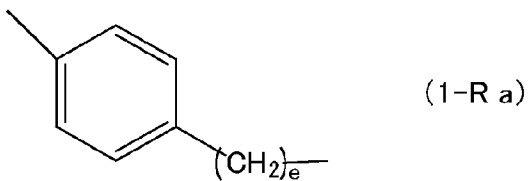
[0031] フェニレン基とアルキレン基とが結合した基（フェニレン-アルキレン基（例えば、下記式(1-R)で表される基。））では、水素原子が除かれたベンゼン環上の炭素原子の位置と、アルキレン基が結合するベンゼン環上の炭素原子の位置とによって、パラ-フェニレン-アルキレン基（例えば、下記式(1-Ra)で表される基。）、メタ-フェニレン-アルキレン基（例えば、下記式(1-Rb)で表される基。）、オルト-フェニレン-アルキレン基（例えば、下記式(1-Rc)で表される基。）をあげることができる。

[0032] [化18]

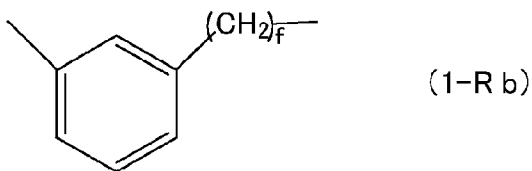


(式中、 d は 1 ～ 10 の整数を表し、 $(CH_2)_d$ はベンゼン環上の置換基である。)

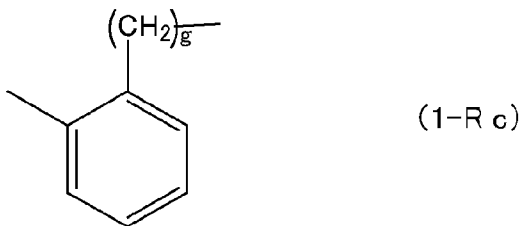
[0033] [化19]



[化20]



[化21]



(式中、 e 、 f 、 g は、それぞれ、1 ～ 10 の整数を表す。)

[0034] アリレン基とアルキレン基とが結合した基としては、好ましくは、フェニレン基とアルキレン基とが結合した基であり、より好ましくは、上式 (1-R a) で表される基、上式 (1-R b) で表される基であり、更に好ましくは、パラフェニレンーメチレン基 ($e = 1$ である式 (1-R a) で表される基)、メタフェニレンーメチレン基 ($f = 1$ である式 (1-R b) で表される基)、パラフェニレンーエチレン基 ($e = 2$ である式 (1-R a) で表される基)、メタフェニレンーエチレン基 ($f = 2$ である式 (1-R

b) で表される基) である。

[0035] 式 (1-V) で表される基としては、次に示す基をあげることができる。

[0036] R^{11} 、 R^{13} 及び R^{14} が水素原子である基として、ビニル基、ビニルメチル基、ビニルエチル基、4-ビニルフェニル基、3-ビニルフェニル基、(4-ビニルフェニル)メチル基、2-(4-ビニルフェニル)エチル基、(3-ビニルフェニル)メチル基、2-(3-ビニルフェニル)エチル基などをあげることができる。

[0037] R^{11} がメチル基であり、 R^{13} 及び R^{14} が水素原子である基として、イソプロペニル基、メタリル基、4-イソプロペニルフェニル基、3-イソプロペニルフェニル基、(4-イソプロペニルフェニル)メチル基、2-(4-イソプロペニルフェニル)エチル基、(3-イソプロペニルフェニル)メチル基、2-(3-イソプロペニルフェニル)エチル基などをあげることができる。

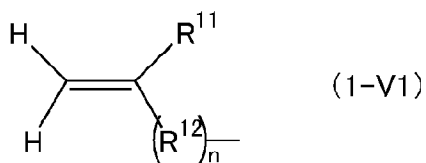
[0038] R^{11} がビニル基であり、 R^{13} 及び R^{14} が水素原子である基として、1-メチレン-2-プロペニル基、2-メチレン-3-ブテニル基をあげることができる。

[0039] R^{11} がフェニル基であり、 R^{13} 及び R^{14} が水素原子である基として、4-(1-フェニルビニル)フェニル基、3-(1-フェニルビニル)フェニル基、2-(1-フェニルビニル)フェニル基などをあげることができる。

[0040] R^{11} が水素原子であり、 R^{13} がメチル基であり、 R^{14} が水素原子である基として、1-プロペニル基、クロチル基、4-(1-プロペニル)フェニル基、4-(1-プロペニル)フェニルメチル基、2-{4-(1-プロペニル)フェニル}エチル基、3-(1-プロペニル)フェニル基、3-(1-プロペニル)フェニルメチル基、2-{3-(1-プロペニル)フェニル}エチル基などをあげることができる。

[0041] 式 (1-V) で表される基としては、好ましくは下記式 (1-V1) で表される基である。

[化22]



(式中、R¹¹は水素原子又はヒドロカルビル基を表し、nは0又は1であり、R¹²はヒドロカルビレン基を表す。)

[0042] 式(1-V1)で表される基として好ましくは、R¹¹が水素原子である基として、ビニル基、4-ビニルフェニル基、3-ビニルフェニル基、(4-ビニルフェニル)メチル基、2-(4-ビニルフェニル)エチル基、(3-ビニルフェニル)メチル基、2-(3-ビニルフェニル)エチル基；R¹¹がメチル基である基として、4-イソプロペニルフェニル基、3-イソプロペニルフェニル基、(4-イソプロペニルフェニル)メチル基、2-(4-イソプロペニルフェニル)エチル基、(3-イソプロペニルフェニル)メチル基、2-(3-イソプロペニルフェニル)エチル基；R¹¹がビニル基である基として、1-メチレン-2-プロペニル基、2-メチレン-3-ブテニル基；R¹¹がフェニル基である基として、4-(1-フェニルビニル)フェニル基である。

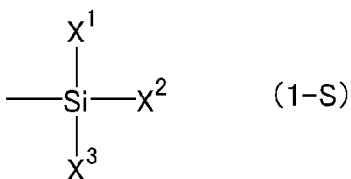
[0043] 式(1-V1)で表される基として更に好ましくはビニル基である。

[0044] 式(1)中のS¹は、置換シリル基を表す。

[0045] S¹の表す置換シリル基としては、置換基を有していてもよいヒドロカルビル基、ヒドロカルビルオキシ基、置換アミノ基などの置換基で、ケイ素原子に結合した水素原子が置換されたシリル基をあげることができる。ケイ素原子に結合している置換基は同一でも異なってもよい。

[0046] S¹の表す置換シリル基としては、好ましくは下記式(1-S)で表される基である。

[化23]



(式中、 X^1 、 X^2 及び X^3 は、それぞれ独立に、置換アミノ基、又は、置換基を有していてもよいヒドロカルビル基を表し、 X^1 、 X^2 及び X^3 の少なくとも1つが置換アミノ基である。)

[0047] X^1 、 X^2 及び X^3 の置換基を有していてもよいヒドロカルビル基としては、酸素原子、窒素原子及びケイ素原子からなる群より選択される少なくとも1種を有していてもよいヒドロカルビル基をあげることができる。

[0048] X^1 、 X^2 及び X^3 のヒドロカルビル基としては、アルキル基、アルケニル基、アルキニル基、アリール基、アラルキル基をあげることができる。アルキル基としては、メチル基、エチル基、*n*-プロピル基、イソプロピル基、*n*-ブチル基、*sec*-ブチル基、*tert*-ブチル基をあげることができる。アルケニル基としては、ビニル基、アリル基、1-プロペニル基、1-メチルエテニル基をあげることができる。アルキニル基としては、エチニル基、プロパギル基をあげることができる。アリール基としては、フェニル基、トリル基、キシリル基をあげることができる。アラルキル基としては、ベンジル基をあげることができる。ヒドロカルビル基として、好ましくはアルキル基である。

[0049] X^1 、 X^2 及び X^3 の酸素原子を有するヒドロカルビル基としては、メトキシメチル基、メトキシエチル基、エトキシメチル基、エトキシエチル基などのアルコキシアルキル基をあげることができる。

[0050] X^1 、 X^2 及び X^3 の窒素原子を有するヒドロカルビル基としては、ジメチルアミノメチル基、ジメチルアミノエチル基、ジエチルアミノメチル基、ジエチルアミノエチル基などのジアルキルアミノアルキル基をあげることができる。

[0051] X^1 、 X^2 及び X^3 のケイ素原子を有するヒドロカルビル基としては、トリメチ

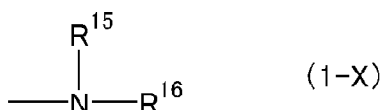
ルシリルメチル基、トリメチルシリルエチル基、トリエチルシリルメチル基、トリエチルシリルエチル基などのトリアルキルシリルアルキル基をあげることができる。

[0052] X^1 、 X^2 及び X^3 の置換基を有していてもよいヒドロカルビル基の炭素原子数は、好ましくは1～10であり、より好ましくは1～4である。

[0053] X^1 、 X^2 及び X^3 の置換基を有していてもよいヒドロカルビル基としては、好ましくは、アルキル基又はアルコキシアルキル基である。アルキル基としては、好ましくは炭素原子数が1～4のアルキル基であり、より好ましくはメチル基又はエチル基である。アルコキシアルキル基としては、好ましくは、炭素原子数2～4のアルコキシアルキル基である。

[0054] X^1 、 X^2 及び X^3 の置換アミノ基として、好ましくは下記式(1-X)で表される基である。

[化24]



(式中、 R^{15} 及び R^{16} は、それぞれ、ヒドロカルビル基、又は、トリヒドロカルビルシリル基、あるいは、 R^{15} と R^{16} とが結合して、窒素原子及び／又は酸素原子をヘテロ原子として有していてもよいヒドロカルビレン基、又は、 R^{15} と R^{16} は1つの基であって、窒素原子に二重結合で結合する基を表す。)

[0055] R^{15} 及び R^{16} のヒドロカルビル基としては、アルキル基、アルケニル基、アルキニル基、アリール基、アラルキル基をあげることができる。アルキル基としては、メチル基、エチル基、*n*-プロピル基、イソプロピル基、*n*-ブチル基、*sec*-ブチル基、*tert*-ブチル基をあげることができる。アルケニル基としては、ビニル基、アリル基、1-プロペニル基、1-メチルエテニル基をあげることができる。アルキニル基としては、エチニル基、プロパギル基をあげることができる。アリール基としては、フェニル基、トリル基、キシリル基をあげることができる。アラルキル基としては、ベンジル

基をあげることができる。

[0056] R^{15} 及び R^{16} のヒドロカルビル基の炭素原子数は、好ましくは 1 ~ 10 であり、より好ましくは 1 ~ 4 であり、更に好ましくは 1 ~ 2 である。

[0057] R^{15} 及び R^{16} のヒドロカルビル基としては、好ましくはアルキル基であり、より好ましくは直鎖アルキル基である。

[0058] R^{15} 及び R^{16} のトリヒドロカルビルシリル基としては、トリメチルシリル基、トリエチルシリル基、トリイソプロピルシリル基、tert-ブチルジメチルシリル基などのトリアルキルシリル基をあげることができる。

[0059] R^{15} 及び R^{16} のトリヒドロカルビルシリル基としては、好ましくは、炭素原子数が 3 ~ 9 のトリアルキルシリル基であり、より好ましくは、ケイ素原子に結合したアルキル基が炭素原子数 1 ~ 3 のアルキル基であるトリアルキルシリル基であり、更に好ましくは、トリメチルシリル基である。

[0060] R^{15} 及び R^{16} が結合した窒素原子及び／又は酸素原子をヘテロ原子として有していてもよいヒドロカルビレン基としては、ヒドロカルビレン基、窒素原子を有するヒドロカルビレン基、酸素原子を有するヒドロカルビレン基などをあげることができる。ヒドロカルビレン基としては、エチレン基、トリメチレン基、テトラメチレン基、ペンタメチレン基、ヘキサメチレン基などのアルキレン基をあげることができる。窒素原子を有するヒドロカルビレン基としては、 $-CH_2CH_2-NH-CH_2-$ で表される基、 $-CH_2CH_2-N=CH-$ で表される基、 $-CH=CH-N=CH-$ で表される基、 $-CH_2CH_2-NH-CH_2CH_2-$ で表される基をあげることができる。酸素原子を有するヒドロカルビレン基としては、 $-CH_2CH_2-O-CH_2CH_2-$ で表される基をあげることができる。

[0061] R^{15} 及び R^{16} が結合した窒素原子及び／又は酸素原子をヘテロ原子として有していてもよいヒドロカルビレン基の炭素原子数は、好ましくは 2 ~ 20 であり、より好ましくは 2 ~ 7 であり、更に好ましくは 4 ~ 6 である。

[0062] R^{15} 及び R^{16} が結合した窒素原子及び／又は酸素原子をヘテロ原子として有していてもよいヒドロカルビレン基としては、好ましくはヒドロカルビレン

基であり、より好ましくはアルキレン基であり、更に好ましくはポリメチレン基である。

[0063] R^{15} 及び R^{16} が窒素原子に二重結合で結合する 1 つの基としては、エチリデン基、プロピリデン基、ブチリデン基、1-メチルエチリデン基、1-メチルプロピリデン基、1, 3-ジメチルブチリデン基などのヒドロカルビリデン基をあげることができる。

[0064] R^{15} 及び R^{16} が窒素原子に二重結合で結合する 1 つの基の炭素原子数は、好ましくは 2 ~ 20 であり、より好ましくは 2 ~ 6 である。

[0065] R^{15} 及び R^{16} としては、好ましくは、アルキル基、トリアルキルシリル基、 R^{15} と R^{16} とが結合したアルキレン基であり、より好ましくはアルキル基である。

[0066] 式 (1-X) で表される基としては、非環状アミノ基、環状アミノ基をあげることができる。

[0067] 非環状アミノ基としては、ジアルキルアミノ基、ビス (トリアルキルシリル) アミノ基をあげることができる。ジアルキルアミノ基としては、ジメチルアミノ基、ジエチルアミノ基、ジ (n-プロピル) アミノ基、ジ (イソプロピル) アミノ基、ジ (n-ブチル) アミノ基、ジ (sec-ブチル) アミノ基、ジ (tert-ブチル) アミノ基、エチルメチルアミノ基をあげることができる。ビス (トリアルキルシリル) アミノ基としては、ビス (トリメチルシリル) アミノ基、ビス (t-ブチルジメチルシリル) アミノ基をあげることができる。

[0068] 非環状アミノ基としては、更に、エチリデンアミノ基、1-メチルプロピリデンアミノ基、1, 3-ジメチルブチリデンアミノ基、1-メチルエチリデンアミノ基、4-N, N-ジメチルアミノベンジリデンアミノ基をあげることともできる。

[0069] 環状アミノ基としては、1-アジリジニル基、1-アゼチジニル基、1-ピロリジニル基、1-ピペリジニル基、1-ヘキサメチレンイミノ基、1-ヘプタメチレンイミノ基、1-オクタメチレンイミノ基、1-デカメチレンイ

ミノ基、1-ドデカメチレンイミノ基などの1-ポリメチレンイミノ基があげられる。また、1-ピロリル基、1-ピラゾリジニル基、1-イミダゾリジニル基、1-ピラゾリル基、1-イミダゾリル基、4,5-ジヒドロ-1-イミダゾリル基、1-ピペラジニル基、モルホリノ基があげられる。

[0070] 式(1-X)で表される基としては、好ましくは、非環状アミノ基であり、より好ましくは、ジアルキルアミノ基である。ジアルキルアミノ基として、好ましくは、ジメチルアミノ基、ジエチルアミノ基、ジ(n-プロピル)アミノ基、ジ(n-ブチル)アミノ基であり、より好ましくは、ジメチルアミノ基、ジエチルアミノ基である。

[0071] 式(1-S)中、X¹、X²及びX³の少なくとも1つが置換アミノ基であり、好ましくは、X¹、X²及びX³の2つ以上が、置換アミノ基であり、より好ましくは、X¹、X²及びX³のうち2つが、置換アミノ基である。

[0072] 式(1)で表される化合物としては、V¹が式(1-V1)で表される基であり、S¹が式(1-S)で表される基であり、式(1-V1)中のR¹¹が水素原子であり、式(1-S)中のX¹、X²及びX³のうち1つがジアルキルアミノ基である化合物として、次の化合物をあげることができる。

[0073] 式(1-V1)中のnが0である化合物：

(ジメチルアミノ)ジメチルビニルシラン、
(ジエチルアミノ)ジメチルビニルシラン、
(ジ-n-プロピルアミノ)ジメチルビニルシラン、
(ジ-n-ブチルアミノ)ジメチルビニルシラン、
(ジメチルアミノ)ジエチルビニルシラン、
(ジエチルアミノ)ジエチルビニルシラン、
(ジ-n-プロピルアミノ)ジエチルビニルシラン、
(ジ-n-ブチルアミノ)ジエチルビニルシラン。

[0074] 式(1-V1)中のnが1である化合物：

(ジメチルアミノ)ジメチル-4-ビニルフェニルシラン、
(ジメチルアミノ)ジメチル-3-ビニルフェニルシラン、

(ジエチルアミノ) ジメチル-4-ビニルフェニルシラン、
(ジエチルアミノ) ジメチル-3-ビニルフェニルシラン、
(ジー n-プロピルアミノ) ジメチル-4-ビニルフェニルシラン、
(ジー n-プロピルアミノ) ジメチル-3-ビニルフェニルシラン、
(ジー n-ブチルアミノ) ジメチル-4-ビニルフェニルシラン、
(ジー n-ブチルアミノ) ジメチル-3-ビニルフェニルシラン、
(ジメチルアミノ) ジエチル-4-ビニルフェニルシラン、
(ジメチルアミノ) ジエチル-3-ビニルフェニルシラン、
(ジエチルアミノ) ジエチル-4-ビニルフェニルシラン、
(ジエチルアミノ) ジエチル-3-ビニルフェニルシラン、
(ジー n-プロピルアミノ) ジエチル-4-ビニルフェニルシラン、
(ジー n-プロピルアミノ) ジエチル-3-ビニルフェニルシラン、
(ジー n-ブチルアミノ) ジエチル-4-ビニルフェニルシラン、
(ジー n-ブチルアミノ) ジエチル-3-ビニルフェニルシラン。

[0075] 式(1)で表される化合物としては、 V^1 が式(1-V1)で表される基であり、 S^1 が式(1-S)で表される基であり、式(1-V1)中の R^{11} が水素原子であり、式(1-S)中の X^1 、 X^2 及び X^3 のうち2つがジアルキルアミノ基である化合物として、次の化合物をあげることができる。

[0076] 式(1-V1)中のnが0である化合物：

ビス(ジメチルアミノ)メチルビニルシラン、
ビス(ジエチルアミノ)メチルビニルシラン、
ビス(ジー n-プロピルアミノ)メチルビニルシラン、
ビス(ジー n-ブチルアミノ)メチルビニルシラン、
ビス(ジメチルアミノ)エチルビニルシラン、
ビス(ジエチルアミノ)エチルビニルシラン、
ビス(ジー n-プロピルアミノ)エチルビニルシラン、
ビス(ジー n-ブチルアミノ)エチルビニルシラン。

[0077] 式(1-V1)中のnが1である化合物：

ビス（ジメチルアミノ）メチル－４－ビニルフェニルシラン、
 ビス（ジメチルアミノ）メチル－３－ビニルフェニルシラン、
 ビス（ジエチルアミノ）メチル－４－ビニルフェニルシラン、
 ビス（ジエチルアミノ）メチル－３－ビニルフェニルシラン、
 ビス（ジーｎ－プロピルアミノ）メチル－４－ビニルフェニルシラン、
 ビス（ジーｎ－プロピルアミノ）メチル－３－ビニルフェニルシラン、
 ビス（ジーｎ－ブチルアミノ）メチル－４－ビニルフェニルシラン、
 ビス（ジーｎ－ブチルアミノ）メチル－３－ビニルフェニルシラン、
 ビス（ジメチルアミノ）エチル－４－ビニルフェニルシラン、
 ビス（ジメチルアミノ）エチル－３－ビニルフェニルシラン、
 ビス（ジエチルアミノ）エチル－４－ビニルフェニルシラン、
 ビス（ジエチルアミノ）エチル－３－ビニルフェニルシラン、
 ビス（ジーｎ－プロピルアミノ）エチル－４－ビニルフェニルシラン、
 ビス（ジーｎ－プロピルアミノ）エチル－３－ビニルフェニルシラン、
 ビス（ジーｎ－ブチルアミノ）エチル－４－ビニルフェニルシラン、
 ビス（ジーｎ－ブチルアミノ）エチル－３－ビニルフェニルシラン。

[0078] 式（１）で表される化合物としては、 V^1 が式（１－ V^1 ）で表される基であり、 S^1 が式（１－ S ）で表される基であり、式（１－ V^1 ）中の R^{11} がメチル基であり、式（１－ S ）中の X^1 、 X^2 及び X^3 のうち２つがジアルキルアミノ基である化合物として、次の化合物をあげることができる。

[0079] 式（１－ V^1 ）中の n が１である化合物：

ビス（ジメチルアミノ）メチル－４－イソプロペニルフェニルシラン、
 ビス（ジメチルアミノ）メチル－３－イソプロペニルフェニルシラン、
 ビス（ジエチルアミノ）メチル－４－イソプロペニルフェニルシラン、
 ビス（ジエチルアミノ）メチル－３－イソプロペニルフェニルシラン、
 ビス（ジーｎ－プロピルアミノ）メチル－４－イソプロペニルフェニルシラ
 ン、
 ビス（ジーｎ－プロピルアミノ）メチル－３－イソプロペニルフェニルシラ

ン、

ビス（ジ－*n*－ブチルアミノ）メチル－４－イソプロペニルフェニルシラン

、

ビス（ジ－*n*－ブチルアミノ）メチル－３－イソプロペニルフェニルシラン

、

ビス（ジメチルアミノ）エチル－４－イソプロペニルフェニルシラン、

ビス（ジメチルアミノ）エチル－３－イソプロペニルフェニルシラン、

ビス（ジエチルアミノ）エチル－４－イソプロペニルフェニルシラン、

ビス（ジエチルアミノ）エチル－３－イソプロペニルフェニルシラン、

ビス（ジ－*n*－プロピルアミノ）エチル－４－イソプロペニルフェニルシラ

ン、

ビス（ジ－*n*－プロピルアミノ）エチル－３－イソプロペニルフェニルシラ

ン、

ビス（ジ－*n*－ブチルアミノ）エチル－４－イソプロペニルフェニルシラン

、

ビス（ジ－*n*－ブチルアミノ）エチル－３－イソプロペニルフェニルシラン

。

[0080] 式（１）で表される化合物としては、 V^1 が式（１－ V^1 ）で表される基であり、 S^1 が式（１－ S ）で表される基であり、式（１－ V^1 ）中の R^{11} がビニル基であり、式（１－ S ）中の X^1 、 X^2 及び X^3 のうち２つがジアルキルアミノ基である化合物として、次の化合物をあげることができる。

[0081] 式（１－ V^1 ）中の*n*が０である化合物：

ビス（ジメチルアミノ）メチル（１－メチレン－２－プロペニル）シラン、

ビス（ジエチルアミノ）メチル（１－メチレン－２－プロペニル）シラン、

ビス（ジ－*n*－プロピルアミノ）メチル（１－メチレン－２－プロペニル）

シラン、

ビス（ジ－*n*－ブチルアミノ）メチル（１－メチレン－２－プロペニル）シ

ラン、

ビス（ジメチルアミノ）エチル（１－メチレン－２－プロペニル）シラン、
 ビス（ジエチルアミノ）エチル（１－メチレン－２－プロペニル）シラン、
 ビス（ジーｎ－プロピルアミノ）エチル（１－メチレン－２－プロペニル）
 シラン、
 ビス（ジーｎ－ブチルアミノ）エチル（１－メチレン－２－プロペニル）シ
 ラン。

[0082] 式（１）で表される化合物としては、 V^1 が式（１－ V^1 ）で表される基であ
 り、 S^1 が式（１－ S ）で表される基であり、式（１－ V^1 ）中の R^{11} がフェ
 ニル基であり、式（１－ S ）中の X^1 、 X^2 及び X^3 のうち２つがジアルキルア
 ミノ基である化合物として、次の化合物をあげることができる。

[0083] 式（１－ V^1 ）中の n が１である化合物：

１－（４－ビス（ジメチルアミノ）メチルシリル）－１－フェニルエチレン
 、
 １－（４－ビス（ジエチルアミノ）メチルシリル）－１－フェニルエチレン
 、
 １－（４－ビス（ジーｎ－プロピルアミノ）メチルシリル）－１－フェニル
 エチレン、
 １－（４－ビス（ジーｎ－ブチルアミノ）メチルシリル）－１－フェニルエ
 チレン、
 １－（４－ビス（ジメチルアミノ）エチルシリル）－１－フェニルエチレン
 、
 １－（４－ビス（ジエチルアミノ）エチルシリル）－１－フェニルエチレン
 、
 １－（４－ビス（ジーｎ－プロピルアミノ）エチルシリル）－１－フェニル
 エチレン、
 １－（４－ビス（ジーｎ－ブチルアミノ）エチルシリル）－１－フェニルエ
 チレン。

[0084] 式（１）で表される化合物としては、 V^1 が式（１－ V^1 ）で表される基であ

り、 S^1 が式(1-S)で表される基であり、式(1-V1)中の R^{11} が水素原子であり、式(1-S)中の X^1 、 X^2 及び X^3 の3つがジアルキルアミノ基である化合物として、次の化合物をあげることができる。

[0085] 式(1-V1)中の n が0である化合物：

トリス(ジメチルアミノ)ビニルシラン、
トリス(ジエチルアミノ)ビニルシラン、
トリス(ジー n -プロピルアミノ)ビニルシラン、
トリス(ジー n -ブチルアミノ)ビニルシラン。

[0086] 式(1-V1)中の n が1である化合物：

トリス(ジメチルアミノ)-4-ビニルフェニルシラン、
トリス(ジメチルアミノ)-3-ビニルフェニルシラン、
トリス(ジエチルアミノ)-4-ビニルフェニルシラン、
トリス(ジエチルアミノ)-3-ビニルフェニルシラン、
トリス(ジー n -プロピルアミノ)-4-ビニルフェニルシラン、
トリス(ジー n -プロピルアミノ)-3-ビニルフェニルシラン、
トリス(ジー n -ブチルアミノ)-4-ビニルフェニルシラン、
トリス(ジー n -ブチルアミノ)-3-ビニルフェニルシラン。

[0087] 式(1)で表される化合物としては、 V^1 が式(1-V1)で表される基であり、 S^1 が式(1-S)で表される基であり、式(1-V1)中の R^{11} がメチル基であり、式(1-S)中の X^1 、 X^2 及び X^3 の3つがジアルキルアミノ基である化合物として、次の化合物をあげることができる。

[0088] 式(1-V1)中の n が1である化合物：

トリス(ジメチルアミノ)-4-イソプロペニルフェニルシラン、
トリス(ジメチルアミノ)-3-イソプロペニルフェニルシラン、
トリス(ジエチルアミノ)-4-イソプロペニルフェニルシラン、
トリス(ジエチルアミノ)-3-イソプロペニルフェニルシラン、
トリス(ジー n -プロピルアミノ)-4-イソプロペニルフェニルシラン、
トリス(ジー n -プロピルアミノ)-3-イソプロペニルフェニルシラン、

トリス（ジ-*n*-ブチルアミノ）-4-イソプロペニルフェニルシラン、
トリス（ジ-*n*-ブチルアミノ）-3-イソプロペニルフェニルシラン。

[0089] 式（1）で表される化合物としては、 V^1 が式（1-V 1）で表される基であり、 S^1 が式（1-S）で表される基であり、式（1-V 1）中の R^{11} がビニル基であり、式（1-S）中の X^1 、 X^2 及び X^3 の3つがジアルキルアミノ基である化合物として、次の化合物をあげることができる。

[0090] 式（1-V 1）中の*n*が0である化合物：

トリス（ジメチルアミノ）（1-メチレン-2-プロペニル）シラン、
トリス（ジエチルアミノ）（1-メチレン-2-プロペニル）シラン、
トリス（ジ-*n*-プロピルアミノ）（1-メチレン-2-プロペニル）シラン、
トリス（ジ-*n*-ブチルアミノ）（1-メチレン-2-プロペニル）シラン。

[0091] 式（1）で表される化合物としては、 V^1 が式（1-V 1）で表される基であり、 S^1 が式（1-S）で表される基であり、式（1-V 1）中の R^{11} がフェニル基であり、式（1-S）中の X^1 、 X^2 及び X^3 のうち3つがジアルキルアミノ基である化合物として、次の化合物をあげることができる。

[0092] 式（1-V 1）中の*n*が1である化合物：

1-（4-トリス（ジメチルアミノ）シリル）-1-フェニルエチレン、
1-（4-トリス（ジエチルアミノ）シリル）-1-フェニルエチレン、
1-（4-トリス（ジ-*n*-プロピルアミノ）メチルシリル）-1-フェニルエチレン、
1-（4-トリス（ジ-*n*-ブチルアミノ）メチルシリル）-1-フェニルエチレン。

[0093] 式（1）で表される化合物としては、好ましくは、 V^1 が式（1-V 1）で表される基であり、 S^1 が式（1-S）で表される基である化合物であり、より好ましくは、式（1-S）中の X^1 、 X^2 及び X^3 のうち2つがジアルキルアミノ基である化合物であり、更に好ましくは、式（1-V 1）中の R^{11} が水素原子であり、式（1-V 1）中の*n*が0である化合物である。特に好ましく

は、 X^1 、 X^2 及び X^3 のうち残りの1つがアルキル基又はアルコシアルキル基である化合物である。最も好ましくは、

ビス(ジメチルアミノ)メチルビニルシラン、

ビス(ジエチルアミノ)メチルビニルシラン、

ビス(ジ- n -プロピルアミノ)メチルビニルシラン、

ビス(ジ- n -ブチルアミノ)メチルビニルシラン、

ビス(ジメチルアミノ)エチルビニルシラン、

ビス(ジエチルアミノ)エチルビニルシラン、

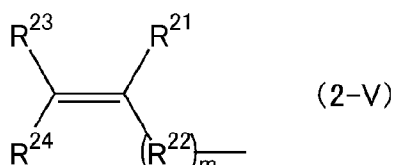
ビス(ジ- n -プロピルアミノ)エチルビニルシラン、

ビス(ジ- n -ブチルアミノ)エチルビニルシランである。

[0094] 式(2)中の V^2 は、重合性炭素-炭素二重結合を有するヒドロカルビル基を表す。

[0095] V^2 としては、好ましくは下記式(2-V)で表される基である。

[0096] [化25]



(式中、 m は0又は1であり、 R^{21} 、 R^{23} 及び R^{24} は、それぞれ独立に水素原子又はヒドロカルビル基を表し、 R^{22} はヒドロカルビレン基を表す。)

[0097] 式(2-V)において、 m は0又は1を表す。

[0098] R^{21} 、 R^{23} 及び R^{24} のヒドロカルビル基としては、アルキル基、アルケニル基、アリール基などをあげることができる。アルキル基としては、メチル基、エチル基、 n -プロピル基、イソプロピル基、 n -ブチル基、*sec*-ブチル基、*tert*-ブチル基などをあげることができ、好ましくはメチル基である。アルケニル基としては、ビニル基、アリル基、1-プロペニル基、1-メチルエテニル基などをあげることができ、好ましくはビニル基である。アリール基としては、フェニル基、メチルフェニル基、エチルフェニル基などをあげることができ、好ましくはフェニル基である。

[0099] R^{21} 、 R^{23} 及び R^{24} として、好ましくは、水素原子、メチル基、ビニル基、フェニル基であり、より好ましくは水素原子である。

[0100] R^{22} のヒドロカルビレン基としては、アルキレン基、アリレン基、アリレン基とアルキレン基とが結合した基などをあげることができる。

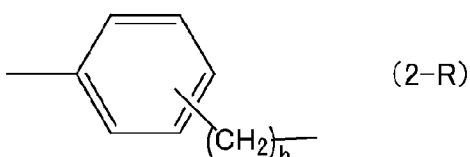
[0101] アルキレン基としては、メチレン基、エチレン基、トリメチレン基などをあげることができる。好ましくは、メチレン基又はエチレン基である。アリレン基としては、フェニレン基、ナフチレン基、ビフェニレン基などをあげることができる。好ましくはフェニレン基である。より好ましくは、パラフェニレン基、メタフェニレン基である。

[0102] アリレン基とアルキレン基とが結合した基としては、フェニレン基とアルキレン基とが結合した基、ナフチレン基とアルキレン基とが結合した基、ビフェニレン基とアルキレン基とが結合した基をあげることができる。

また、アリレン基とアルキレン基とが結合した基としては、式(2-V)の R^{21} が結合している炭素原子に、当該基のアリレン基の炭素原子が結合していることが好ましい。

[0103] フェニレン基とアルキレン基とが結合した基(フェニレンーアルキレン基(例えば、下記式(2-R)で表される基。))では、水素原子が除かれたベンゼン環上の炭素原子の位置と、アルキレン基が結合するベンゼン環上の炭素原子の位置とによって、パラフェニレンーアルキレン基(例えば、下記式(2-Ra)で表される基。)、メタフェニレンーアルキレン基(例えば、下記式(2-Rb)で表される基。)、オルトフェニレンーアルキレン基(例えば、下記式(2-Rc)で表される基。)をあげることができる。

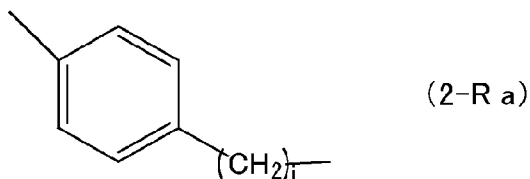
[0104] [化26]



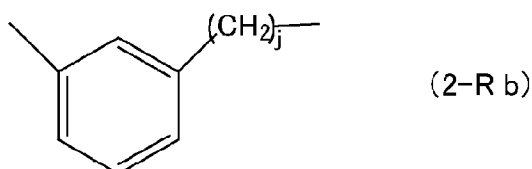
(式中、 h は1～10の整数を表し、 $(CH_2)_h$ はベンゼン環上の置換基で

ある。)

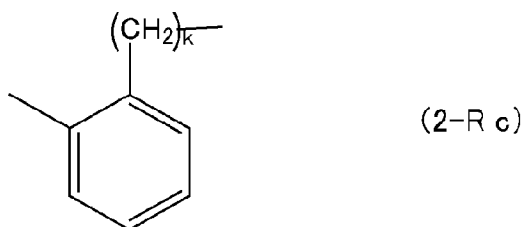
[0105] [化27]



[化28]



[化29]



(式中、 i 、 j 、 k は、それぞれ、1～10の整数を表す。)

[0106] 式(2-R)の h 、式(2-R a)の i 、式(2-R b)の j 、式(2-R c)の k は、好ましくは1～5であり、より好ましくは1～2であり、更に好ましくは1である。

[0107] アリレン基とアルキレン基とが結合した基としては、好ましくは、フェニレン基とアルキレン基とが結合した基であり、より好ましくは、上記式(2-R a)で表される基、上記式(2-R b)で表される基であり、更に好ましくは、パラフェニレンーメチレン基($i=1$ である式(2-R a)で表される基)、メタフェニレンーメチレン基($j=1$ である式(2-R b)で表される基)、パラフェニレンーエチレン基($i=2$ である式(2-R a)で表される基)、メタフェニレンーエチレン基($j=2$ である式(2-R b)で表される基)であり、特に好ましくは、パラフェニレンーメチレン基($i=1$ である式(2-R a)で表される基)、メタフェニレンー

メチレン基 ($j = 1$ である式 (2-Rb) で表される基) である。

[0108] 式 (2-V) で表される基としては、次に示す基をあげることができる。

[0109] R^{21} 、 R^{23} 及び R^{24} が水素原子である基として、ビニル基、ビニルメチル基、ビニルエチル基、4-ビニルフェニル基、3-ビニルフェニル基、(4-ビニルフェニル)メチル基、2-(4-ビニルフェニル)エチル基、(3-ビニルフェニル)メチル基、2-(3-ビニルフェニル)エチル基などをあげることができる。

[0110] R^{21} がメチル基であり、 R^{23} 及び R^{24} が水素原子である基として、イソプロペニル基、メタリル基、4-イソプロペニルフェニル基、3-イソプロペニルフェニル基、(4-イソプロペニルフェニル)メチル基、2-(4-イソプロペニルフェニル)エチル基、(3-イソプロペニルフェニル)メチル基、2-(3-イソプロペニルフェニル)エチル基などをあげることができる。

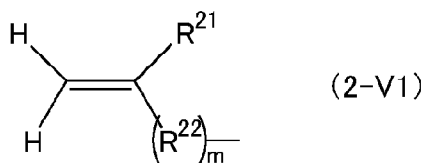
[0111] R^{21} がビニル基であり、 R^{23} 及び R^{24} が水素原子である基として、1-メチレン-2-プロペニル基、2-メチレン-3-ブテニル基をあげることができる。

[0112] R^{21} がフェニル基であり、 R^{23} 及び R^{24} が水素原子である基として、4-(1-フェニルビニル)フェニル基、3-(1-フェニルビニル)フェニル基、2-(1-フェニルビニル)フェニル基などをあげることができる。

[0113] R^{21} が水素原子であり、 R^{23} がメチル基であり、 R^{24} が水素原子である基として、1-プロペニル基、クロチル基、4-(1-プロペニル)フェニル基、4-(1-プロペニル)フェニルメチル基、2-{4-(1-プロペニル)フェニル}エチル基、3-(1-プロペニル)フェニル基、3-(1-プロペニル)フェニルメチル基、2-{3-(1-プロペニル)フェニル}エチル基などをあげることができる。

[0114] 式 (2-V) で表される基としては、好ましくは下記式 (2-V1) で表される基である。

[化30]



(式中、 R^{21} は水素原子又はヒドロカルビル基を表し、 m は0又は1であり、 R^{22} はヒドロカルビレン基を表す。)

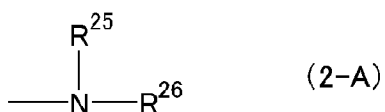
[0115] 式(2-V1)で表される基として好ましくは、 R^{21} が水素原子である基として、ビニル基、4-ビニルフェニル基、3-ビニルフェニル基、(4-ビニルフェニル)メチル基、2-(4-ビニルフェニル)エチル基、(3-ビニルフェニル)メチル基、2-(3-ビニルフェニル)エチル基； R^{21} がメチル基である基として、4-イソプロペニルフェニル基、3-イソプロペニルフェニル基、(4-イソプロペニルフェニル)メチル基、2-(4-イソプロペニルフェニル)エチル基、(3-イソプロペニルフェニル)メチル基、2-(3-イソプロペニルフェニル)エチル基； R^{21} がビニル基である基として、1-メチレン-2-プロペニル基、2-メチレン-3-ブテニル基； R^{21} がフェニル基である基として、4-(1-フェニルビニル)フェニル基である。

[0116] 式(2-V1)で表される基としてより好ましくは、 R^{21} が水素原子であるビニル基、(4-ビニルフェニル)エチル基、(3-ビニルフェニル)エチル基である。

[0117] 式(2)中、 A^2 は、置換アミノ基、又は、含窒素複素環基を表す。

[0118] A^2 の置換アミノ基としては、好ましくは下記式(2-A)で表される基である。

[化31]



(式中、 R^{25} 及び R^{26} は、それぞれ、ヒドロカルビル基、又は、トリヒドロカルビルシリル基、あるいは、 R^{25} と R^{26} とが結合して、窒素原子及び／又

は酸素原子をヘテロ原子として有していてもよいヒドロカルビレン基、又は、 R^{25} と R^{26} は1つの基であって、窒素原子に二重結合で結合する基を表す。）

[0119] R^{25} 及び R^{26} のヒドロカルビル基としては、アルキル基、アルケニル基、アルキニル基、アリール基、アラルキル基をあげることができる。アルキル基としては、メチル基、エチル基、*n*-プロピル基、イソプロピル基、*n*-ブチル基、*sec*-ブチル基、*tert*-ブチル基をあげることができる。アルケニル基としては、ビニル基、アリル基、1-プロペニル基、1-メチルエテニル基をあげることができる。アルキニル基としては、エチニル基、プロパギル基をあげることができる。アリール基としては、フェニル基、トリル基、キシリル基をあげることができる。アラルキル基としては、ベンジル基をあげることができる。

[0120] R^{25} 及び R^{26} のヒドロカルビル基の炭素原子数は、好ましくは1～10であり、より好ましくは1～4であり、更に好ましくは1～2である。

[0121] R^{25} 及び R^{26} のヒドロカルビル基としては、好ましくは、アルキル基、アルケニル基であり、より好ましくは、アルキル基であり、更に好ましくは、直鎖アルキル基である。

[0122] R^{25} 及び R^{26} のトリヒドロカルビルシリル基としては、トリメチルシリル基、トリエチルシリル基、トリイソプロピルシリル基、*tert*-ブチルジメチルシリル基などのトリアルキルシリル基をあげることができる。

[0123] R^{25} 及び R^{26} のトリヒドロカルビルシリル基としては、好ましくは、炭素原子数が3～9のトリアルキルシリル基であり、より好ましくは、ケイ素原子に結合したアルキル基が炭素原子数1～4のアルキル基であるトリアルキルシリル基であり、更に好ましくは、トリメチルシリル基である。

[0124] R^{25} 及び R^{26} が結合した窒素原子及び／又は酸素原子をヘテロ原子として有していてもよいヒドロカルビレン基としては、ヒドロカルビレン基、窒素原子を有するヒドロカルビレン基、酸素原子を有するヒドロカルビレン基などをあげることができる。ヒドロカルビレン基としては、エチレン基、トリメ

チレン基、テトラメチレン基、ペンタメチレン基、ヘキサメチレン基などのアルキレン基をあげることができる。窒素原子を有するヒドロカルビレン基としては、 $-\text{CH}_2\text{CH}_2-\text{NH}-\text{CH}_2-$ で表される基、 $-\text{CH}_2\text{CH}_2-\text{N}=\text{CH}-$ で表される基、 $-\text{CH}=\text{CH}-\text{N}=\text{CH}-$ で表される基、 $-\text{CH}_2\text{CH}_2-\text{NH}-\text{CH}_2\text{CH}_2-$ で表される基をあげることができる。酸素原子を有するヒドロカルビレン基としては、 $-\text{CH}_2\text{CH}_2-\text{O}-\text{CH}_2\text{CH}_2-$ で表される基をあげることができる。

[0125] R^{25} 及び R^{26} が結合した窒素原子及び／又は酸素原子をヘテロ原子として有していてもよいヒドロカルビレン基の炭素原子数は、好ましくは 2～20 であり、より好ましくは 2～7 であり、更に好ましくは 4～6 である。

[0126] R^{25} 及び R^{26} が結合した窒素原子及び／又は酸素原子をヘテロ原子として有していてもよいヒドロカルビレン基としては、好ましくはヒドロカルビレン基であり、より好ましくはアルキレン基であり、更に好ましくはポリメチレン基である。

[0127] R^{25} 及び R^{26} が窒素原子に二重結合で結合する 1 つの基としては、エチリデン基、プロピリデン基、ブチリデン基、1-メチルエチリデン基、1-メチルプロピリデン基、1,3-ジメチルブチリデン基などのヒドロカルビリデン基をあげることができる。

[0128] R^{25} 及び R^{26} が窒素原子に二重結合で結合する 1 つの基の炭素原子数は、好ましくは 2～20 であり、より好ましくは 2～6 である。

[0129] R^{25} 及び R^{26} としては、好ましくは、ヒドロカルビル基、トリヒドロカルビルシリル基、 R^{25} 及び R^{26} とが結合したヒドロカルビレン基である。

[0130] 式 (2-A) で表される基としては、非環状アミノ基、環状アミノ基をあげることができる。

[0131] 非環状アミノ基としては、ジアルキルアミノ基、ビス(トリアルキルシリル)アミノ基をあげることができる。ジアルキルアミノ基としては、ジメチルアミノ基、ジエチルアミノ基、ジ(n-プロピル)アミノ基、ジ(イソプロピル)アミノ基、ジ(n-ブチル)アミノ基、ジ(sec-ブチル)アミノ

基、ジ（*tert*-ブチル）アミノ基、エチルメチルアミノ基をあげることができる。ビス（トリアルキルシリル）アミノ基としては、ビス（トリメチルシリル）アミノ基、ビス（*tert*-ブチルジメチルシリル）アミノ基をあげることができる。

[0132] 非環状アミノ基としては、更に、エチリデンアミノ基、1-メチルプロピリデンアミノ基、1,3-ジメチルブチリデンアミノ基、1-メチルエチリデンアミノ基、4-N,N-ジメチルアミノベンジリデンアミノ基をあげることができる。

[0133] 環状アミノ基としては、1-アジリジニル基、1-アゼチジニル基、1-ピロリジニル基、1-ピペリジニル基、1-ヘキサメチレンイミノ基、1-イミダゾリル基、4,5-ジヒドロ-1-イミダゾリル基、1-ピロリル基、1-ピラゾリル基、1-イミダゾリジニル基、1-ピペラジニル基、モルホリノ基をあげることができる。

[0134] 式（2-A）で表される基としては、好ましくは、 R^{25} 及び R^{26} がヒドロカルビル基である基、 R^{25} 及び R^{26} がトリヒドロカルビルシリル基である基、 R^{25} 及び R^{26} が結合したヒドロカルビレン基である基である。より好ましくは、 R^{25} 及び R^{26} が直鎖アルキル基である基、 R^{25} 及び R^{26} がトリアルキルシリル基である基、 R^{25} 及び R^{26} が結合したポリメチレン基である基である。

[0135] 式（2-A）で表される基としては、更に好ましくは、ジメチルアミノ基、ジエチルアミノ基、ジ（*n*-プロピル）アミノ基、ジ（*n*-ブチル）アミノ基、ビス（トリメチルシリル）アミノ基、ビス（*tert*-ブチルジメチルシリル）アミノ基、1-ピロリジニル基、1-ピペリジニル基、1-ヘキサメチレンイミノ基であり、特に好ましくは、1-ピロリジニル基である。

[0136] A^2 の含窒素複素環基としては、含窒素脂肪族複素環基、含窒素芳香族複素環基をあげることができる。本明細書では、含窒素脂肪族複素環基は、含窒素脂肪族複素環を有する化合物の複素環の炭素原子から1つの水素原子を除いた基を表し、含窒素脂肪族複素環は、環を構成するヘテロ原子として窒素原

子を有する脂肪族複素環を表す。また、含窒素芳香族複素環基は、含窒素芳香族複素環を有する化合物の複素環の炭素原子から1つの水素原子を除いた基を表し、含窒素芳香族複素環は、環を構成するヘテロ原子として窒素原子を有する芳香族複素環を表す。

[0137] A^2 の含窒素脂肪族複素環基としては、環を構成するヘテロ原子として窒素原子のみを有する基、環を構成するヘテロ原子として窒素原子と酸素原子を有する基、環を構成するヘテロ原子として窒素原子と硫黄原子を有する基などをあげることができる。

[0138] 環を構成するヘテロ原子として窒素原子のみを有する含窒素脂肪族複素環基としては、アジリジン環を有する基、アゼチジン環を有する基、ピロリジン環を有する基、ピペリジン環を有する基、ヘキサメチレンイミン環を有する基、イミダゾリジン環を有する基、ピペラジン環を有する基、ピラゾリジン環を有する基などをあげることができる。

[0139] アジリジン環を有する基としては、N-アルキル-2-アジリジニル基をあげることができる。

アゼチジン環を有する基としては、N-アルキル-2-アゼチジニル基、N-アルキル-3-アゼチジニル基をあげることができる。

ピロリジン環を有する基としては、N-アルキル-2-ピロリジニル基、N-アルキル-3-ピロリジニル基をあげることができる。

ピペリジン環を有する基としては、N-アルキル-2-ピペリジニル基、N-アルキル-3-ピペリジニル基、N-アルキル-4-ピペリジニル基をあげることができる。

ヘキサメチレンイミン環を有する基としては、N-アルキル-2-ヘキサメチレンイミノ基、N-アルキル-3-ヘキサメチレンイミノ基、N-アルキル-4-ヘキサメチレンイミノ基をあげることができる。

イミダゾリジン環を有する基としては、1,3-ジアルキル-2-イミダゾリジニル基、1,3-ジアルキル-4-イミダゾリジニル基をあげることができる。

ピペラジン環を有する基としては、1, 4-ジアアルキル-2-ピペラジニル基をあげることができる。

ピラゾリジン環を有する基としては、1, 2-ジアアルキル-3-ピラゾリジニル基、1, 2-ジアアルキル-4-ピラゾリジニル基をあげることができる。

[0140] 環を構成するヘテロ原子として窒素原子と酸素原子を有する含窒素脂肪族複素環基としては、モルホリン環を有する基、イソオキサゾリジン環を有する基などをあげることができる。

[0141] モルホリン環を有する基としては、N-アルキル-2-モルホリノ基、N-アルキル-3-モルホリノ基をあげることができる。

イソオキサゾリジン環を有する基としては、N-アルキル-3-イソオキサゾリジニル基、N-アルキル-4-イソオキサゾリジニル基、N-アルキル-5-イソオキサゾリジニル基をあげることができる。

[0142] 環を構成するヘテロ原子として窒素原子と硫黄原子を有する含窒素脂肪族複素環基としては、チオモルホリン環を有する基、イソチアゾリジン環を有する基をあげることができる。

[0143] チオモルホリン環を有する基としては、N-アルキル-2-チオモルホリノ基、N-アルキル-3-チオモルホリノ基をあげることができる。

イソチアゾリジン環を有する基としては、N-アルキル-3-イソチアゾリジニル基、N-アルキル-4-イソチアゾリジニル基、N-アルキル-5-イソチアゾリジニル基をあげることができる。

[0144] A²の含窒素脂肪族複素環基としては、好ましくは、環を構成するヘテロ原子として窒素原子のみを有する基である。また、含窒素脂肪族複素環基の炭素原子数は、好ましくは4～10である。

[0145] A²の含窒素芳香族複素環基としては、環を構成するヘテロ原子として窒素原子のみを有する基、環を構成するヘテロ原子として窒素原子と酸素原子を有する基、環を構成するヘテロ原子として窒素原子と硫黄原子を有する基などをあげることができる。

[0146] 環を構成するヘテロ原子として窒素原子のみを有する含窒素芳香族複素環基

としては、ピロール環を有する基、イミダゾール環を有する基、ピラゾール環を有する基、プリジン環を有する基、プリダジン環を有する基、プリミジン環を有する基、ピラジン環を有する基、キノリン環を有する基、イソキノリン環を有する基、シンノリン環を有する基、キナゾリン環を有する基、フタラジン環を有する基などをあげることができる。

[0147] ピロール環を有する基としては、2-ピロリル基、3-ピロリル基、2-(N-メチルピロリル)基、3-(N-メチルピロリル)基をあげることができる。

イミダゾール環を有する基としては、2-イミダゾリル基、4-イミダゾリル基、5-イミダゾリル基、2-(N-メチルイミダゾリル)基、4-(N-メチルイミダゾリル)基、5-(N-メチルイミダゾリル)基をあげることができる。

ピラゾール環を有する基としては、3-ピラゾリル基、4-ピラゾリル基、5-ピラゾリル基、3-(N-メチルピラゾリル)基、4-(N-メチルピラゾリル)基、5-(N-メチルピラゾリル)基をあげることができる。

プリジン環を有する基としては、2-プリジル基、3-プリジル基、4-プリジル基をあげることができる。

プリダジン環を有する基としては、3-プリダジル基、4-プリダジル基をあげることができる。

プリミジン環を有する基としては、2-プリミジル基、4-プリミジル基、5-プリミジル基をあげることができる。

ピラジン環を有する基としては、2-ピラジル基をあげることができる。

キノリン環を有する基としては、2-キノリル基、3-キノリル基、4-キノリル基、5-キノリル基、6-キノリル基、7-キノリル基、8-キノリル基をあげることができる。

イソキノリン環を有する基としては、1-イソキノリル基、3-イソキノリル基、4-イソキノリル基、5-イソキノリル基、6-イソキノリル基、7-イソキノリル基、8-イソキノリル基をあげることができる。

シンノリン環を有する基としては、3-シンノリニル基、4-シンノリニル基、5-シンノリニル基、6-シンノリニル基、7-シンノリニル基、8-シンノリニル基をあげることができる。

キナゾリン環を有する基としては、2-キナゾリニル基、4-キナゾリニル基、5-キナゾリニル基、6-キナゾリニル基、7-キナゾリニル基、8-キナゾリニル基をあげることができる。

フタラジン環を有する基としては、1-フタラジニル基、5-フタラジニル基、6-フタラジニル基をあげることができる。

環を構成するヘテロ原子として窒素原子のみを有する含窒素芳香族複素環基としては、好ましくは、イミダゾール環を有する基、ピリジン環を有する基、キノリン環を有する基である。

[0148] 環を構成するヘテロ原子として窒素原子と酸素原子を有する含窒素芳香族複素環基としては、オキサゾール環を有する基、イソオキサゾール環を有する基をあげることができる。

[0149] オキサゾール環を有する基としては、2-オキサゾリル基、4-オキサゾリル基、5-オキサゾリル基をあげることができる。

イソオキサゾール環を有する基としては、3-イソオキサゾリル基、4-イソオキサゾリル基、5-イソオキサゾリル基をあげることができる。

環を構成するヘテロ原子として窒素原子と酸素原子を有する含窒素芳香族複素環基としては、好ましくは、オキサゾール環を有する基である。

[0150] 環を構成するヘテロ原子として窒素原子と硫黄原子を有する含窒素芳香族複素環基としては、チアゾール環を有する基、イソチアゾール環を有する基などをあげることができる。

[0151] チアゾール環を有する基としては、2-チアゾリル基、4-チアゾリル基、5-チアゾリル基をあげることができる。

イソチアゾール環を有する基としては、3-イソチアゾリル基、4-イソチアゾリル基、5-イソチアゾリル基をあげることができる。

環を構成するヘテロ原子として窒素原子と硫黄原子を有する含窒素芳香族複

素環基としては、好ましくは、チアゾール環を有する基である。

[0152] A^2 の含窒素芳香族複素環基としては、好ましくは、環を構成するヘテロ原子として窒素原子のみを有する含窒素芳香族複素環基であり、より好ましくは、イミダゾール環を有する基、ピリジン環を有する基、キノリン環を有する基であり、更に好ましくはピリジン環を有する基である。

[0153] 式(2)で表される化合物としては、 V^2 が式(2-V1)で表される基であり、式(2-V1)中の R^{21} が水素原子であり、 m が0であり、 A^2 が置換アミノ基である化合物として、次の化合物をあげることができる。

[0154] 1-ビニルピロリジン、
1-ビニルピペリジン、
1-ビニルヘキサメチレンイミン、
1-ビニルピペラジン、
1-ビニルピロール、
1-ビニルイミダゾール、
1-ビニルピラゾール、
1-ビニルキノリン。

[0155] 式(2)で表される化合物としては、 V^2 が式(2-V1)で表される基であり、式(2-V1)中の R^{21} が水素原子であり、 m が1であり、 R^{22} がフェニレン基であり、 A^2 が置換アミノ基である化合物として、次の化合物をあげることができる。

[0156] 4-N, N-ジメチルアミノスチレン、
4-N, N-ジエチルアミノスチレン、
4-N, N-ジー n -プロピルアミノスチレン、
4-N, N-ジー n -ブチルアミノスチレン、
4-N, N-ジアリルアミノスチレン、
4-N, N-ビス(トリメチルシリル)アミノスチレン、
4-N, N-ビス(tert-ブチルジメチルシリル)アミノスチレン、
4-(1-アジリジニル)スチレン、

4 - (1 - ピロリジニル) スチレン、
 4 - (1 - ピペリジニル) スチレン、
 4 - (1 - ヘキサメチレンイミノ) スチレン、
 3 - N, N - ジメチルアミノスチレン、
 3 - N, N - ジエチルアミノスチレン、
 3 - N, N - ジ - n - プロピルアミノスチレン、
 3 - N, N - ジ - n - ブチルアミノスチレン、
 3 - N, N - ジアリルアミノスチレン、
 3 - N, N - ビス (トリメチルシリル) アミノスチレン、
 3 - N, N - ビス (tert - ブチルジメチルシリル) アミノスチレン、
 3 - (1 - アジリジニル) スチレン、
 3 - (1 - ピロリジニル) スチレン、
 3 - (1 - ピペリジニル) スチレン、
 3 - (1 - ヘキサメチレンイミノ) スチレン。

[0157] 式 (2) で表される化合物としては、 V^2 が式 (2 - V 1) で表される基であり、式 (2 - V 1) 中の R^{21} が水素原子であり、 m が 1 であり、 R^{22} が式 (2 - R a) で表される基であり、 A^2 が置換アミノ基である化合物として、次の化合物をあげることができる。

[0158] 式 (2 - R a) の i が 1 である化合物：

4 - N, N - ジメチルアミノメチルスチレン、
 4 - N, N - ジエチルアミノメチルスチレン、
 4 - N, N - ジ - n - プロピルアミノメチルスチレン、
 4 - N, N - ジ - n - ブチルアミノメチルスチレン、
 4 - N, N - ジアリルアミノメチルスチレン、
 4 - N, N - ビス (トリメチルシリル) アミノメチルスチレン、
 4 - N, N - ビス (tert - ブチルジメチルシリル) アミノメチルスチレン、
 4 - (1 - アジリジニル) メチルスチレン、

- 4 - (1 - ピロリジニル) メチルスチレン、
- 4 - (1 - ピペリジニル) メチルスチレン、
- 4 - (1 - ヘキサメチレンイミノ) メチルスチレン。

[0159] 式 (2 - R a) の i が 2 である化合物：

- 4 - N, N - ジメチルアミノエチルスチレン、
- 4 - N, N - ジエチルアミノエチルスチレン、
- 4 - N, N - ジ - n - プロピルアミノエチルスチレン、
- 4 - N, N - ジ - n - ブチルアミノエチルスチレン、
- 4 - N, N - ジアリルアミノエチルスチレン、
- 4 - N, N - ビス (トリメチルシリル) アミノエチルスチレン、
- 4 - N, N - ビス (tert - ブチルジメチルシリル) アミノエチルスチレン、
- 4 - (1 - アジリジニル) エチルスチレン、
- 4 - (1 - ピペリジニル) エチルスチレン、
- 4 - (1 - ピロリジニル) エチルスチレン、
- 4 - (1 - ヘキサメチレンイミノ) エチルスチレン。

[0160] 式 (2) で表される化合物としては、 V^2 が式 (2 - V 1) で表される基であり、式 (2 - V 1) 中の R^{21} が水素原子であり、m が 1 であり、 R^{22} が式 (2 - R b) で表される基であり、 A^2 が置換アミノ基である化合物として、次の化合物をあげることができる。

[0161] 式 (2 - R b) の j が 1 である化合物：

- 3 - N, N - ジメチルアミノメチルスチレン、
- 3 - N, N - ジエチルアミノメチルスチレン、
- 3 - N, N - ジ - n - プロピルアミノメチルスチレン、
- 3 - N, N - ジ - n - ブチルアミノメチルスチレン、
- 3 - N, N - ジアリルアミノメチルスチレン、
- 3 - N, N - ビス (トリメチルシリル) アミノメチルスチレン、
- 3 - N, N - ビス (tert - ブチルジメチルシリル) アミノメチルスチレン

ン、

- 3- (1-アジリジニル) メチルスチレン、
- 3- (1-ピロリジニル) メチルスチレン、
- 3- (1-ピペリジニル) メチルスチレン、
- 3- (1-ヘキサメチレンイミノ) メチルスチレン。

[0162] 式 (2-R b) の j が 2 である化合物：

- 3-N, N-ジメチルアミノエチルスチレン、
- 3-N, N-ジエチルアミノエチルスチレン、
- 3-N, N-ジー n-プロピルアミノエチルスチレン、
- 3-N, N-ジー n-ブチルアミノエチルスチレン、
- 3-N, N-ジアリルアミノエチルスチレン、
- 3-N, N-ビス (トリメチルシリル) アミノエチルスチレン、
- 3-N, N-ビス (tert-ブチルジメチルシリル) アミノエチルスチレン、
- 3- (1-アジリジニル) エチルスチレン、
- 3- (1-ピペリジニル) エチルスチレン、
- 3- (1-ピロリジニル) エチルスチレン、
- 3- (1-ヘキサメチレンイミノ) エチルスチレン。

[0163] 式 (2) で表される化合物としては、 V^2 が式 (2-V 1) で表される基であり、式 (2-V 1) 中の R^{21} がメチル基であり、m が 0 であり、 A^2 が置換アミノ基である化合物として、次の化合物をあげることができる。

- [0164] 1-イソプロペニルピロリジン、
1-イソプロペニルピペリジン、
1-イソプロペニルヘキサメチレンイミン、
1-イソプロペニルピペラジン、
1-イソプロペニルピロール、
1-イソプロペニルイミダゾール、
1-イソプロペニルピラゾール、

イソプロペニルキノリン。

[0165] 式(2)で表される化合物としては、 V^2 が式(2-V1)で表される基であり、式(2-V1)中の R^{21} がメチル基であり、 m が1であり、 R^{22} がフェニレン基であり、 A^2 が置換アミノ基である化合物として、次の化合物をあげることができる。

[0166] 4-N, N-ジメチルアミノイソプロペニルベンゼン、
4-N, N-ジエチルアミノイソプロペニルベンゼン、
4-N, N-ジー n -プロピルアミノイソプロペニルベンゼン、
4-N, N-ジー n -ブチルアミノイソプロペニルベンゼン、
4-N, N-ジアリルアミノイソプロペニルベンゼン、
4-N, N-ビス(トリメチルシリル)アミノイソプロペニルベンゼン、
4-N, N-ビス(*tert*-ブチルジメチルシリル)アミノイソプロペニルベンゼン、4-(1-アジリジニル)イソプロペニルベンゼン、
4-(1-ピロリジニル)イソプロペニルベンゼン、
4-(1-ピペリジニル)イソプロペニルベンゼン、
4-(1-ヘキサメチレンイミノ)イソプロペニルベンゼン、
3-N, N-ジメチルアミノイソプロペニルベンゼン、
3-N, N-ジエチルアミノイソプロペニルベンゼン、
3-N, N-ジー n -プロピルアミノイソプロペニルベンゼン、
3-N, N-ジー n -ブチルアミノイソプロペニルベンゼン、
3-N, N-ジアリルアミノイソプロペニルベンゼン、
3-N, N-ビス(トリメチルシリル)アミノイソプロペニルベンゼン、
3-N, N-ビス(*tert*-ブチルジメチルシリル)アミノイソプロペニルベンゼン、3-(1-アジリジニル)イソプロペニルベンゼン、
3-(1-ピロリジニル)イソプロペニルベンゼン、
3-(1-ピペリジニル)イソプロペニルベンゼン、
3-(1-ヘキサメチレンイミノ)イソプロペニルベンゼン。

[0167] 式(2)で表される化合物としては、 V^2 が式(2-V1)で表される基であ

り、式 (2-V1) 中の R^{21} がメチル基であり、 m が 1 であり、 R^{22} が式 (2-Ra) で表される基であり、 A^2 が置換アミノ基である化合物として、次の化合物をあげることができる。

[0168] 式 (2-Ra) の i が 1 である化合物：

4-N, N-ジメチルアミノメチルイソプロペニルベンゼン、
4-N, N-ジエチルアミノメチルイソプロペニルベンゼン、
4-N, N-ジー n-プロピルアミノメチルイソプロペニルベンゼン、
4-N, N-ジー n-ブチルアミノメチルイソプロペニルベンゼン、
4-N, N-ジアリルアミノメチルイソプロペニルベンゼン、
4-N, N-ビス (トリメチルシリル) アミノメチルイソプロペニルベンゼン、
4-N, N-ビス (tert-ブチルジメチルシリル) アミノメチルイソプロペニルベンゼン、
4- (1-アジリジニル) メチルイソプロペニルベンゼン、
4- (1-ピロリジニル) メチルイソプロペニルベンゼン、
4- (1-ピペリジニル) メチルイソプロペニルベンゼン、
4- (1-ヘキサメチレンイミノ) メチルイソプロペニルベンゼン。

[0169] 式 (2-Ra) の i が 2 である化合物：

4-N, N-ジメチルアミノエチルイソプロペニルベンゼン、
4-N, N-ジエチルアミノエチルイソプロペニルベンゼン、
4-N, N-ジー n-プロピルアミノエチルイソプロペニルベンゼン、
4-N, N-ジー n-ブチルアミノエチルイソプロペニルベンゼン、
4-N, N-ジアリルアミノエチルイソプロペニルベンゼン、
4-N, N-ビス (トリメチルシリル) アミノエチルイソプロペニルベンゼン、
4-N, N-ビス (tert-ブチルジメチルシリル) アミノエチルイソプロペニルベンゼン、
4- (1-アジリジニル) エチルイソプロペニルベンゼン、

- 4 - (1 - ピロリジニル) エチルイソプロペニルベンゼン、
- 4 - (1 - ピペリジニル) エチルイソプロペニルベンゼン、
- 4 - (1 - ヘキサメチレンイミノ) エチルイソプロペニルベンゼン。

[0170] 式 (2) で表される化合物としては、 V^2 が式 (2 - V 1) で表される基であり、式 (2 - V 1) 中の R^{21} がメチル基であり、 m が 1 であり、 R^{22} が式 (2 - R b) で表される基であり、 A^2 が置換アミノ基である化合物として、次の化合物をあげることができる。

[0171] 式 (2 - R b) の j が 1 である化合物：

- 3 - N, N - ジメチルアミノメチルイソプロペニルベンゼン、
- 3 - N, N - ジエチルアミノメチルイソプロペニルベンゼン、
- 3 - N, N - ジ - n - プロピルアミノメチルイソプロペニルベンゼン、
- 3 - N, N - ジ - n - ブチルアミノメチルイソプロペニルベンゼン、
- 3 - N, N - ジアリルアミノメチルイソプロペニルベンゼン、
- 3 - N, N - ビス (トリメチルシリル) アミノメチルイソプロペニルベンゼン、
- 3 - N, N - ビス (tert - ブチルジメチルシリル) アミノメチルイソプロペニルベンゼン、
- 3 - (1 - アジリジニル) メチルイソプロペニルベンゼン、
- 3 - (1 - ピロリジニル) メチルイソプロペニルベンゼン、
- 3 - (1 - ピペリジニル) メチルイソプロペニルベンゼン、
- 3 - (1 - ヘキサメチレンイミノ) メチルイソプロペニルベンゼン。

[0172] 式 (2 - R b) の j が 2 である化合物：

- 3 - N, N - ジメチルアミノエチルイソプロペニルベンゼン、
- 3 - N, N - ジエチルアミノエチルイソプロペニルベンゼン、
- 3 - N, N - ジ - n - プロピルアミノエチルイソプロペニルベンゼン、
- 3 - N, N - ジ - n - ブチルアミノエチルイソプロペニルベンゼン、
- 3 - N, N - ジアリルアミノエチルイソプロペニルベンゼン、
- 3 - N, N - ビス (トリメチルシリル) アミノエチルイソプロペニルベンゼン、

ン、

3-N, N-ビス (tert-ブチルジメチルシリル) アミノエチルイソプロペニルベンゼン、

3-(1-アジリジニル) エチルイソプロペニルベンゼン、

3-(1-ピロリジニル) エチルイソプロペニルベンゼン、

3-(1-ピペリジニル) エチルイソプロペニルベンゼン、

3-(1-ヘキサメチレンイミノ) エチルイソプロペニルベンゼン。

[0173] 式(2)で表される化合物としては、 V^2 が式(2-V1)で表される基であり、式(2-V1)中の R^{21} がビニル基であり、 m が0であり、 A^2 が置換アミノ基である化合物として、次の化合物をあげることができる。

[0174] 2-N, N-ジメチルアミノ-1, 3-ブタジエン、

2-N, N-ジエチルアミノ-1, 3-ブタジエン、

2-N, N-ジー-n-プロピルアミノ-1, 3-ブタジエン、

2-N, N-ジー-n-ブチルアミノ-1, 3-ブタジエン、

2-N, N-ジアリルアミノ-1, 3-ブタジエン、

2-N, N-ビス(トリメチルシリル)アミノ-1, 3-ブタジエン、

2-N, N-ビス(tert-ブチルジメチルシリル)アミノ-1, 3-ブタジエン、

2-(1-アジリジニル)-1, 3-ブタジエン、

2-(1-ピロリジニル)-1, 3-ブタジエン、

2-(1-ピペリジニル)-1, 3-ブタジエン、

2-(1-ヘキサメチレンイミノ)-1, 3-ブタジエン、

2-(1-ピロリル)-1, 3-ブタジエン、

2-(1-イミダゾリル)-1, 3-ブタジエン、

2-(1-ピラゾリル)-1, 3-ブタジエン。

[0175] 式(2)で表される化合物としては、 V^2 が式(2-V1)で表される基であり、式(2-V1)中の R^{21} がビニル基であり、 m が1であり、 R^{22} がアルキレン基であり、 A^2 が置換アミノ基である化合物として、次の化合物をあげ

ることができる。

[0176] R^{22} がメチレン基である化合物：

2-N, N-ジメチルアミノメチル-1, 3-ブタジエン、
2-N, N-ジエチルアミノメチル-1, 3-ブタジエン、
2-N, N-ジー n-プロピルアミノメチル-1, 3-ブタジエン、
2-N, N-ジー n-ブチルアミノメチル-1, 3-ブタジエン、
2-N, N-ジアリルアミノメチル-1, 3-ブタジエン、
2-N, N-ビス(トリメチルシリル)アミノメチル-1, 3-ブタジエン、
、
2-N, N-ビス(t e r t-ブチルジメチルシリル)アミノメチル-1, 3-ブタジエン、
2-(1-アジリジニル)メチル-1, 3-ブタジエン、
2-(1-ピロリジニル)メチル-1, 3-ブタジエン、
2-(1-ピペリジニル)メチル-1, 3-ブタジエン、
2-(1-ヘキサメチレンイミノ)メチル-1, 3-ブタジエン、
1-(2-メチレン-3-ブテニル)ピロール、
1-(2-メチレン-3-ブテニル)イミダゾール、
1-(2-メチレン-3-ブテニル)ピラゾール。

[0177] R^{22} がエチレン基である化合物：

5-N, N-ジメチルアミノ-3-メチレン-1-ペンテン、
5-N, N-ジエチルアミノ-3-メチレン-1-ペンテン、
5-N, N-ジー n-プロピルアミノ-3-メチレン-1-ペンテン、
5-N, N-ジー n-ブチルアミノ-3-メチレン-1-ペンテン、
5-N, N-ジアリルアミノ-3-メチレン-1-ペンテン、
5-N, N-ビス(トリメチルシリル)アミノ-3-メチレン-1-ペンテン、
、
5-N, N-ビス(t e r t-ブチルジメチルシリル)アミノ-3-メチレン-1-ペンテン、

5 - (1 - アジリジニル) - 3 - メチレン - 1 - ペンテン、
 5 - (1 - ピロリジニル) - 3 - メチレン - 1 - ペンテン、
 5 - (1 - ピペリジニル) - 3 - メチレン - 1 - ペンテン、
 5 - (1 - ヘキサメチレンイミノ) - 3 - メチレン - 1 - ペンテン、
 1 - (3 - メチレン - 4 - ペンテニル) ピロール、
 1 - (3 - メチレン - 4 - ペンテニル) イミダゾール、
 1 - (3 - メチレン - 4 - ペンテニル) ピラゾール。

[0178] 式 (2) で表される化合物としては、 V^2 が式 (2 - V 1) で表される基であり、式 (2 - V 1) 中の R^{21} がフェニル基であり、 m が 1 であり、 R^{22} がフェニレン基であり、 A^2 が置換アミノ基である化合物として、次の化合物をあげることができる。

[0179] 1 - (4 - N, N - ジメチルアミノフェニル) - 1 - フェニルエチレン、
 1 - (4 - N, N - ジエチルアミノフェニル) - 1 - フェニルエチレン、
 1 - (4 - N, N - ジプロピルアミノフェニル) - 1 - フェニルエチレン、
 1 - (4 - N, N - ジイソプロピルアミノフェニル) - 1 - フェニルエチレン、
 1 - (4 - N, N - ジブチルアミノフェニル) - 1 - フェニルエチレン、
 1 - (4 - N, N - ジイソブチルアミノフェニル) - 1 - フェニルエチレン、
 1 - (4 - N, N - ジ (t e r t - ブチル) アミノフェニル) - 1 - フェニルエチレン、
 1 - (4 - N, N - ジフェニルアミノフェニル) - 1 - フェニルエチレン、
 1 - (4 - (1 - アジリジニル) フェニル) - 1 - フェニルエチレン、
 1 - (4 - (1 - ピロリジニル) フェニル) - 1 - フェニルエチレン、
 1 - (4 - (1 - ピペリジニル) フェニル) - 1 - フェニルエチレン、
 1 - (4 - ヘキサメチレンイミノフェニル) - 1 - フェニルエチレン、
 1 - (4 - モルホリノフェニル) - 1 - フェニルエチレン、
 1 - (4 - (N, N - ビス (トリメチルシリル) アミノ) フェニル) - 1 -

フェニルエチレン、

1 - (4 - (N, N - ビス (t e r t - ブチルジメチルシリル) アミノ) フェニル) - 1 - フェニルエチレン、

1 - (4 - (N, N - ビス (トリイソプロピルシリル) アミノ) フェニル) - 1 - フェニルエチレン、

1 - (3 - N, N - ジメチルアミノフェニル) - 1 - フェニルエチレン、

1 - (3 - N, N - ジエチルアミノフェニル) - 1 - フェニルエチレン、

1 - (3 - N, N - ジプロピルアミノフェニル) - 1 - フェニルエチレン、

1 - (3 - N, N - ジイソプロピルアミノフェニル) - 1 - フェニルエチレン、

1 - (3 - N, N - ジブチルアミノフェニル) - 1 - フェニルエチレン、

1 - (3 - N, N - ジイソブチルアミノフェニル) - 1 - フェニルエチレン

、

1 - (3 - N, N - ジ (t e r t - ブチル) アミノフェニル) - 1 - フェニルエチレン、1 - (3 - N, N - ジフェニルアミノフェニル) - 1 - フェニルエチレン、

1 - (3 - (1 - アジリジニル) フェニル) - 1 - フェニルエチレン、

1 - (3 - (1 - ピロリジニル) フェニル) - 1 - フェニルエチレン、

1 - (3 - (1 - ピペリジニル) フェニル) - 1 - フェニルエチレン、

1 - (3 - ヘキサメチレンイミノフェニル) - 1 - フェニルエチレン、

1 - (3 - モルホリノフェニル) - 1 - フェニルエチレン、

1 - (3 - (N, N - ビス (トリメチルシリル) アミノ) フェニル) - 1 - フェニルエチレン、

1 - (3 - (N, N - ビス (t e r t - ブチルジメチルシリル) アミノフェニル) - 1 - フェニルエチレン、

1 - (3 - (N, N - ビス (トリイソプロピルシリル) アミノ) フェニル) - 1 - フェニルエチレン。

[0180] 式 (2) で表される化合物としては、 V^2 が式 (2 - V 1) で表される基であ

り、式(2-V1)中の R^{21} がフェニル基であり、 m が1であり、 R^{22} が式(2-Ra)で表される基であり、 A^2 が置換アミノ基である化合物として、次の化合物をあげることができる。

[0181] 式(2-Ra)の i が1である化合物：

1-(4-N, N-ジメチルアミノメチルフェニル)-1-フェニルエチレン、

1-(4-N, N-ジエチルアミノメチルフェニル)-1-フェニルエチレン、

1-(4-N, N-ジプロピルアミノメチルフェニル)-1-フェニルエチレン、

1-(4-N, N-ジイソプロピルアミノメチルフェニル)-1-フェニルエチレン、

1-(4-N, N-ジブチルアミノメチルフェニル)-1-フェニルエチレン、

1-(4-N, N-ジイソブチルアミノメチルフェニル)-1-フェニルエチレン、

1-(4-N, N-ジ(*tert*-ブチル)アミノメチルフェニル)-1-フェニルエチレン、

1-(4-N, N-ジフェニルアミノメチルフェニル)-1-フェニルエチレン、

1-(4-(1-アジリジニルメチル)フェニル)-1-フェニルエチレン、

1-(4-(1-ピロリジニルメチル)フェニル)-1-フェニルエチレン、

1-(4-(1-ピペリジニルメチル)フェニル)-1-フェニルエチレン、

1-(4-ヘキサメチレンイミノメチルフェニル)-1-フェニルエチレン、

1 - (4 - モルホリノメチルフェニル) - 1 - フェニルエチレン、
1 - (4 - (N, N - ビス (トリメチルシリル) アミノメチル) フェニル)
- 1 - フェニルエチレン、
1 - (4 - (N, N - ビス (t e r t - ブチルジメチルシリル) アミノ) メ
チルフェニル) - 1 - フェニルエチレン、
1 - (4 - (N, N - ビス (トリイソプロピルシリル) アミノ) メチルフェ
ニル) - 1 - フェニルエチレン。

[0182] 式 (2) で表される化合物としては、 V^2 が式 (2 - V 1) で表される基であ
り、式 (2 - V 1) 中の R^{21} がフェニル基であり、 m が 1 であり、 R^{22} が式
(2 - R b) で表される基であり、 A^2 が置換アミノ基である化合物として、
次の化合物をあげることができる。

[0183] 式 (2 - R b) の j が 1 である化合物：

1 - (3 - N, N - ジメチルアミノメチルフェニル) - 1 - フェニルエチレ
ン、
1 - (3 - N, N - ジエチルアミノメチルフェニル) - 1 - フェニルエチレ
ン、
1 - (3 - N, N - ジプロピルアミノメチルフェニル) - 1 - フェニルエチ
レン、
1 - (3 - N, N - ジイソプロピルアミノメチルフェニル) - 1 - フェニル
エチレン、
1 - (3 - N, N - ジブチルアミノメチルフェニル) - 1 - フェニルエチレ
ン、
1 - (3 - N, N - ジイソブチルアミノメチルフェニル) - 1 - フェニルエ
チレン、
1 - (3 - N, N - ジ (t e r t - ブチル) アミノメチルフェニル) - 1 -
フェニルエチレン、
1 - (3 - N, N - ジフェニルアミノメチルフェニル) - 1 - フェニルエチ
レン、

1 - (3 - (1 - アジリジニルメチル) フェニル) - 1 - フェニルエチレン
 、
 1 - (3 - (1 - ピロリジニルメチル) フェニル) - 1 - フェニルエチレン
 、
 1 - (3 - (1 - ピペリジニルメチル) フェニル) - 1 - フェニルエチレン
 、
 1 - (3 - ヘキサメチレンイミノメチルフェニル) - 1 - フェニルエチレン
 、
 1 - (3 - モルホリノメチルフェニル) - 1 - フェニルエチレン、
 1 - (3 - (N, N - ビス (トリメチルシリル) アミノメチル) フェニル)
 - 1 - フェニルエチレン、
 1 - (3 - (N, N - ビス (tert - ブチルジメチルシリル) アミノメチル
 フェニル) - 1 - フェニルエチレン、
 1 - (3 - (N, N - ビス (トリイソプロピルシリル) アミノ) メチルフェ
 ニル) - 1 - フェニルエチレン。

[0184] 式 (2) で表される化合物としては、 V^2 が式 (2 - V 1) で表される基であり、式 (2 - V 1) 中の R^{21} が水素原子であり、 m が 0 であり、 A^2 が含窒素脂肪族複素環基である化合物として、次の化合物をあげることができる。

[0185] N - メチル - 3 - ビニルピロリジン、
 N - メチル - 4 - ビニルピペリジン、
 N - メチル - 3 - ビニルヘキサメチレンイミン、
 N - メチル - 4 - ビニルヘキサメチレンイミン。

[0186] 式 (2) で表される化合物としては、 V^2 が式 (2 - V 1) で表される基であり、式 (2 - V 1) 中の R^{21} が水素原子であり、 m が 1 であり、 R^{22} がフェニレン基であり、 A^2 が含窒素脂肪族複素環基である化合物として、次の化合物をあげることができる。

[0187] N - メチル - 3 - (4 - ビニルフェニル) ピロリジン、
 N - メチル - 4 - (4 - ビニルフェニル) ピペリジン、

N-メチル-3-(4-ビニルフェニル)ヘキサメチレンイミン、
N-メチル-4-(4-ビニルフェニル)ヘキサメチレンイミン、
N-メチル-3-(3-ビニルフェニル)ピロリジン、
N-メチル-4-(3-ビニルフェニル)ピペリジン、
N-メチル-3-(3-ビニルフェニル)ヘキサメチレンイミン、
N-メチル-4-(3-ビニルフェニル)ヘキサメチレンイミン。

[0188] 式(2)で表される化合物としては、 V^2 が式(2-V1)で表される基であり、式(2-V1)中の R^{21} が水素原子であり、 m が1であり、 R^{22} が式(2-Ra)で表される基であり、 A^2 が含窒素脂肪族複素環基である化合物として、次の化合物をあげることができる。

[0189] 式(2-Ra)の*i*が1である化合物：

N-メチル-3-(4-ビニルフェニルメチル)ピロリジン、
N-メチル-4-(4-ビニルフェニルメチル)ピペリジン、
N-メチル-3-(4-ビニルフェニルメチル)ヘキサメチレンイミン、
N-メチル-4-(4-ビニルフェニルメチル)ヘキサメチレンイミン。

[0190] 式(2-Ra)の*i*が2である化合物：

N-メチル-3-(4-ビニルフェニルエチル)ピロリジン、
N-メチル-4-(4-ビニルフェニルエチル)ピペリジン、
N-メチル-3-(4-ビニルフェニルエチル)ヘキサメチレンイミン、
N-メチル-4-(4-ビニルフェニルエチル)ヘキサメチレンイミン。

[0191] 式(2)で表される化合物としては、 V^2 が式(2-V1)で表される基であり、式(2-V1)中の R^{21} が水素原子であり、 m が1であり、 R^{22} が式(2-Rb)で表される基であり、 A^2 が含窒素脂肪族複素環基である化合物として、次の化合物をあげることができる。

[0192] 式(2-Rb)の*j*が1である化合物：

N-メチル-3-(3-ビニルフェニルメチル)ピロリジン、
N-メチル-4-(3-ビニルフェニルメチル)ピペリジン、
N-メチル-3-(3-ビニルフェニルメチル)ヘキサメチレンイミン、

N-メチル-4-(3-ビニルフェニルメチル)ヘキサメチレンイミン。

[0193] 式(2-R^b)のjが2である化合物:

N-メチル-3-(3-ビニルフェニルエチル)ピロリジン、

N-メチル-4-(3-ビニルフェニルエチル)ピペリジン、

N-メチル-3-(3-ビニルフェニルエチル)ヘキサメチレンイミン、

N-メチル-4-(3-ビニルフェニルエチル)ヘキサメチレンイミン。

[0194] 式(2)で表される化合物としては、V²が式(2-V¹)で表される基であり、式(2-V¹)中のR^{2'1}がメチル基であり、mが0であり、A²が含窒素脂肪族複素環基である化合物として、次の化合物をあげることができる。

[0195] N-メチル-3-イソプロペニルピロリジン、

N-メチル-4-イソプロペニルピペリジン、

N-メチル-3-イソプロペニルヘキサメチレンイミン、

N-メチル-4-イソプロペニルヘキサメチレンイミン。

[0196] 式(2)で表される化合物としては、V²が式(2-V¹)で表される基であり、式(2-V¹)中のR^{2'1}がメチル基であり、mが1であり、R^{2'2}がフェニレン基であり、A²が含窒素脂肪族複素環基である化合物として、次の化合物をあげることができる。

[0197] N-メチル-3-(4-イソプロペニルフェニル)ピロリジン、

N-メチル-4-(4-イソプロペニルフェニル)ピペリジン、

N-メチル-3-(4-イソプロペニルフェニル)ヘキサメチレンイミン、

N-メチル-4-(4-イソプロペニルフェニル)ヘキサメチレンイミン。

[0198] 式(2)で表される化合物としては、V²が式(2-V¹)で表される基であり、式(2-V¹)中のR^{2'1}がメチル基であり、mが1であり、R^{2'2}が式(2-R^a)で表される基であり、A²が含窒素脂肪族複素環基である化合物として、次の化合物をあげることができる。

[0199] 式(2-R^a)のiが1である化合物:

N-メチル-3-(4-イソプロペニルフェニルメチル)ピロリジン、

N-メチル-4-(4-イソプロペニルフェニルメチル)ピペリジン、

N-メチル-3-(4-イソプロペニルフェニルメチル)ヘキサメチレンイミン、

N-メチル-4-(4-イソプロペニルフェニルメチル)ヘキサメチレンイミン。

[0200] 式(2-Ra)のiが2である化合物：

N-メチル-3-(4-イソプロペニルフェニルエチル)ピロリジン、

N-メチル-4-(4-イソプロペニルフェニルエチル)ピペリジン、

N-メチル-3-(4-イソプロペニルフェニルエチル)ヘキサメチレンイミン、

N-メチル-4-(4-イソプロペニルフェニルエチル)ヘキサメチレンイミン。

[0201] 式(2)で表される化合物としては、 V^2 が式(2-V1)で表される基であり、式(2-V1)中の R^{21} がビニル基であり、mが0であり、 A^2 が含窒素脂肪族複素環基である化合物として、次の化合物をあげることができる。

[0202] N-メチル-3-(1-メチレン-2-プロペニル)ピロリジン、

N-メチル-4-(1-メチレン-2-プロペニル)ピペリジン、

N-メチル-3-(1-メチレン-2-プロペニル)ヘキサメチレンイミン、

N-メチル-4-(1-メチレン-2-プロペニル)ヘキサメチレンイミン。

[0203] 式(2)で表される化合物としては、 V^2 が式(2-V1)で表される基であり、式(2-V1)中の R^{21} がビニル基であり、mが1であり、 R^{22} がアルキレン基であり、 A^2 が含窒素脂肪族複素環基である化合物として、次の化合物をあげることができる。

[0204] R^{22} がメチレン基である化合物：

N-メチル-3-(2-メチレン-3-ブテニル)ピロリジン、

N-メチル-4-(2-メチレン-3-ブテニル)ピペリジン、

N-メチル-3-(2-メチレン-3-ブテニル)ヘキサメチレンイミン、

N-メチル-4-(2-メチレン-3-ブテニル)ヘキサメチレンイミン。

[0205] R^{22} がエチレン基である化合物：

N-メチル-3-(3-メチレン-4-ペンテニル)ピロリジン、

N-メチル-4-(3-メチレン-4-ペンテニル)ピペリジン、

N-メチル-3-(3-メチレン-4-ペンテニル)ヘキサメチレンイミン

、

N-メチル-4-(3-メチレン-4-ペンテニル)ヘキサメチレンイミン

。

[0206] 式(2)で表される化合物としては、 V^2 が式(2-V1)で表される基であり、式(2-V1)中の R^{21} がフェニル基であり、 m が1であり、 R^{22} がフェニレン基であり、 A^2 が含窒素脂肪族複素環基である化合物として、次の化合物をあげることができる。

[0207] 1-(4-N-メチル-3-ピロリジノフェニル)-1-フェニルエチレン

、

1-(4-N-メチル-3-ピペリジノフェニル)-1-フェニルエチレン

、

1-(4-N-メチル-4-ピペリジノフェニル)-1-フェニルエチレン

、

1-(4-N-メチル-3-ヘキサメチレンイミノフェニル)-1-フェニルエチレン、

1-(4-N-メチル-4-ヘキサメチレンイミノフェニル)-1-フェニルエチレン、

1-(3-N-メチル-3-ピロリジノフェニル)-1-フェニルエチレン

、

1-(3-N-メチル-3-ピペリジノフェニル)-1-フェニルエチレン

、

1-(3-N-メチル-4-ピペリジノフェニル)-1-フェニルエチレン

、

1 - (3 - N - メチル - 3 - ヘキサメチレンイミノフェニル) - 1 - フェニルエチレン、

1 - (3 - N - メチル - 4 - ヘキサメチレンイミノフェニル) - 1 - フェニルエチレン。

[0208] 式 (2) で表される化合物としては、 V^2 が式 (2 - V 1) で表される基であり、式 (2 - V 1) 中の R^{21} がフェニル基であり、 m が 1 であり、 R^{22} が式 (2 - R a) で表される基であり、 A^2 が含窒素脂肪族複素環基である化合物として、次の化合物をあげることができる。

[0209] 式 (2 - R a) の i が 1 である化合物：

1 - (4 - N - メチル - 3 - ピロリジノメチルフェニル) - 1 - フェニルエチレン、

1 - (4 - N - メチル - 3 - ピペリジノメチルフェニル) - 1 - フェニルエチレン、

1 - (4 - N - メチル - 4 - ピペリジノメチルフェニル) - 1 - フェニルエチレン、

1 - (4 - N - メチル - 3 - ヘキサメチレンイミノメチルフェニル) - 1 - フェニルエチレン。

[0210] 式 (2) で表される化合物としては、 V^2 が式 (2 - V 1) で表される基であり、式 (2 - V 1) 中の R^{21} がフェニル基であり、 m が 1 であり、 R^{22} が式 (2 - R b) で表される基であり、 A^2 が含窒素脂肪族複素環基である化合物として、次の化合物をあげることができる。

[0211] 式 (2 - R b) の j が 1 である化合物：

1 - (3 - N, N - ジメチルアミノメチルフェニル) - 1 - フェニルエチレン、

1 - (3 - N, N - ジエチルアミノメチルフェニル) - 1 - フェニルエチレン、

1 - (3 - N, N - ジプロピルアミノメチルフェニル) - 1 - フェニルエチレン、

1 - (3 - N, N - ジイソプロピルアミノメチルフェニル) - 1 - フェニルエチレン。

[0212] 式 (2) で表される化合物としては、 V^2 が式 (2 - V 1) で表される基であり、式 (2 - V 1) 中の R^{21} が水素原子であり、 m が 0 であり、 A^2 が含窒素芳香族複素環基である化合物として、次の化合物をあげることができる。

[0213] N - メチル - 2 - ビニルイミダゾール、
N - メチル - 4 - ビニルイミダゾール、
N - メチル - 5 - ビニルイミダゾール、
2 - ビニルピリジン、
3 - ビニルピリジン、
4 - ビニルピリジン、
2 - ビニルキノリン、
3 - ビニルキノリン、
4 - ビニルキノリン。

[0214] 式 (2) で表される化合物としては、 V^2 が式 (2 - V 1) で表される基であり、式 (2 - V 1) 中の R^{21} がメチル基であり、 m が 0 であり、 A^2 が含窒素芳香族複素環基である化合物として、次の化合物をあげることができる。

[0215] N - メチル - 2 - イソプロペニルイミダゾール、
N - メチル - 4 - イソプロペニルイミダゾール、
N - メチル - 5 - イソプロペニルイミダゾール、
2 - イソプロペニルピリジン、
3 - イソプロペニルピリジン、
4 - イソプロペニルピリジン、
2 - イソプロペニルキノリン、
3 - イソプロペニルキノリン、
4 - イソプロペニルキノリン。

[0216] 式 (2) で表される化合物としては、 V^2 が式 (2 - V 1) で表される基であり、式 (2 - V 1) 中の R^{21} がビニル基であり、 m が 0 であり、 A^2 が含窒素

芳香族複素環基である化合物として、次の化合物をあげることができる。

[0217] N-メチル-2-(1-メチレン-2-プロペニル)イミダゾール、
N-メチル-4-(1-メチレン-2-プロペニル)イミダゾール、
N-メチル-5-(1-メチレン-2-プロペニル)イミダゾール、
2-(1-メチレン-2-プロペニル)ピリジン、
3-(1-メチレン-2-プロペニル)ピリジン、
4-(1-メチレン-2-プロペニル)ピリジン、
2-(1-メチレン-2-プロペニル)キノリン、
3-(1-メチレン-2-プロペニル)キノリン、
4-(1-メチレン-2-プロペニル)キノリン。

[0218] 式(2)で表される化合物としては、 V^2 が式(2-V1)で表される基であり、式(2-V1)中の R^{21} がビニル基であり、 m が1であり、 R^{22} がアルキレン基であり、 A^2 が含窒素芳香族複素環基である化合物として、次の化合物をあげることができる。

[0219] R^{22} がメチレン基である化合物：

N-メチル-2-(2-メチレン-3-ブテニル)イミダゾール、
N-メチル-4-(2-メチレン-3-ブテニル)イミダゾール、
N-メチル-5-(2-メチレン-3-ブテニル)イミダゾール、
2-(2-メチレン-3-ブテニル)ピリジン、
3-(2-メチレン-3-ブテニル)ピリジン、
4-(2-メチレン-3-ブテニル)ピリジン、
2-(2-メチレン-3-ブテニル)キノリン、
3-(2-メチレン-3-ブテニル)キノリン、
4-(2-メチレン-3-ブテニル)キノリン。

[0220] R^{22} がエチレン基である化合物：

N-メチル-2-(3-メチレン-4-ペンテニル)イミダゾール、
N-メチル-4-(3-メチレン-4-ペンテニル)イミダゾール、
N-メチル-5-(3-メチレン-4-ペンテニル)イミダゾール、

2- (3-メチレン-4-ペンテニル) ピリジン、
3- (3-メチレン-4-ペンテニル) ピリジン、
4- (3-メチレン-4-ペンテニル) ピリジン、
2- (3-メチレン-4-ペンテニル) キノリン、
3- (3-メチレン-4-ペンテニル) キノリン、
4- (3-メチレン-4-ペンテニル) キノリン。

[0221] 共役ジエン系重合体 (A) が化合物 (G) によって変性されている場合、式 (2) で表される化合物としては、好ましくは、 V^2 で表される基が式 (2-V1) で表され、式 (2-V1) 中の R^{21} が水素原子、又は、フェニル基である化合物である。

より好ましくは、

R^{21} が水素原子であり、 m が 1 であり、 R^{22} がフェニレン基であり、 A^2 が式 (2-A) で表される置換アミノ基である化合物；

R^{21} がフェニル基であり、 m が 1 であり、 R^{22} がフェニレン基であり、 A^2 が式 (2-A) で表される置換アミノ基である化合物；

R^{21} が水素原子であり、 m が 1 であり、 R^{22} が式 (2-R) で表される基であり、 A^2 が式 (2-A) で表される置換アミノ基である化合物；

R^{21} がフェニル基であり、 m が 1 であり、 R^{22} が式 (2-R) で表される基であり、 A^2 が式 (2-A) で表される置換アミノ基である化合物；

R^{21} が水素原子であり、 m が 0 であり、 A^2 が含窒素芳香族複素環基である化合物である。

更に好ましくは、

R^{21} が水素原子であり、 m が 1 であり、 R^{22} がパラフェニレン基又はメタフェニレン基であり、 A^2 が式 (2-A) 中の R^{25} 及び R^{26} が炭素原子数 1 ~ 2 の直鎖アルキル基である化合物；

R^{21} が水素原子であり、 m が 1 であり、 R^{22} がパラフェニレン基又はメタフェニレン基であり、 A^2 が式 (2-A) 中の R^{25} 及び R^{26} がトリメチルシリル基である化合物；

R^{21} がフェニル基であり、 m が1であり、 R^{22} がパラフェニレン基又はメタフェニレン基であり、 A^2 が式(2-A)中の R^{25} 及び R^{26} が炭素原子数1～2の直鎖アルキル基である化合物；

R^{21} がフェニル基であり、 m が1であり、 R^{22} がパラフェニレン基又はメタフェニレン基であり、 A^2 が式(2-A)中の R^{25} 及び R^{26} がトリメチルシリル基である化合物；

R^{21} が水素原子であり、 m が1であり、 R^{22} が式(2-Ra)又は(2-Rb)で表される基であり、 A^2 が式(2-A)中の R^{25} 及び R^{26} が炭素原子数1～2の直鎖アルキル基である化合物；

R^{21} が水素原子であり、 m が1であり、 R^{22} が式(2-Ra)又は(2-Rb)で表される基であり、 A^2 が式(2-A)中の R^{25} 及び R^{26} がトリメチルシリル基である化合物；

R^{21} がフェニル基であり、 m が1であり、 R^{22} が式(2-Ra)又は(2-Rb)で表される基であり、 A^2 が式(2-A)中の R^{25} 及び R^{26} が炭素原子数1～2の直鎖アルキル基である化合物；

R^{21} がフェニル基であり、 m が1であり、 R^{22} が式(2-Ra)又は(2-Rb)で表される基であり、 A^2 が式(2-A)中の R^{25} 及び R^{26} がトリメチルシリル基である化合物； m が0であり、 A^2 がピリジル基である化合物である。

[0222] 共役ジエン系重合体(A)が化合物(G)によって変性されている場合、式

(2)で表される化合物としては、特に好ましくは、

4-N, N-ジメチルアミノメチルスチレン、

3-N, N-ジメチルアミノメチルスチレン、

4-N, N-ビス(トリメチルシリル)アミノスチレン、

3-N, N-ビス(トリメチルシリル)アミノスチレン、

1-(4-N, N-ジメチルアミノフェニル)-1-フェニルエチレン、

1-(3-N, N-ジメチルアミノフェニル)-1-フェニルエチレン、

4-ビニルピリジン、

2-ビニルピリジン

である。

[0223] 共役ジエン系重合体 (A) がアルコキシシラン化合物によって変性されている場合、式 (2) で表される化合物としては、好ましくは、 V^2 で表される基が式 (2-V1) で表され、式 (2-V1) 中の R^{21} が水素原子である化合物である。

より好ましくは、 R^{21} が水素原子であり、 m が 1 であり、 R^{22} がフェニレン基であり、 A^2 が式 (2-A) で表される置換アミノ基である化合物； R^{21} が水素原子であり、 m が 1 であり、 R^{22} が式 (2-R) で表される基であり、 A^2 が式 (2-A) で表される置換アミノ基である化合物； R^{21} が水素原子であり、 m が 0 であり、 A^2 が含窒素芳香族複素環基である化合物である。

更に好ましくは、 R^{21} が水素原子であり、 m が 1 であり、 R^{22} がパラフェニレン基又はメタフェニレン基であり、 A^2 が式 (2-A) 中の R^{25} 及び R^{26} が結合したポリメチレン基である化合物； R^{21} が水素原子であり、 m が 1 であり、 R^{22} が式 (2-Ra) 又は (2-Rb) で表される基であり、 A^2 が式 (2-A) 中の R^{25} 及び R^{26} が結合したポリメチレン基である化合物； R^{21} が水素原子であり、 m が 0 であり、 A^2 がピリジル基である化合物である。

[0224] 共役ジエン系重合体 (A) がアルコキシシラン化合物によって変性されている場合、式 (2) で表される化合物としては、特に好ましくは、

3-(1-ピロリジニル)エチルスチレン、

4-(1-ピロリジニル)エチルスチレン、

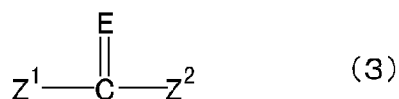
4-ビニルピリジン、

2-ビニルピリジン

である。

[0225] 化合物 (G) としては、下記式 (3) で表される化合物をあげることができる。

[化32]



(式中、Eは、酸素原子又は硫黄原子を表し、Z¹及びZ²は、置換アミノ基、水素原子、置換基を有していてもよいヒドロカルビル基、又は、置換基を有していてもよいヒドロカルビルオキシ基を表し、Z¹及びZ²の少なくとも1つが置換アミノ基を有する基であるか、あるいは、Z¹とZ²とが結合して、置換アミノ基を有する環構造をZ¹とZ²とカルボニル炭素とで形成する基を表す。)

[0226] 式(3)中、Eは、酸素原子又は硫黄原子を表す。好ましくは、酸素原子である。

[0227] 式(3)中、Z¹及びZ²の置換アミノ基としては、ヒドロカルビル基を置換基として有するアミノ基、置換アミノ基を有する基を置換基として有するアミノ基、ヒドロカルビルオキシ基を有する基を置換基として有するアミノ基があげられる。

[0228] ヒドロカルビル基を置換基として有するアミノ基としては、ジメチルアミノ基、ジエチルアミノ基、ジプロピルアミノ基などのジアルキルアミノ基があげられる。

[0229] 置換アミノ基を有する基を置換基として有するアミノ基としては、(ジメチルアミノメチル)アミノ基、(ジメチルアミノエチル)アミノ基、(ジメチルアミノプロピル)アミノ基、(ジエチルアミノプロピル)アミノ基、(ジプロピルアミノプロピル)アミノ基などの(ジアルキルアミノアルキル)アミノ基；ビス(ジメチルアミノエチル)アミノ基、ビス(ジメチルアミノプロピル)アミノ基などのビス(ジアルキルアミノアルキル)アミノ基があげられる。

[0230] ヒドロカルビルオキシ基を有する基を置換基として有するアミノ基としては、(メトキシメチル)アミノ基、(メトキシエチル)アミノ基、(メトキシプロピル)アミノ基、(エトキシメチル)アミノ基などの(アルコキシアル

キル) アミノ基; (フェノキシメチル) アミノ基、(フェノキシエチル) アミノ基などの(アリーロキシアルキル) アミノ基; (ベンジルオキシメチル) アミノ基、(ベンジルオキシエチル) アミノ基などの(アラルキルオキシアルキル) アミノ基があげられる。

[0231] Z^1 及び Z^2 の置換基を有していてもよいヒドロカルビル基としては、ヒドロカルビル基、置換アミノ基を置換基として有するヒドロカルビル基、ヒドロカルビルオキシ基を置換基として有するヒドロカルビル基があげられる。

[0232] ヒドロカルビル基としては、メチル基、エチル基、*n*-プロピル基、イソプロピル基、*n*-ブチル基などのアルキル基; シクロヘキシル基などのシクロアルキル基; フェニル基、メチルフェニル基、エチルフェニル基などのアリール基; ベンジル基などのアラルキル基; ビニル基、1-プロペニル基、アリル基、イソプロペニル基、クロチル基、イソクロチル基、メタリル基などのアルケニル基; プロパルギル基などのアルキニル基があげられる。

[0233] 置換アミノ基を置換基として有するヒドロカルビル基としては、ヒドロカルビル置換アミノ基を置換基として有するヒドロカルビル基があげられる。ヒドロカルビル置換アミノ基を置換基として有するヒドロカルビル基としては、ジメチルアミノメチル基、ジメチルアミノエチル基、ジメチルアミノプロピル基などのジアルキルアミノアルキル基; ジメチルアミノフェニル基、ジエチルアミノフェニル基などのジアルキルアミノアリール基があげられる。

[0234] ヒドロカルビルオキシ基を置換基として有するヒドロカルビル基としては、メトキシメチル基、メトキシエチル基、メトキシプロピル基、エトキシメチル基などのアルコキシアルキル基; フェノキシメチル基、フェノキシエチル基などのアリーロキシアルキル基; ベンジルオキシメチル基、ベンジルオキシエチル基などのアラルキルオキシアルキル基があげられる。

[0235] Z^1 及び Z^2 の置換基を有していてもよいヒドロカルビルオキシ基としては、ヒドロカルビルオキシ基、置換基としてヒドロカルビルオキシ基を有するヒドロカルビルオキシ基、置換アミノ基を置換基として有するヒドロカルビルオキシ基があげられる。

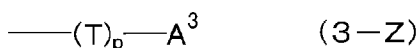
[0236] ヒドロカルビルオキシ基としては、メトキシ基、エトキシ基、*n*-プロポキシ基、イソプロポキシ基、ブトキシ基などのアルコキシ基；フェノキシ基、メチルフェノキシ基、エチルフェノキシ基などのアリールオキシ基；ベンジルオキシ基などのアラルキルオキシ基などがあげられる。

[0237] ヒドロカルビルオキシ基を置換基として有するヒドロカルビルオキシ基としては、メトキシメトキシ基、メトキシエトキシ基、メトキシプロポキシ基、エトキシメトキシ基などのアルコキシアルコキシ基；フェノキシメトキシ基、フェノキシエトキシ基などのアリールオキシアルコキシ基；ベンジルオキシメトキシ基、ベンジルオキシエトキシ基などのアラルキルオキシアルコキシ基があげられる。

[0238] 置換アミノ基を置換基として有するヒドロカルビルオキシ基としては、ヒドロカルビル置換アミノ基を置換基として有するヒドロカルビルオキシ基があげられる。ヒドロカルビル置換アミノ基を置換基として有するヒドロカルビルオキシ基としては、ジメチルアミノメトキシ基、ジメチルアミノエトキシ基、ジメチルアミノプロポキシ基などのジアルキルアミノアルコキシ基があげられる。

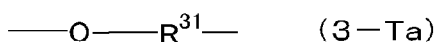
[0239] 置換アミノ基を有する基としては、好ましくは、下記式（3-Z）で表される基があげられる。

[化33]



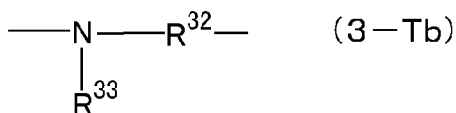
（式中、*p*は0又は1であり、Tは炭素原子数1～10のヒドロカルビレン基、下記式（3-Ta）で表される基、又は、下記式（3-Tb）で表される基を表し、A³は置換アミノ基を表す。）

[化34]



（式中、R³¹は炭素原子数1～10のヒドロカルビレン基を表し、R³¹がA³と結合する。）

[化35]



(式中、 R^{32} は炭素原子数1～10のヒドロカルビレン基を表し、 R^{33} は水素原子又は炭素原子数1～10のヒドロカルビル基を表し、 R^{32} が A^3 と結合する。)

[0240] 式(3)の Z^1 が式(3-Z)で表される基であり、 Z^2 がヒドロカルビル基である場合、 Z^1 の A^3 と Z^2 のヒドロカルビル基とは結合していてもよい。また、式(3)の Z^1 及び Z^2 が式(3-Z)で表される基である場合、 Z^1 の A^3 と Z^2 の A^3 とは結合していてもよい。

[0241] 式(3-Z)において、 p は0又は1を表す。

[0242] 式(3-Z)中、 T は、炭素原子数1～10のヒドロカルビレン基、式(3-Ta)で表される基、又は、式(3-Tb)で表される基を表す。

[0243] T の炭素原子数1～10のヒドロカルビレン基としては、メチレン基、エチレン基、トリメチレン基、テトラメチレン基、ペンタメチレン基、ヘキサメチレン基などのアルキレン基；フェニレン基、ナフチレン基などのアリレン基などをあげることができる。

[0244] 式(3-Ta)中、 R^{31} は炭素原子数1～10のヒドロカルビレン基を表し、式(3-Tb)中、 R^{32} は炭素原子数1～10のヒドロカルビレン基を表し、 R^{33} は水素原子又は炭素原子数1～10のヒドロカルビル基を表す。

[0245] R^{31} 及び R^{32} の炭素原子数1～10のヒドロカルビレン基としては、メチレン基、エチレン基、トリメチレン基、テトラメチレン基、ペンタメチレン基、ヘキサメチレン基などのアルキレン基；フェニレン基、ナフチレン基などのアリレン基などをあげることができる。好ましくは、エチレン基、トリメチレン基である。

[0246] R^{33} の炭素原子数1～10のヒドロカルビル基としては、アルキル基、アラルキル基、アリール基などをあげることができる。アルキル基としては、メチル基、エチル基、 n -プロピル基、イソプロピル基、 n -ブチル基、 se

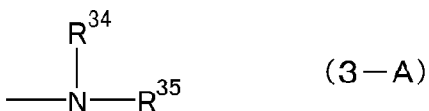
c-ブチル基、tert-ブチル基などをあげることができる。アラルキル基としては、ベンジル基などをあげることができる。アリール基としては、フェニル基などをあげることができる。好ましくは、炭素原子数が1～10のアルキル基であり、より好ましくは、メチル基又はエチル基である。R³³として、好ましくは、水素原子又は炭素原子数が1～10のアルキル基であり、より好ましくは、水素原子、メチル基又はエチル基である。

[0247] 式(3-Ta)で表される基としては、 $-O-CH_2CH_2-$ で表される基、 $-O-CH_2CH_2CH_2-$ で表される基をあげることができる。

[0248] 式(3-Tb)で表される基としては、 $-NH-CH_2CH_2-$ で表される基、 $-NH-CH_2CH_2CH_2-$ で表される基をあげることができる。

[0249] 式(3-Z)中のA³で表される基としては、好ましくは下記式(3-A)で表される基があげられる。

[化36]



(式中、R³⁴及びR³⁵は、それぞれ、窒素原子及び／又は酸素原子を有していてもよいヒドロカルビル基、又は、トリヒドロカルビルシリル基、あるいは、R³⁴とR³⁵とが結合して、窒素原子及び／又は酸素原子をヘテロ原子として有していてもよいヒドロカルビレン基、又は、R³⁴とR³⁵は1つの基であって、窒素原子に二重結合で結合する基を表す。)

[0250] R³⁴及びR³⁵のヒドロカルビル基としては、アルキル基、アルケニル基、アルキニル基、アリール基、アラルキル基をあげることができる。アルキル基としては、メチル基、エチル基、n-プロピル基、イソプロピル基、n-ブチル基、sec-ブチル基、tert-ブチル基をあげることができる。アルケニル基としては、ビニル基、アリル基、1-プロペニル基、1-メチルエテニル基をあげることができる。アルキニル基としては、エチニル基、プロパギル基をあげることができる。アリール基としては、フェニル基、トリル基、キシリル基をあげることができる。アラルキル基としては、ベンジル

基をあげることができる。

[0251] R^{34} 及び R^{35} のヒドロカルビル基の炭素原子数は、好ましくは 1 ～ 10 であり、より好ましくは 1 ～ 4 であり、更に好ましくは 1 ～ 2 である。

[0252] R^{34} 及び R^{35} のヒドロカルビル基としては、好ましくは、アルキル基、アルケニル基であり、より好ましくは、アルキル基であり、更に好ましくは、直鎖アルキル基である。

[0253] R^{34} 及び R^{35} の窒素原子を有するヒドロカルビル基としては、ジメチルアミノメチル基、ジメチルアミノエチル基、ジメチルアミノプロピル基、ジエチルアミノエチル基などのジアルキルアミノアルキル基があげられる。 R^{34} 及び R^{35} の窒素原子を有するヒドロカルビル基の炭素原子数は、好ましくは 3 ～ 10 であり、より好ましくは 3 ～ 6 であり、更に好ましくは 3 ～ 4 である。

[0254] R^{34} 及び R^{35} の酸素原子を有するヒドロカルビル基としては、メトキシメチル基、メトキシエチル基、メトキシプロピル基、エトキシメチル基、エトキシエチル基などのアルコキシアルキル基；オキシラニル基、テトラヒドロフラニル基などのオキサシクロアルキル基；グリシジル基、テトラヒドロフルフリル基などのオキサシクロアルキルアルキル基があげられる。 R^{34} 及び R^{35} の酸素原子を有するヒドロカルビル基の炭素原子数は、好ましくは 2 ～ 10 であり、より好ましくは 2 ～ 6 であり、更に好ましくは 2 ～ 4 である。

[0255] 本明細書において、オキサシクロアルキル基は、シクロアルキル基の脂環上の CH_2 が酸素原子に置き換わった基を表し、オキサシクロアルキルアルキル基は、アルキル基の水素原子がオキサシクロアルキル基に置き換わった基を表す。

[0256] R^{34} 及び R^{35} のトリヒドロカルビルシリル基としては、トリメチルシリル基、トリエチルシリル基、トリイソプロピルシリル基、tert-ブチルジメチルシリル基などのトリアルキルシリル基をあげることができる。

[0257] R^{34} 及び R^{35} のトリヒドロカルビルシリル基としては、好ましくは、炭素原子数が 3 ～ 9 のトリアルキルシリル基であり、より好ましくは、ケイ素原子

に結合したアルキル基が炭素原子数 1 ～ 4 のアルキル基であるトリアルキルシリル基であり、更に好ましくは、トリメチルシリル基である。

[0258] R^{34} 及び R^{35} が結合した窒素原子及び／又は酸素原子をヘテロ原子として有していてもよいヒドロカルビレン基としては、ヒドロカルビレン基、窒素原子を有するヒドロカルビレン基、酸素原子を有するヒドロカルビレン基などをあげることができる。ヒドロカルビレン基としては、エチレン基、トリメチレン基、テトラメチレン基、ペンタメチレン基、ヘキサメチレン基などのアルキレン基をあげることができる。窒素原子を有するヒドロカルビレン基としては、 $-CH_2CH_2-NH-CH_2-$ で表される基、 $-CH_2CH_2-N=CH-$ で表される基、 $-CH=CH-N=CH-$ で表される基、 $-CH_2CH_2-NH-CH_2CH_2-$ で表される基をあげることができる。酸素原子を有するヒドロカルビレン基としては、 $-CH_2CH_2-O-CH_2CH_2-$ で表される基をあげることができる。

[0259] R^{34} 及び R^{35} が結合した基の炭素原子数は、好ましくは 2 ～ 20 であり、より好ましくは 2 ～ 7 であり、更に好ましくは 4 ～ 6 である。

[0260] R^{34} 及び R^{35} が結合した窒素原子及び／又は酸素原子をヘテロ原子として有していてもよいヒドロカルビレン基としては、好ましくはヒドロカルビレン基であり、より好ましくはアルキレン基であり、更に好ましくはポリメチレン基である。

[0261] R^{34} 及び R^{35} が窒素原子に二重結合で結合する 1 つの基としては、エチリデン基、プロピリデン基、ブチリデン基、1-メチルエチリデン基、1-メチルプロピリデン基、1,3-ジメチルブチリデン基などのヒドロカルビリデン基をあげることができる。

[0262] R^{34} 及び R^{35} が窒素原子に二重結合で結合する 1 つの基の炭素原子数は、好ましくは 2 ～ 20 であり、より好ましくは 2 ～ 6 である。

[0263] R^{34} 及び R^{35} としては、好ましくは、ヒドロカルビル基、トリヒドロカルビルシリル基、 R^{34} と R^{35} とが結合したヒドロカルビレン基である。

[0264] 式 (3-A) で表される基としては、非環状アミノ基、環状アミノ基をあげ

ることができる。

[0265] 非環状アミノ基としては、ジアルキルアミノ基、ビス（トリアルキルシリル）アミノ基をあげることができる。ジアルキルアミノ基としては、ジメチルアミノ基、ジエチルアミノ基、ジ（*n*-プロピル）アミノ基、ジ（イソプロピル）アミノ基、ジ（*n*-ブチル）アミノ基、ジ（*sec*-ブチル）アミノ基、ジ（*tert*-ブチル）アミノ基、エチルメチルアミノ基をあげることができる。ビス（トリアルキルシリル）アミノ基としては、ビス（トリメチルシリル）アミノ基、ビス（*tert*-ブチルジメチルシリル）アミノ基をあげることができる。

[0266] 非環状アミノ基としては、更に、エチリデンアミノ基、1-メチルプロピリデンアミノ基、1, 3-ジメチルブチリデンアミノ基、1-メチルエチリデンアミノ基、4-N, N-ジメチルアミノベンジリデンアミノ基をあげることともできる。

[0267] 環状アミノ基としては、1-アジリジニル基、1-アゼチジニル基、1-ピロリジニル基、1-ピペリジニル基、1-ヘキサメチレンイミノ基、1-イミダゾリル基、4, 5-ジヒドロ-1-イミダゾリル基、1-ピロリル基、1-ピラゾリル基、1-イミダゾリジニル基、1-ピペラジニル基、モルホリノ基をあげることができる。

[0268] 式（3-A）で表される基としては、好ましくは、 R^{34} 及び R^{35} がヒドロカルビル基である基、 R^{34} 及び R^{35} がトリヒドロカルビルシリル基である基、 R^{34} 及び R^{35} がオキサシクロアルキルアルキル基である基、 R^{34} 及び R^{35} が結合したヒドロカルビレン基である基である。より好ましくは、 R^{34} 及び R^{35} が直鎖アルキル基である基、 R^{34} 及び R^{35} がトリアルキルシリル基である基、 R^{34} 及び R^{35} が結合したポリメチレン基である基である。

[0269] 式（3-A）で表される基としては、更に好ましくは、ジアルキルアミノ基である。

[0270] $p = 0$ である式（3-Z）で表される基としては、ジメチルアミノ基、ジエチルアミノ基などのジヒドロカルビルアミノ基；1-アジリジニル基、1-

ピロリジニル基、1-ピペリジニル基、1-ヘキサメチレンイミノ基、1-イミダゾリル基、4,5-ジヒドロ-1-イミダゾリル基、1-イミダゾリジニル基、1-ピペラジニル基、モルホリノ基などの環状アミノ基；ジ（グリシジル）アミノ基、ジ（テトラヒドロフルフリル）アミノ基などのジ（オキサシクロアルキルアルキル）アミノ基；ビス（トリメチルシリル）アミノ基、ビス（トリエチルシリル）アミノ基、ビス（*t*-ブチルジメチルシリル）アミノ基、ビス（トリイソプロピルシリル）アミノ基などのビス（トリアルキルシリル）アミノ基などをあげることができる。

[0271] $p = 1$ 、 T がヒドロカルビルン基である式（3-Z）で表される基としては、ジメチルアミノエチル基、ジエチルアミノエチル基、ジメチルアミノプロピル基、ジエチルアミノプロピル基などのジヒドロカルビルアミノアルキル基；ジメチルアミノフェニル基、ジエチルアミノフェニル基などのジヒドロカルビルアミノアリール基などをあげることができる。

[0272] $p = 1$ 、 T が式（3-Ta）で表される基である式（3-Z）で表される基としては、 $-O-CH_2CH_2-N(CH_3)_2$ で表される基、 $-O-CH_2CH_2CH_2-N(CH_2CH_3)_2$ で表される基、 $-O-CH_2CH_2CH_2CH_2-N(CH_3)_2$ で表される基、 $-O-CH_2CH_2CH_2CH_2-N(CH_2CH_3)_2$ で表される基をあげることができる。

[0273] $p = 1$ 、 T が式（3-Tb）で表される基である式（3-Z）で表される基としては、 $-NH-CH_2CH_2-N(CH_3)_2$ で表される基、 $-NH-CH_2CH_2CH_2-N(CH_2CH_3)_2$ で表される基、 $-NH-CH_2CH_2CH_2CH_2-N(CH_3)_2$ で表される基、 $-NH-CH_2CH_2CH_2CH_2-N(CH_2CH_3)_2$ で表される基をあげることができる。

[0274] 式（3）で表される化合物としては、例えば、カルボン酸アミド化合物、チオカルボン酸アミド化合物、カルボン酸エステル化合物、チオカルボン酸エステル化合物があげられる。

[0275] カルボン酸アミド化合物としては、
N, N-ジメチルホルムアミド、N, N-ジエチルホルムアミドなどのホル

ムアミド化合物；

N, N-ジメチルアセトアミド、N, N-ジエチルアセトアミド、アミノアセトアミド、N, N-ジメチル-N', N'-ジメチルアミノアセトアミド、N, N-ジメチルアミノアセトアミド、N, N-ジメチル-N'-エチルアミノアセトアミド、N, N-ジメチルアミノアセトアミド、N-フェニルジアセトアミドなどのアセトアミド化合物；

N, N-ジメチルプロピオンアミドなどのプロピオンアミド化合物；

N, N-ジメチルベンズアミド、N', N'-(p-ジメチルアミノ)ベンズアミド、N', N'-(p-ジエチルアミノ)ベンズアミド、N, N-ジメチル-N', N'-(p-ジメチルアミノ)ベンズアミド、N, N-ジメチル-N', N'-(p-ジエチルアミノ)ベンズアミドなどのベンズアミド化合物；

N, N-ジメチル-4-ピリジルアミドなどのピリジルアミド化合物；

N, N, N', N'-テトラメチルフタルアミド、N, N, N', N'-テトラエチルフタルアミドなどのフタルアミド化合物があげられる。

[0276] チオカルボン酸アミド化合物としては、

N, N-ジメチルチオホルムアミド、N, N-ジエチルチオホルムアミドなどのチオホルムアミド化合物；

N, N-ジメチルチオアセトアミド、N, N-ジエチルチオアセトアミド、アミノチオアセトアミド、N, N-ジメチル-N', N'-ジメチルアミノチオアセトアミド、N, N-ジメチルアミノチオアセトアミド、N, N-ジメチル-N'-エチルアミノチオアセトアミド、N, N-ジメチルアミノチオアセトアミド、N-フェニルジチオアセトアミドなどのチオアセトアミド化合物；

N, N-ジメチルチオプロピオンアミドなどのチオプロピオンアミド化合物；

N, N-ジメチルチオベンズアミド、N', N'-(p-ジメチルアミノ)チオベンズアミド、N', N'-(p-ジエチルアミノ)チオベンズアミド

、N，N－ジメチル－N'，N'－（p－ジメチルアミノチオベンズアミド、N，N－ジメチル－N'，N'－（p－ジエチルアミノ）チオベンズアミドなどのチオベンズアミド化合物；

N，N－ジメチル－4－ピリジルチオアミドなどのピリジルチオアミド化合物；

N，N，N'，N'－テトラメチルチオフタルアミド、N，N，N'，N'－テトラエチルチオフタルアミドなどのチオフタルアミド化合物があげられる。

[0277] カルボン酸エステル化合物としては、

N，N－ジメチルアミノメチルアセテート、N，N－ジエチルアミノメチルアセテートなどのN，N－ジアルキルアミノメチルアセテート；

N，N－ジメチルアミノエチルアセテート、N，N－ジエチルアミノエチルアセテートなどのN，N－ジアルキルアミノエチルアセテート；

N，N－ジメチルアミノプロピルアセテート、N，N－ジエチルアミノプロピルアセテートなどのN，N－ジアルキルアミノプロピルアセテート；

N，N－ジメチルアミノエチルベンゾエート、N，N－ジエチルアミノエチルベンゾエートなどのN，N－ジアルキルアミノエチルベンゾエートがあげられる。

[0278] チオカルボン酸エステル化合物としては、

N，N－ジメチルアミノメチルチオアセテート、N，N－ジエチルアミノメチルチオアセテートなどのN，N－ジアルキルアミノメチルチオアセテート；

N，N－ジメチルアミノエチルチオアセテート、N，N－ジエチルアミノエチルチオアセテートなどのN，N－ジアルキルアミノエチルチオアセテート；

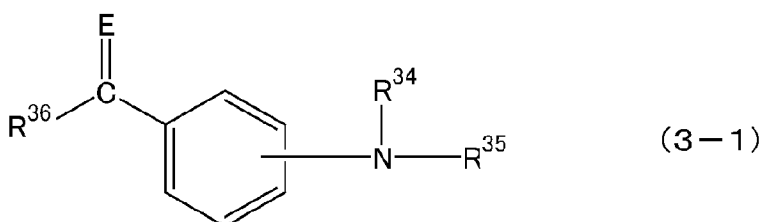
N，N－ジメチルアミノプロピルチオアセテート、N，N－ジエチルアミノプロピルチオアセテートなどのN，N－ジアルキルアミノプロピルチオアセテート；

N, N-ジメチルアミノエチルチオベンゾエート、N, N-ジエチルアミノエチルチオベンゾエートなどのN, N-ジアルキルアミノエチルチオベンゾエートがあげられる。

[0279] 式(3)で表される好適な化合物として、 Z^1 が式(3-Z)で表される基であり、 Z^2 が置換基を有していてもよいヒドロカルビル基又は水素原子である化合物があげられる。

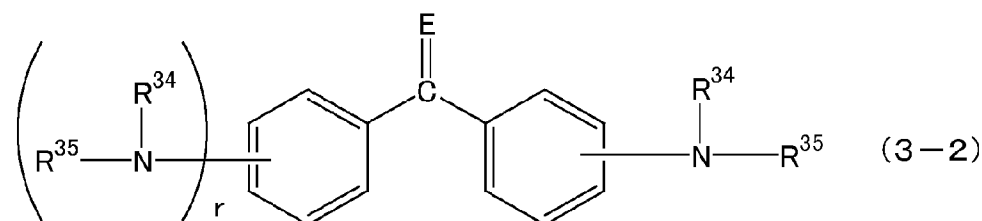
該化合物としては、式(3-Z)のpが1であり、Tがフェニレン基である下記式(3-1)で表される化合物、及び、下記式(3-2)で表される化合物があげられる。

[化37]



(式中、Eは、酸素原子、又は、硫黄原子を表し、 $\text{R}^{34}\text{R}^{35}\text{N}-$ はベンゼン環上の置換基であり、 R^{34} 及び R^{35} は、それぞれ、窒素原子及び／又は酸素原子を有していてもよいヒドロカルビル基、又は、トリヒドロカルビルシリル基、あるいは、 R^{34} と R^{35} とが結合して、窒素原子及び／又は酸素原子をヘテロ原子として有していてもよいヒドロカルビレン基、又は、 R^{34} と R^{35} は1つの基であって、窒素原子に二重結合で結合する基を表し、 R^{36} は、ヒドロカルビル基、又は、水素原子を表す。)

[化38]



(式中、Eは、酸素原子、又は、硫黄原子を表し、rは0~2の数を表し、

$R^{34}R^{35}N-$ はベンゼン環上の置換基であり、 R^{34} 及び R^{35} は、それぞれ、窒素原子及び／又は酸素原子を有していてもよいヒドロカルビル基、又は、トリヒドロカルビルシリル基、あるいは、 R^{34} と R^{35} とが結合して、窒素原子及び／又は酸素原子をヘテロ原子として有していてもよいヒドロカルビレン基、又は、 R^{34} と R^{35} は1つの基であって、窒素原子に二重結合で結合する基を表す。）

[0280] 式(3-1)及び式(3-2)のEは、酸素原子、又は、硫黄原子を表し、好ましくは、酸素原子である。

[0281] 式(3-2)のrは0～2の数を表す。

[0282] 式(3-1)及び式(3-2)の $R^{34}R^{35}N-$ は、ベンゼン環上の置換基である。 R^{34} 、及び、 R^{35} の定義、例示及び好ましい基は、式(3-A)の R^{34} 、及び、 R^{35} で記述した定義、例示及び好ましい基と同じである。

[0283] 式(3-1)及び式(3-2)の $R^{34}R^{35}N-$ としては、好ましくは、ジアルキルアミノ基である。該ジアルキルアミノ基のアルキル基としては、好ましくは、炭素原子数が1～4のアルキル基である。

[0284] 式(3-1)の R^{36} は、水素原子又はヒドロカルビル基を表す。該ヒドロカルビル基としては、メチル基、エチル基、n-プロピル基、イソプロピル基、n-ブチル基、sec-ブチル基、tert-ブチル基などのアルキル基；フェニル基、メチルフェニル基、エチルフェニル基などのアリール基；ベンジル基などのアラルキル基があげられる。

[0285] 式(3-1)で表される化合物としては、
 4-ジメチルアミノベンズアルデヒド、4-ジエチルアミノベンズアルデヒドなどのジアルキルアミノ置換ベンズアルデヒド化合物；
 4-ジメチルアミノアセトフェノン、4-ジエチルアミノアセトフェノンなどのジアルキルアミノ置換アセトフェノン化合物；
 4'-イミダゾール-1-イルアセトフェノン、4'-(1-ピラゾリル)アセトフェノン、4-モルホリノアセトフェノンなどのヘテロ環基置換アセトフェノン化合物；

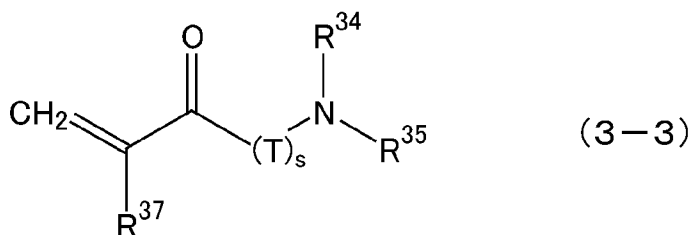
4-ジメチルアミノチオベンズアルデヒド、4-ジエチルアミノチオベンズアルデヒドなどのジアルキルアミノ置換チオベンズアルデヒド化合物；
4-ジメチルアミノチオアセトフェノン、4-ジエチルアミノチオアセトフェノンなどのジアルキルアミノ置換チオアセトフェノン化合物；
4'-イミダゾール-1-イル-チオアセトフェノン、4'-(1-ピラゾリル)チオアセトフェノン、4-モルホリノチオアセトフェノンなどのヘテロ環基置換チオアセトフェノン化合物、があげられる。

[0286] 式(3-2)で表される化合物としては、

3-ジメチルアミノベンゾフェノン、3-ジエチルアミノベンゾフェノン、
4-ジメチルアミノベンゾフェノン、4-ジエチルアミノベンゾフェノン、
4, 4'-ビス(ジメチルアミノ)-ベンゾフェノン、4, 4'-ビス(ジエチルアミノ)-ベンゾフェノンなどのジアルキルアミノ置換ベンゾフェノン化合物；
4'-(イミダゾール-1-イル)-ベンゾフェノン、4'-(1-ピラゾリル)ベンゾフェノン、4-モルホリノベンゾフェノンなどのヘテロ環基置換ベンゾフェノン化合物；
3-ジメチルアミノチオベンゾフェノン、3-ジエチルアミノチオベンゾフェノン、4-ジメチルアミノチオベンゾフェノン、4-ジエチルアミノチオベンゾフェノン、4, 4'-ビス(ジメチルアミノ)-チオベンゾフェノン、4, 4'-ビス(ジエチルアミノ)-チオベンゾフェノンなどのジアルキルアミノ置換チオベンゾフェノン化合物；
4'-(イミダゾール-1-イル)-チオベンゾフェノン、4'-(1-ピラゾリル)チオベンゾフェノン、4-モルホリノチオベンゾフェノンなどのヘテロ環基置換チオベンゾフェノン化合物があげられる。

[0287] 式(3)で表される好適な化合物として、Eが酸素原子であり、Z¹が式(3-Z)で表される基であり、Z²がヒドロカルビル基である下記式(3-3)で表される化合物があげられる。

[化39]



(式中、 s は0又は1であり、 T は炭素原子数1～10のヒドロカルビレン基、式(3-Ta)で表される基、又は、式(3-Tb)で表される基を表し、 R^{34} 及び R^{35} は、それぞれ、窒素原子及び／又は酸素原子を有していてもよいヒドロカルビル基、又は、トリヒドロカルビルシリル基、あるいは、 R^{34} と R^{35} とが結合して、窒素原子及び／又は酸素原子をヘテロ原子として有していてもよいヒドロカルビレン基、又は、 R^{34} と R^{35} は1つの基であって、窒素原子に二重結合で結合する基を表し、 R^{37} は、水素原子、又は、ヒドロカルビル基を表す。)

[0288] 式(3-3)の T の定義、例示及び好ましい基は、式(3-Z)で記述した定義、例示及び好ましい基と同じである。

[0289] 式(3-3)の R^{34} 及び R^{35} の定義、例示及び好ましい基は、式(3-A)で記述した定義、例示及び好ましい基と同じである。

[0290] R^{37} のヒドロカルビル基としては、アルキル基、アルケニル基、アリール基などをあげることができる。アルキル基としては、メチル基、エチル基、 n -プロピル基、イソプロピル基、 n -ブチル基、 sec -ブチル基、 $tert$ -ブチル基などをあげることができ、好ましくはメチル基である。アルケニル基としては、ビニル基、アリル基、1-プロペニル基、1-メチルエテニル基などをあげることができ、好ましくはビニル基である。アリール基としては、フェニル基、メチルフェニル基、エチルフェニル基などをあげることができ、好ましくはフェニル基である。

[0291] R^{37} として、好ましくは、水素原子、メチル基、ビニル基、フェニル基であり、より好ましくは水素原子、メチル基である。

[0292] 式(3-3)で表される化合物としては、 s が0であり、 R^{37} が水素原子で

ある次のアクリルアミド化合物を例示することができる。

N, N-ジメチルアクリルアミド、

N, N-ジエチルアクリルアミド、

N, N-ビストリメチルシリルアクリルアミド、

N, N-ジ（グリシジル）アクリルアミド、

N, N-ジ（テトラヒドロフルフリル）アクリルアミド、

モルホリノアクリルアミド。

[0293] 式（3-3）で表される化合物としては、sが1であり、Tが式（3-Tb）で表される基であり、R³⁷が水素原子である次のアクリルアミド化合物を例示することができる。

N-（2-ジメチルアミノエチル）アクリルアミド、

N-（3-ジメチルアミノプロピル）アクリルアミド、

N-（4-ジメチルアミノブチル）アクリルアミド、

N-（2-ジエチルアミノエチル）アクリルアミド、

N-（3-ジエチルアミノプロピル）アクリルアミド、

N-（4-ジエチルアミノブチル）アクリルアミド、

N-（3-ビストリメチルシリルアミノプロピル）アクリルアミド、

N-（3-ジ（グリシジル）アミノプロピル）アクリルアミド、

N-（3-ジ（テトラヒドロフルフリル）アミノプロピル）アクリルアミド

、

N-（3-モルホリノプロピル）アクリルアミド。

[0294] 式（3-3）で表される化合物としては、sが0であり、R³⁷がメチル基である次のメタクリルアミド化合物を例示することができる。

N, N-ジメチルメタクリルアミド、

N, N-ジエチルメタクリルアミド、

N, N-ビストリメチルシリルメタクリルアミド、

N, N-ジ（グリシジル）メタクリルアミド、

N, N-ジ（テトラヒドロフルフリル）メタクリルアミド、

モルホリノメタクリルアミド。

[0295] また、式 (3-3) で表される化合物としては、s が 1 であり、T が式 (3-T b) で表される基であり、R³⁷ がメチル基である次のメタクリルアミド化合物を例示することができる。

N- (2-ジメチルアミノエチル) メタクリルアミド、

N- (3-ジメチルアミノプロピル) メタクリルアミド、

N- (4-ジメチルアミノブチル) メタクリルアミド、

N- (2-ジエチルアミノエチル) メタクリルアミド、

N- (3-ジエチルアミノプロピル) メタクリルアミド、

N- (4-ジエチルアミノブチル) メタクリルアミド、

N- (3-ビストリメチルシリルアミノプロピル) メタクリルアミド、

N- (3-ジ (グリシジル) アミノプロピル) メタクリルアミド、

N- (3-ジ (テトラヒドロフルフリル) アミノプロピル) メタクリルアミド、

N- (3-モルホリノプロピル) メタクリルアミド。

[0296] 式 (3-3) で表される化合物としては、s が 1 であり、T が式 (3-T a) で表される基であり、R³⁷ が水素原子である次のアクリレート化合物を例示することができる。

2-ジメチルアミノエチルアクリレート、

3-ジメチルアミノプロピルアクリレート、

4-ジメチルアミノブチルアクリレート、

2-ジエチルアミノエチルアクリレート、

3-ジエチルアミノプロピルアクリレート、

4-ジエチルアミノブチルアクリレート、

3-ビストリメチルシリルアミノプロピルアクリレート、

3-ジ (グリシジル) アミノプロピルアクリレート、

3-ジ (テトラヒドロフルフリル) アミノプロピルアクリレート、

3-モルホリノプロピルアクリレート。

[0297] 式(3-3)で表される化合物としては、 s が1であり、 T が式(3-T a)で表される基であり、 R^{37} がメチル基である次のメタクリレート化合物を例示することができる。

2-ジメチルアミノエチルメタクリレート、
3-ジメチルアミノプロピルメタクリレート、
4-ジメチルアミノブチルメタクリレート、
2-ジエチルアミノエチルメタクリレート、
3-ジエチルアミノプロピルメタクリレート、
4-ジエチルアミノブチルメタクリレート、
3-ビストリメチルシリルアミノプロピルメタクリレート、
3-ジ(グリシジル)アミノプロピルメタクリレート、
3-ジ(テトラヒドロフルフリル)アミノプロピルメタクリレート、
3-モルホリノプロピルメタクリレート。

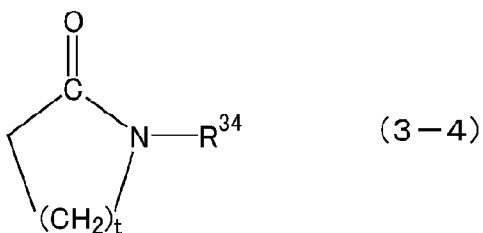
[0298] 式(3)で表される化合物として好ましくは、式(3-3)で表される化合物であり、より好ましくは、 s が1であり、 T が式(3-T b)であり、 R^{37} が水素原子又はメチル基であるアクリルアミド化合物、又はメタクリルアミド化合物である。

[0299] 更に好ましくは、

N-(3-ジメチルアミノプロピル)アクリルアミド、
N-(3-ジエチルアミノプロピル)アクリルアミド、
N-(3-ジメチルアミノプロピル)メタクリルアミド、
N-(3-ジエチルアミノプロピル)メタクリルアミドである。

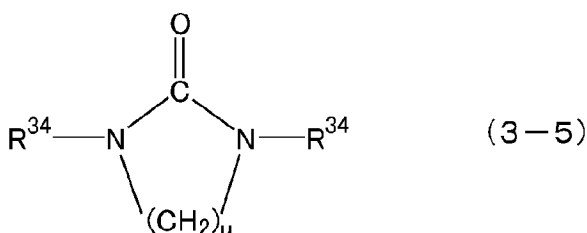
[0300] 式(3)で表される好適な化合物として、 Z^1 が式(3-Z)で表される基であり、 Z^2 がヒドロカルビレン基であり、 Z^1 の A^3 と Z^2 のヒドロカルビレン基が結合している化合物、 Z^1 及び Z^2 が式(3-Z)で表される基であり、 Z^1 の A^3 と Z^2 の A^3 が結合している化合物があげられる。該化合物としては、 E が酸素原子であり、 p が0である下記式(3-4)で表される化合物、及び、下記式(3-5)で表される化合物があげられる。

[化40]



(式中、 t は0～10の数を表し、 R^{34} は窒素原子及び／又は酸素原子を有していてもよいヒドロカルビル基、又は、トリヒドロカルビルシリル基を表す。)

[化41]



(式中、 u は0～10の数を表し、 R^{34} は窒素原子及び／又は酸素原子を有していてもよいヒドロカルビル基、又は、トリヒドロカルビルシリル基を表す。)

[0301] 式中、 t 及び u は、それぞれ0～10の数を表す。省燃費性を高める観点から、好ましくは2以上であり、製造時の経済性を高める観点から、好ましくは7以下である。

[0302] 式中、 R^{34} の定義、例示及び好ましい基は、式(3-A)の R^{34} で記述した定義、例示と同じである。

[0303] R^{34} として好ましくは、ヒドロカルビル基、より好ましくは炭素原子数が1～4のアルキル基、及び、炭素原子数6～10のアリール基である。

[0304] 式(3-4)で表される化合物としては、N-メチル-β-プロピオラクタム、N-(*t*-ブチル)-β-プロピオラクタム、N-フェニル-β-プロピオラクタムなどのβ-プロピオラクタム化合物；

1-メチル-2-ピロリドン、1-(*t*-ブチル)-2-ピロリドン、1-フェニル-2-ピロリドン、1-(*p*-メチルフェニル)-2-ピロリドン

、 1 - (p - メトキシフェニル) - 2 - ピロリドン、 1 - ベンジル - 2 - ピロリドン、 1 - ナフチル - 2 - ピロリドン、 1 - フェニル - 5 - メチル - 2 - ピロリドン、 1 - (t - ブチル) - 5 - メチル - 2 - ピロリドン、 1 - (t - ブチル) - 1, 3 - ジメチル - 2 - ピロリドンなどの 2 - ピロリドン化合物；

1 - (t - ブチル) - 2 - ピペリドン、 1 - フェニル - 2 - ピペリドン、 1 - (p - メチルフェニル) - 2 - ピペリドン、 1 - (p - メトキシフェニル) - 2 - ピペリドン、 1 - ナフチル - 2 - ピペリドンなどの 2 - ピペリドン化合物；

N - メチル - ϵ - カプロラクタム、 N - エチル - ϵ - カプロラクタム、 N - (n - プロピル) - ϵ - カプロラクタム、 N - フェニル - ϵ - カプロラクタム、 N - (p - メトキシフェニル) - ϵ - カプロラクタム、 N - ベンジル - ϵ - カプロラクタムなどの ϵ - カプロラクタム化合物；

N - フェニル - ω - ラウリロラクタムなどの ω - ラウリロラクタム化合物をあげることができる。

[0305] 式 (3 - 4) で表される化合物としては、好ましくは、 2 - ピロリドン化合物、 ϵ - カプロラクタム化合物であり、より好ましくは、 1 - ヒドロカルビル置換 - 2 - ピロリドン、 N - ヒドロカルビル置換 - ϵ - カプロラクタムであり、更に好ましくは、 1 - アルキル置換 - 2 - ピロリドン、 1 - アリール置換 - 2 - ピロリドン、 N - アルキル置換 - ϵ - カプロラクタム、 N - アリール置換 - ϵ - カプロラクタムであり、特に好ましくは 1 - フェニル - 2 - ピロリドン、 N - メチル - ϵ - カプロラクタムである。

[0306] 式 (3 - 5) で表される化合物としては、 1, 3 - ジメチル - 2 - イミダゾリジノン、 1, 3 - ジエチル - 2 - イミダゾリジノン、 1, 3 - ジ (n - プロピル) - 2 - イミダゾリジノン、 1, 3 - ジ (t - ブチル) - 2 - イミダゾリジノン、 1, 3 - ジフェニル - 2 - イミダゾリジノンなどの 1, 3 - ヒドロカルビル置換 - 2 - イミダゾリジノンをあげることができる。

[0307] 式 (3 - 5) で表される化合物としては、好ましくは、 1, 3 - 置換 - 2 -

イミダゾリジノンであり、より好ましくは、1, 3-ヒドロカルビル置換-2-イミダゾリジノンであり、更に好ましくは、1, 3-ジアルキル-2-イミダゾリジノンである。1, 3-ジアルキル-2-イミダゾリジノンとしては、好ましくは、1, 3-ジメチル-2-イミダゾリジノン、1, 3-ジエチル-2-イミダゾリジノン、1, 3-ジ(n-プロピル)-2-イミダゾリジノンであり、より好ましくは、1, 3-ジメチル-2-イミダゾリジノンである。

[0308] アルコキシシラン化合物としては、テトラアルコキシシラン化合物、アルキル基を有するアルコキシシラン化合物、ハロゲン原子を有するアルコキシシラン化合物、エポキシ基を有するアルコキシシラン化合物、メルカプト基を有するアルコキシシラン化合物、置換アミノ基を有するアルコキシシラン化合物などをあげることができる。

[0309] テトラアルコキシシラン化合物としては、テトラメトキシシラン、テトラエトキシシラン、テトラ-n-プロポキシシラン、テトライソプロポキシシラン、テトラ-n-ブトキシシラン、テトライソブトキシシラン、テトラ-tert-ブトキシシラン、テトラ-(2-エチルヘキサノキシ)シランなどをあげることができる。

[0310] アルキル基を有するアルコキシシラン化合物としては、メチルトリメトキシシラン、メチルトリエトキシシラン、メチルトリー-n-プロポキシシラン、メチルトリイソプロポキシシラン、メチルトリー-n-ブトキシシラン、メチルトリイソブトキシシラン、メチルトリー-tert-ブトキシシラン、メチルトリー-(2-エチルヘキサノキシ)シラン、ジメチルジメトキシシラン、ジメチルジエトキシシラン、ジメチルジー-n-プロポキシシラン、ジメチルジイソプロポキシシラン、ジメチルジー-n-ブトキシシラン、ジメチルジイソブトキシシラン、ジメチルジー-tert-ブトキシシラン、ジメチルジー-(2-エチルヘキサノキシ)シランなどをあげることができる。

[0311] ハロゲン原子を有するアルコキシシラン化合物としては、トリメトキシクロロシラン、トリエトキシクロロシラン、トリー-n-プロポキシクロロシラン

、トリイソプロポキシクロロシラン、トリ-*n*-ブトキシクロロシラン、トリイソブトキシクロロシラン、トリ-*tert*-ブトキシクロロシラン、トリ-（2-エチルヘキサノキシ）クロロシラン、ジメトキシジクロロシラン、ジエトキシジクロロシラン、ジ-*n*-プロポキシジクロロシラン、ジイソプロポキシジクロロシラン、ジ-*n*-ブトキシジクロロシラン、ジイソブトキシジクロロシラン、ジ-*tert*-ブトキシジクロロシラン、ジ-（2-エチルヘキサノキシ）ジクロロシラン、メトキシトリクロロシラン、エトキシトリクロロシラン、トリメトキシブロモシラン、トリエトキシブロモシラン、トリ-*n*-プロポキシブロモシラン、トリイソプロポキシブロモシラン、トリ-*n*-ブトキシブロモシラン、ジメトキシジブロモシラン、ジエトキシジブロモシラン、ジ-*n*-プロポキシジブロモシラン、ジイソプロポキシジブロモシラン、ジ-*n*-ブトキシジブロモシラン、メトキシトリブロモシラン、エトキシトリブロモシラン、トリメトキシヨードシラン、トリエトキシヨードシラン、トリ-*n*-プロポキシヨードシラン、トリイソプロポキシヨードシラン、トリ-*n*-ブトキシヨードシラン、ジメトキシジヨードシラン、ジエトキシジヨードシラン、ジ-*n*-プロポキシジヨードシラン、ジイソプロポキシジヨードシラン、ジ-*n*-ブトキシジヨードシラン、メトキシトリヨードシラン、エトキシトリヨードシラン、などをあげることができる。

[0312] エポキシ基を有するアルコキシシラン化合物としては、2-グリシドキシエチルトリメトキシシラン、3-グリシドキシプロピルトリメトキシシラン、4-グリシドキシブチルトリメトキシシラン、2-グリシドキシエチルトリエトキシシラン、3-グリシドキシプロピルトリエトキシシラン、4-グリシドキシブチルトリエトキシシラン、2-グリシドキシエチルトリプロポキシシラン、3-グリシドキシプロピルトリプロポキシシラン、4-グリシドキシブチルトリプロポキシシラン、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エチルジメトキシシラン、3-グリシドキシプロピルエチ

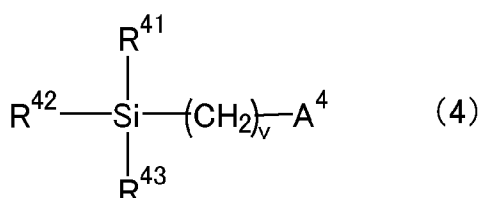
ルジエトキシシラン、3-グリシドキシプロピルジメチルメトキシシラン、3-グリシドキシプロピルジメチルエトキシシラン、3-グリシドキシプロピルジエチルメトキシシラン、3-グリシドキシプロピルジエチルエトキシシラン、ビス(3-グリシドキシプロピル)ジメトキシシラン、ビス(3-グリシドキシプロピル)ジエトキシシラン、ビス(3-グリシドキシプロピル)ジプロポキシシラン、ビス(3-グリシドキシプロピル)メチルメトキシシラン、ビス(3-グリシドキシプロピル)メチルエトキシシラン、ビス(3-グリシドキシプロピル)エチルメトキシシラン、ビス(3-グリシドキシプロピル)エチルエトキシシラン、トリス(3-グリシドキシプロピル)メトキシシラン、トリス(3-グリシドキシプロピル)エトキシシラン、トリス(3-グリシドキシプロピル)ジプロポキシシラン、 β -(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、 β -(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、 β -(3,4-エポキシシクロヘキシル)エチルトリプロポキシシラン、 β -(3,4-エポキシシクロヘキシル)プロピルトリメトキシシラン、 β -(3,4-エポキシシクロヘキシル)プロピルトリエトキシシラン、 β -(3,4-エポキシシクロヘキシル)プロピルトリプロポキシシラン、 β -(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、 β -(3,4-エポキシシクロヘキシル)エチルメチルジエトキシシラン、 β -(3,4-エポキシシクロヘキシル)プロピルメチルジメトキシシラン、 β -(3,4-エポキシシクロヘキシル)プロピルメチルジエトキシシラン、 β -(3,4-エポキシシクロヘキシル)エチルジメチルメトキシシラン、 β -(3,4-エポキシシクロヘキシル)エチルジメチルエトキシシラン、 β -(3,4-エポキシシクロヘキシル)プロピルジメチルメトキシシラン、 β -(3,4-エポキシシクロヘキシル)プロピルジメチルエトキシシラン、などをあげることができる。

[0313] メルカプト基を有するアルコキシシラン化合物としては、2-メルカプトエチルトリメトキシシラン、3-メルカプトプロピルトリメトキシシラン、4

ーメルカプトブチルトリメトキシシラン、2ーメルカプトエチルトリエトキシシラン、3ーメルカプトプロピルトリエトキシシラン、4ーメルカプトブチルトリエトキシシラン、2ーメルカプトエチルトリプロポキシシラン、3ーメルカプトプロピルトリプロポキシシラン、4ーメルカプトブチルトリプロポキシシラン、2ーメルカプトエチルメチルジメトキシシラン、3ーメルカプトプロピルメチルジメトキシシラン、4ーメルカプトブチルメチルジメトキシシラン、2ーメルカプトエチルメチルジエトキシシラン、3ーメルカプトプロピルメチルジエトキシシラン、4ーメルカプトブチルメチルジエトキシシラン、などをあげることができる。

[0314] 置換アミノ基を有するアルコキシシラン化合物としては、下記式(4)で表される化合物をあげることができる。

[化42]



(式中、 v は1～10の整数を表し、 R^{41} 、 R^{42} 及び R^{43} は、それぞれ独立にアルキル基又はアルコキシ基を表し、 R^{41} 、 R^{42} 及び R^{43} の少なくとも1つがアルコキシ基であり、 A^4 は置換アミノ基を表す。)

[0315] R^{41} 、 R^{42} 及び R^{43} は、それぞれアルキル基、又は、アルコキシ基を表す。

[0316] R^{41} 、 R^{42} 及び R^{43} のアルキル基としては、メチル基、エチル基、 n ープロピル基、イソプロピル基、 n ーブチル基、 sec ーブチル基、 $tert$ ーブチル基などをあげることができる。アルキル基は、好ましくは炭素原子数が1～10のアルキル基であり、より好ましくは炭素原子数が1～3のアルキル基であり、更に好ましくはメチル基、エチル基である。

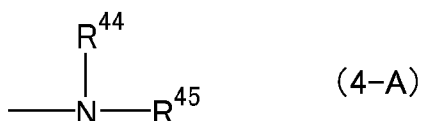
[0317] R^{41} 、 R^{42} 及び R^{43} のアルコキシ基としては、メトキシ基、エトキシ基、 n ープロポキシ基、イソプロポキシ基、 n ーブトキシ基、 sec ーブトキシ基、 $tert$ ーブトキシ基、2ーエチルヘキサノキシなどをあげることができ

る。アルコキシ基は、好ましくは炭素原子数が1～10のアルコキシ基であり、より好ましくは炭素原子数が1～3のアルコキシ基であり、更に好ましくはメトキシ基、エトキシ基である。

[0318] R^{41} 、 R^{42} 及び R^{43} の少なくとも1つはアルコキシ基であり、低燃費性を高めるために、好ましくは、 R^{41} 、 R^{42} 及び R^{43} の少なくとも2つがアルコキシ基であり、より好ましくは、 R^{41} 、 R^{42} 及び R^{43} の3つがアルコキシ基である。

[0319] 式(4)中、 A^4 は、置換アミノ基を表す。 A^4 の置換アミノ基としては、好ましくは下記式(4-A)で表される基である。

[化43]



(式中、 R^{44} 及び R^{45} は、それぞれ、水素原子、窒素原子及び／又は酸素原子を有していてもよいヒドロカルビル基、あるいは、 R^{44} と R^{45} とが結合して、窒素原子及び／又は酸素原子をヘテロ原子として有していてもよいヒドロカルビレン基、又は、 R^{44} と R^{45} は1つの基であって、窒素原子に二重結合で結合する基を表す。)

[0320] R^{44} 及び R^{45} は、それぞれ、水素原子、窒素原子及び／又は酸素原子を有していてもよいヒドロカルビル基、あるいは、 R^{44} と R^{45} とが結合して、窒素原子及び／又は酸素原子を有していてもよいヒドロカルビレン基、又は、 R^{44} と R^{45} は1つの基であって、窒素原子に二重結合で結合する基を表す。

[0321] R^{44} 及び R^{45} のヒドロカルビル基としては、メチル基、エチル基、*n*-プロピル基、イソプロピル基、*n*-ブチル基、*sec*-ブチル基、*tert*-ブチル基などのアルキル基；ビニル基、アリル基、1-プロペニル基、1-メチルエテニル基などのアルケニル基；エチニル基、プロパギル基などのアルキニル基；フェニル基、トリル基、キシリル基などのアリール基；ベンジル基などのアラルキル基をあげることができる。

[0322] R^{44} 及び R^{45} の窒素原子を有するヒドロカルビル基としては、ジメチルアミ

ノメチル基、ジメチルアミノエチル基、ジメチルアミノプロピル基、ジエチルアミノメチル基、ジエチルアミノエチル基、ジエチルアミノプロピル基などのジアルキルアミノアルキル基をあげることができる。

[0323] $R^{4.4}$ 及び $R^{4.5}$ の酸素原子を有するヒドロカルビル基としては、メトキシメチル基、メトキシエチル基、メトキシプロピル基、エトキシメチル基、エトキシエチル基、エトキシプロピル基などのアルコキシアルキル基；2-オキシラニル基、2-オキセタニル基、2-テトラヒドロフラニル基などのモノオキサシクロアルキル基；2-ジオキサソラニル基などのジオキサシクロアルキル基；グリシジル基、テトラヒドロフルフリル基などのモノオキサシクロアルキル基で置換されたアルキル基；3, 4-エポキシシクロヘキシル基をあげることができる。

[0324] 本明細書では、モノオキサシクロアルキル基は、シクロアルキル基の1つの CH_2 が酸素原子に置き換わった基を表す。ジオキサシクロアルキル基は、シクロアルキル基の2つの CH_2 が酸素原子に置き換わった基を表す。

[0325] $R^{4.4}$ 及び $R^{4.5}$ の窒素原子及び／又は酸素原子を有していてもよいヒドロカルビル基の炭素原子数は、好ましくは1～10であり、より好ましくは1～6である。

[0326] $R^{4.4}$ 及び $R^{4.5}$ が結合した基としては、ヒドロカルビレン基、窒素原子を有するヒドロカルビレン基、酸素原子を有するヒドロカルビレン基などをあげることができる。ヒドロカルビレン基としては、トリメチレン基、テトラメチレン基、ペンタメチレン基、ヘキサメチレン基などのアルキレン基をあげることができる。窒素原子を有するヒドロカルビレン基としては、 $-CH_2CH_2-NH-CH_2-$ で表される基、 $-CH_2CH_2-N=CH-$ で表される基、 $-CH=CH-N=CH-$ で表される基、 $-CH_2CH_2-NH-CH_2CH_2-$ で表される基をあげることができる。酸素原子を有するヒドロカルビレン基としては、 $-CH_2CH_2-O-CH_2CH_2-$ で表される基をあげることができる。

[0327] $R^{4.4}$ 及び $R^{4.5}$ が結合した基の炭素原子数は、好ましくは2～20であり、よ

り好ましくは2～12である。

[0328] R^{44} 及び R^{45} が窒素原子に二重結合で結合する1つの基としては、エチリデン基、プロピリデン基、ブチリデン基、1-メチルエチリデン基、1-メチルプロピリデン基、1,3-ジメチルブチリデン基などのヒドロカルビリデン基；4-N, N-ジメチルアミノベンジリデン基などをあげることができる。

[0329] R^{44} 及び R^{45} が窒素原子に二重結合で結合する1つの基の炭素原子数は、好ましくは2～20であり、より好ましくは2～12である。

[0330] R^{44} 及び R^{45} としては、好ましくは、ヒドロカルビル基、又は、 R^{34} と R^{35} とが結合した基であるヒドロカルビレン基、あるいは、 R^{34} と R^{35} は1つの基であって、窒素原子に二重結合で結合した基であるヒドロカルビリデン基であり、より好ましくは、ヒドロカルビル基であり、更に好ましくは、アルキル基である。該アルキル基としては、好ましくは、メチル基、エチル基である。

[0331] v は1～10の数であり、好ましくは2～4であり、より好ましくは3である。

[0332] 式(4)で表される化合物としては、 R^{44} 及び R^{45} がアルキル基である化合物として、

[3-(ジメチルアミノ)プロピル]トリメトキシシラン、
[3-(ジエチルアミノ)プロピル]トリメトキシシラン、
[3-(エチルメチルアミノ)プロピル]トリメトキシシラン、
[3-(ジメチルアミノ)プロピル]トリエトキシシラン、
[3-(ジエチルアミノ)プロピル]トリエトキシシラン、
[3-(エチルメチルアミノ)プロピル]トリエトキシシランなどの
[3-(ジアルキルアミノ)プロピル]トリアルコキシシラン；

[0333] [3-(ジメチルアミノ)プロピル]メチルジメトキシシラン、
[3-(ジエチルアミノ)プロピル]メチルジメトキシシラン、
[3-(エチルメチルアミノ)プロピル]メチルジメトキシシラン、

[3- (ジメチルアミノ) プロピル] エチルジメトキシシラン、
[3- (ジエチルアミノ) プロピル] エチルジメトキシシラン、
[3- (エチルメチルアミノ) プロピル] エチルジメトキシシラン、
[3- (ジメチルアミノ) プロピル] メチルジエトキシシラン、
[3- (ジエチルアミノ) プロピル] メチルジエトキシシラン、
[3- (エチルメチルアミノ) プロピル] メチルジエトキシシラン、
[3- (ジメチルアミノ) プロピル] エチルジエトキシシラン、
[3- (ジエチルアミノ) プロピル] エチルジエトキシシラン、
[3- (エチルメチルアミノ) プロピル] エチルジエトキシシランなどの
[3- (ジアルキルアミノ) プロピル] アルキルジアルコキシシラン；

[0334] [3- (ジメチルアミノ) プロピル] ジメチルメトキシシラン、
[3- (ジエチルアミノ) プロピル] ジメチルメトキシシラン、
[3- (ジメチルアミノ) プロピル] ジエチルメトキシシラン、
[3- (ジエチルアミノ) プロピル] ジエチルメトキシシラン、
[3- (ジメチルアミノ) プロピル] ジメチルエトキシシラン、
[3- (ジエチルアミノ) プロピル] ジメチルエトキシシラン、
[3- (ジメチルアミノ) プロピル] ジエチルエトキシシラン、
[3- (ジエチルアミノ) プロピル] ジエチルエトキシシランなどの
[3- (ジアルキルアミノ) プロピル] ジアルキルアルコキシシラン
をあげることができる。

[0335] 式(4)で表される化合物としては、 R^{44} 及び R^{45} がアルコキシアルキル基である化合物として、

{3- [ビス(メトキシメチル) アミノ] プロピル} トリメトキシシラン、
{3- [ビス(エトキシメチル) アミノ] プロピル} トリメトキシシラン、
{3- [ビス(メトキシエチル) アミノ] プロピル} トリメトキシシラン、
{3- [ビス(エトキシエチル) アミノ] プロピル} トリメトキシシラン、
{3- [ビス(メトキシメチル) アミノ] プロピル} トリエトキシシラン、
{3- [ビス(エトキシメチル) アミノ] プロピル} トリエトキシシラン、

{3- [ビス (メトキシエチル) アミノ] プロピル} トリエトキシシラン、
{3- [ビス (エトキシエチル) アミノ] プロピル} トリエトキシシランな
どの

{3- [ビス (アルコキシアルキル) アミノ] プロピル} トリアルコキシシ
ラン；

[0336] {3- [ビス (メトキシメチル) アミノ] プロピル} メチルジメトキシシラ
ン、

{3- [ビス (エトキシメチル) アミノ] プロピル} メチルジメトキシシラ
ン、

{3- [ビス (メトキシエチル) アミノ] プロピル} メチルジメトキシシラ
ン、

{3- [ビス (エトキシエチル) アミノ] プロピル} メチルジメトキシシラ
ン、

{3- [ビス (メトキシメチル) アミノ] プロピル} エチルジメトキシシラ
ン、

{3- [ビス (エトキシメチル) アミノ] プロピル} エチルジメトキシシラ
ン、

{3- [ビス (メトキシエチル) アミノ] プロピル} エチルジメトキシシラ
ン、

{3- [ビス (エトキシエチル) アミノ] プロピル} エチルジメトキシシラ
ン、

{3- [ビス (メトキシメチル) アミノ] プロピル} メチルジエトキシシラ
ン、

{3- [ビス (エトキシメチル) アミノ] プロピル} メチルジエトキシシラ
ン、

{3- [ビス (メトキシエチル) アミノ] プロピル} メチルジエトキシシラ
ン、

{3- [ビス (エトキシエチル) アミノ] プロピル} メチルジエトキシシラ

ン、

{3- [ビス (メトキシメチル) アミノ] プロピル} エチルジエトキシシラ

ン、

{3- [ビス (エトキシメチル) アミノ] プロピル} エチルジエトキシシラ

ン、

{3- [ビス (メトキシエチル) アミノ] プロピル} エチルジエトキシシラ

ン、

{3- [ビス (エトキシエチル) アミノ] プロピル} エチルジエトキシシラ

ンなどの

{3- [ビス (アルコキシアルキル) アミノ] プロピル} アルキルジアルコ
キシシラン ;

[0337] {3- [ビス (メトキシメチル) アミノ] プロピル} ジメチルメトキシシラ

ン、

{3- [ビス (エトキシメチル) アミノ] プロピル} ジメチルメトキシシラ

ン、

{3- [ビス (メトキシエチル) アミノ] プロピル} ジメチルメトキシシラ

ン、

{3- [ビス (エトキシエチル) アミノ] プロピル} ジメチルメトキシシラ

ン、

{3- [ビス (メトキシメチル) アミノ] プロピル} ジエチルメトキシシラ

ン、

{3- [ビス (エトキシメチル) アミノ] プロピル} ジエチルメトキシシラ

ン、

{3- [ビス (メトキシエチル) アミノ] プロピル} ジエチルメトキシシラ

ン、

{3- [ビス (エトキシエチル) アミノ] プロピル} ジエチルメトキシシラ

ン、

{3- [ビス (メトキシメチル) アミノ] プロピル} ジメチルエトキシシラ

ン、

{3- [ビス (エトキシメチル) アミノ] プロピル} ジメチルエトキシシラ

ン、

{3- [ビス (メトキシエチル) アミノ] プロピル} ジメチルエトキシシラ

ン、

{3- [ビス (エトキシエチル) アミノ] プロピル} ジメチルエトキシシラ

ン、

{3- [ビス (メトキシメチル) アミノ] プロピル} ジエチルエトキシシラ

ン、

{3- [ビス (エトキシメチル) アミノ] プロピル} ジエチルエトキシシラ

ン、

{3- [ビス (メトキシエチル) アミノ] プロピル} ジエチルエトキシシラ

ン、

{3- [ビス (エトキシエチル) アミノ] プロピル} ジエチルエトキシシラ

ンなどの

{3- [ビス (アルコキシアルキル) アミノ] プロピル} ジアルキルアルコ
キシシラン

をあげることができる。

[0338] 式 (4) で表される化合物としては、 R^{44} 及び R^{45} がオキシラニル基である
化合物として、

{3- [ジ (オキシラニル) アミノ] プロピル} トリメトキシシラン、

{3- [ジ (オキシラニル) アミノ] プロピル} トリエトキシシラン、

{3- [ジ (オキシラニル) アミノ] プロピル} メチルジメトキシシラン、

{3- [ジ (オキシラニル) アミノ] プロピル} エチルジメトキシシラン、

{3- [ジ (オキシラニル) アミノ] プロピル} メチルジエトキシシラン、

{3- [ジ (オキシラニル) アミノ] プロピル} エチルジエトキシシラン、

{3- [ジ (オキシラニル) アミノ] プロピル} ジメチルメトキシシラン、

{3- [ジ (オキシラニル) アミノ] プロピル} ジエチルメトキシシラン、

{3- [ジ (オキシラニル) アミノ] プロピル} ジメチルエトキシシラン、
{3- [ジ (オキシラニル) アミノ] プロピル} ジエチルエトキシシラン
をあげることができる。

[0339] 式 (4) で表される化合物としては、 R^{44} 及び R^{45} がテトラヒドロフラニル基である化合物として、

{3- [ジ (テトラヒドロフラニル) アミノ] プロピル} トリメトキシシラン、

{3- [ジ (テトラヒドロフラニル) アミノ] プロピル} トリエトキシシラン、

{3- [ジ (テトラヒドロフラニル) アミノ] プロピル} メチルジメトキシシラン、

{3- [ジ (テトラヒドロフラニル) アミノ] プロピル} エチルジメトキシシラン、

{3- [ジ (テトラヒドロフラニル) アミノ] プロピル} メチルジエトキシシラン、

{3- [ジ (テトラヒドロフラニル) アミノ] プロピル} エチルジエトキシシラン、

{3- [ジ (テトラヒドロフラニル) アミノ] プロピル} ジメチルメトキシシラン、

{3- [ジ (テトラヒドロフラニル) アミノ] プロピル} ジエチルメトキシシラン、

{3- [ジ (テトラヒドロフラニル) アミノ] プロピル} ジメチルエトキシシラン、

{3- [ジ (テトラヒドロフラニル) アミノ] プロピル} ジエチルエトキシシラン

をあげることができる。

[0340] 式 (4) で表される化合物としては、 R^{44} 及び R^{45} がグリシジル基である化合物として、

{3- [ジ (グリシジル) アミノ] プロピル} トリメトキシシラン、
{3- [ジ (グリシジル) アミノ] プロピル} トリエトキシシラン、
{3- [ジ (グリシジル) アミノ] プロピル} メチルジメトキシシラン、
{3- [ジ (グリシジル) アミノ] プロピル} エチルジメトキシシラン、
{3- [ジ (グリシジル) アミノ] プロピル} メチルジエトキシシラン、
{3- [ジ (グリシジル) アミノ] プロピル} エチルジエトキシシラン、
{3- [ジ (グリシジル) アミノ] プロピル} ジメチルメトキシシラン、
{3- [ジ (グリシジル) アミノ] プロピル} ジエチルメトキシシラン、
{3- [ジ (グリシジル) アミノ] プロピル} ジメチルエトキシシラン、
{3- [ジ (グリシジル) アミノ] プロピル} ジエチルエトキシシラン

をあげることができる。

[0341] 式 (4) で表される化合物としては、 R^{44} 及び R^{45} がテトラヒドロフルフリル基である化合物として、

{3- [ジ (テトラヒドロフルフリル) アミノ] プロピル} トリメトキシシラン、
{3- [ジ (テトラヒドロフルフリル) アミノ] プロピル} トリエトキシシラン、
{3- [ジ (テトラヒドロフルフリル) アミノ] プロピル} メチルジメトキシシラン、
{3- [ジ (テトラヒドロフルフリル) アミノ] プロピル} エチルジメトキシシラン、
{3- [ジ (テトラヒドロフルフリル) アミノ] プロピル} メチルジエトキシシラン、
{3- [ジ (テトラヒドロフルフリル) アミノ] プロピル} エチルジエトキシシラン、
{3- [ジ (テトラヒドロフルフリル) アミノ] プロピル} ジメチルメトキシシラン、
{3- [ジ (テトラヒドロフルフリル) アミノ] プロピル} ジエチルメトキシシラン、

シシラン、

{3-[ジ(テトラヒドロフルフリル)アミノ]プロピル}ジメチルエトキシシシラン、

{3-[ジ(テトラヒドロフルフリル)アミノ]プロピル}ジエチルエトキシシシラン

をあげることができる。

[0342] 式(4)で表される化合物としては、 R^{44} 及び R^{45} が結合した基である化合物として、

3-(1-ピペリジニル)プロピルトリメトキシシシラン、

3-(1-ピペリジニル)プロピルトリエトキシシシラン、

3-(1-ピペリジニル)プロピルメチルジメトキシシシラン、

3-(1-ピペリジニル)プロピルエチルジメトキシシシラン、

3-(1-ピペリジニル)プロピルメチルジエトキシシシラン、

3-(1-ピペリジニル)プロピルエチルジエトキシシシラン、

3-(1-ヘキサメチレンイミノ)プロピルトリメトキシシシラン、

3-(1-ヘキサメチレンイミノ)プロピルトリエトキシシシラン、

3-(1-ヘキサメチレンイミノ)プロピルメチルジメトキシシシラン、

3-(1-ヘキサメチレンイミノ)プロピルエチルジメトキシシシラン、

3-(1-ヘキサメチレンイミノ)プロピルメチルジエトキシシシラン、

3-(1-ヘキサメチレンイミノ)プロピルエチルジエトキシシシラン、

3-モルホリノプロピルトリメトキシシシラン、

3-モルホリノプロピルトリエトキシシシラン、

3-モルホリノプロピルメチルジメトキシシシラン、

3-モルホリノプロピルエチルジメトキシシシラン、

3-モルホリノプロピルメチルジエトキシシシラン、

3-モルホリノプロピルエチルジエトキシシシラン

をあげることができる。

[0343] 式(4)で表される化合物としては、 R^{44} 及び R^{45} が窒素原子に二重結合で

結合する1つの基である化合物として、

N-(1, 3-ジメチルブチリデン)-3-(トリメトキシシリル)-1-プロパンアミン、

N-(1, 3-ジメチルブチリデン)-3-(トリエトキシシリル)-1-プロパンアミン

をあげることができる。

[0344] 式(4)で表される化合物としては、

好ましくは、

[3-(ジアルキルアミノ)プロピル] トリアルコキシシランであり、

より好ましくは、

[3-(ジメチルアミノ)プロピル] トリメトキシシラン、

[3-(ジエチルアミノ)プロピル] トリメトキシシラン、

[3-(ジメチルアミノ)プロピル] トリエトキシシラン、

[3-(ジエチルアミノ)プロピル] トリエトキシシランであり、

更に好ましくは、

[3-(ジエチルアミノ)プロピル] トリメトキシシランである。

[0345] 式(1)で表される化合物に基づく単量体単位の含有量は、共役ジエン系重合体(A)100質量%あたり、低燃費性を高めるために、好ましくは0.01質量%以上であり、より好ましくは0.02質量%以上であり、更に好ましくは0.05質量%以上である。経済性、耐摩耗性を高めるために、好ましくは20質量%以下であり、より好ましくは2質量%以下であり、更に好ましくは1質量%以下である。

[0346] なお、式(1)で表される化合物に基づく単量体単位において、 X^1 、 X^2 及び X^3 で表される基は、加水分解などにより、水酸基となってもよい。

[0347] 式(2)で表される化合物に基づく単量体単位の含有量は、共役ジエン系重合体(A)100質量%あたり、低燃費性、耐摩耗性を高めるために、好ましくは0.01質量%以上であり、より好ましくは0.02質量%以上であり、更に好ましくは0.05質量%以上である。経済性、耐摩耗性を高める

ために、好ましくは20質量%以下であり、より好ましくは2質量%以下であり、更に好ましくは1質量%以下である。

[0348] 第一の本発明に係る共役ジエン系重合体（A）は、耐摩耗性を高めるために、ビニル芳香族炭化水素に基づく構成単位（ビニル芳香族炭化水素単位）を有していてもよい。該ビニル芳香族炭化水素としては、スチレン、 α -メチルスチレン、ビニルトルエン、ビニルナフタレン、ジビニルベンゼン、トリビニルベンゼン、ジビニルナフタレンをあげることができる。好ましくは、スチレンである。

[0349] ビニル芳香族炭化水素単位の含有量としては、共役ジエン単位とビニル芳香族炭化水素単位との総量を100質量%として、0質量%以上（共役ジエン単位の含有量は100質量%以下）であり、好ましくは10質量%以上（共役ジエン単位の含有量は90質量%以下）であり、より好ましくは15質量%以上（共役ジエン単位の含有量は85質量%以下）である。また、低燃費性を高めるために、ビニル芳香族炭化水素単位の含有量は、好ましくは50質量%以下（共役ジエン単位の含有量は50質量%以上）であり、より好ましくは45質量%以下（共役ジエン単位の含有量は55質量%以上）である。

[0350] 共役ジエン系重合体（A）のムーニー粘度（ ML_{1+4} ）は、耐摩耗性を高めるために、好ましくは10以上であり、より好ましくは20以上である。また、加工性を高めるために、好ましくは200以下であり、より好ましくは150以下である。該ムーニー粘度（ ML_{1+4} ）は、JIS K 6300（1994）に従って、100℃にて測定される。

[0351] 共役ジエン系重合体（A）のビニル結合量は、共役ジエン単位の含有量を100モル%として、低燃費性を高めるために、好ましくは70モル%以下であり、より好ましくは60モル%以下である。また、ウェットグリップ性を高めるために、好ましくは20モル%以上であり、より好ましくは40モル%以上であり、更に好ましくは50モル%以上である。該ビニル結合量は、赤外分光分析法により、ビニル基の吸収ピークである 910 cm^{-1} 付近の吸

収強度より求められる。

[0352] 共役ジエン系重合体（A）の分子量分布は、低燃費性を高めるために、好ましくは1～5であり、より好ましくは1～2である。分子量分布は、ゲル・パーミエーション・クロマトグラフ（GPC）法により、数平均分子量（ M_n ）及び重量平均分子量（ M_w ）を測定し、 M_w を M_n で除すことにより求められる。

[0353] 共役ジエン系重合体（A）の好適な製造方法としては、下記工程A及び工程Bを有する製造方法をあげることができる。

（工程A）：炭化水素溶媒中で、アルカリ金属触媒により、共役ジエン、上記式（1）で表される化合物及び上記式（2）で表される化合物を含む単量体成分を重合させて、共役ジエンに基づく単量体単位、上記式（1）で表される化合物に基づく単量体単位及び上記式（2）で表される化合物に基づく単量体単位を有する重合体鎖の少なくとも一端に、アルカリ金属触媒由来のアルカリ金属を有する重合体を得る工程。

（工程B）：工程Aで得られた重合体と上記化合物（G）又はアルコキシシラン化合物とを反応させる工程。

[0354] 工程Aで用いられるアルカリ金属触媒としては、アルカリ金属、有機アルカリ金属化合物、アルカリ金属と極性化合物との錯体、アルカリ金属を有するオリゴマーなどをあげることができる。該アルカリ金属としては、リチウム、ナトリウム、カリウム、ルビジウム、セシウムなどをあげることがでる。該有機アルカリ金属化合物としては、エチルリチウム、*n*-プロピルリチウム、*i*so-プロピルリチウム、*n*-ブチルリチウム、*sec*-ブチルリチウム、*tert*-ブチルリチウム、*n*-ペンチルリチウム、フェニルリチウム、2-ナフチルリチウム、2-ブチルフェニルリチウム、4-フェニルブチルリチウム、シクロヘキシルリチウム、4-シクロペンチルリチウム、ジメチルアミノプロピルリチウム、ジエチルアミノプロピルリチウム、*tert*-ブチルジメチルシリロキシプロピルリチウム、*N*-モルホリノプロピルリチウム、リチウムヘキサメチレンイミド、リチウムピロリジド、リチウムピペリジド、

リチウムヘプタメチレンイミド、リチウムドデカメチレンイミド、1, 4-ジリチオ-2-ブテン、ナトリウムナフタレニド、ナトリウムビフェニリド、カリウムナフタレニドなどをあげることができる。また、アルカリ金属と極性化合物との錯体としては、カリウム-テトラヒドロフラン錯体、カリウム-ジエトキシエタン錯体などをあげることができ、アルカリ金属を有するオリゴマーとしては、 α -メチルスチレンテトラマーのナトリウム塩をあげることができる。好ましくは、有機リチウム化合物又は有機ナトリウム化合物であり、より好ましくは、炭素原子数が2~20の有機リチウム化合物又は炭素原子数が2~20の有機ナトリウム化合物である。

[0355] 工程Aで用いられる炭化水素溶媒は、有機アルカリ金属化合物触媒を失活させない溶媒であり、脂肪族炭化水素、芳香族炭化水素、脂環族炭化水素などをあげることができる。

該脂肪族炭化水素としては、プロパン、*n*-ブタン、*i*so-ブタン、*n*-ペンタン、*i*so-ペンタン、*n*-ヘキサン、プロペン、1-ブテン、*i*so-ブテン、トランス-2-ブテン、シス-2-ブテン、1-ペンテン、2-ペンテン、1-ヘキセン、2-ヘキセンなどをあげることができる。また、該芳香族炭化水素としては、ベンゼン、トルエン、キシレン、エチルベンゼンをあげることができ、該脂環族炭化水素としては、シクロペンタン、シクロヘキサンなどがあげられる。これらは1種以上用いられ、また、炭化水素溶媒は、工業用ヘキサンのような各種成分の混合物でもかまわない。好ましくは、炭素原子数が2~12の炭化水素である。

[0356] 工程Aでは、炭化水素溶媒中で、アルカリ金属触媒により、共役ジエン、上記式(1)で表される化合物及び上記式(2)で表される化合物を含む単量体成分を重合させ、共役ジエンに基づく単量体単位、上記式(1)で表される化合物に基づく単量体単位及び上記式(2)で表される化合物に基づく単量体単位を有する重合体を製造する。該共役ジエンとしては、1, 3-ブタジエン、イソプレン、1, 3-ペンタジエン、2, 3-ジメチル-1, 3-ブタジエン、1, 3-ヘキサジエンをあげることができる。これらは1種以

上用いられる。好ましくは、1, 3-ブタジエン、イソプレンである。

[0357] 式(1)で表される化合物の使用量は、重合で使用した単量体成分の総使用量を100質量%として、低燃費性を高めるために、好ましくは0.01質量%以上であり、より好ましくは0.02質量%以上であり、更に好ましくは0.05質量%以上である。経済性、耐摩耗性を高めるために、好ましくは20質量%以下であり、より好ましくは2質量%以下であり、更に好ましくは1質量%以下であり、特に好ましくは0.5質量%以下である。

[0358] 式(2)で表される化合物の使用量は、重合で使用した単量体成分の総使用量を100質量%として、低燃費性、耐摩耗性を高めるために、好ましくは0.01質量%以上であり、より好ましくは0.02質量%以上であり、更に好ましくは0.05質量%以上である。経済性、耐摩耗性を高めるために、好ましくは20質量%以下であり、より好ましくは2質量%以下であり、更に好ましくは1質量%以下であり、特に好ましくは0.5質量%以下である。

[0359] また、重合反応において、共役ジエンと式(1)で表される化合物と式(2)で表される化合物とビニル芳香族炭化水素との総使用量は、重合で使用した単量体成分の総使用量を100質量%として、耐摩耗性を高めるために、好ましくは99.9質量%以上であり、より好ましくは99.95質量%以上であり、更に好ましくは100質量%である。

[0360] 工程Aでは、共役ジエン、式(1)で表される化合物及び式(2)で表される化合物に、ビニル芳香族炭化水素を組み合わせる重合を行ってもよく、ビニル芳香族炭化水素としては、スチレン、 α -メチルスチレン、ビニルトルエン、ビニルナフタレン、ジビニルベンゼン、トリビニルベンゼン、ジビニルナフタレンなどをあげることができる。好ましくは、スチレンである。

[0361] ビニル芳香族炭化水素を用いる場合の使用量は、共役ジエンとビニル芳香族炭化水素との総使用量を100質量%として、強度を高めるために、好ましくは10質量%以上（共役ジエンの使用量は90質量%以下）であり、より好ましくは15質量%以上（共役ジエンの使用量は85質量%以下）である。

。また、低燃費性を高めるために、ビニル芳香族炭化水素の使用量は、好ましくは50質量%以下（共役ジエンの使用量は50質量%以上）であり、より好ましくは45質量%以下（共役ジエンの使用量は55質量%以上）である。

[0362] また、重合反応において、共役ジエンと式（1）で表される化合物と式（2）で表される化合物とビニル芳香族炭化水素との総使用量は、単量体の総使用量を100質量%として、強度を高めるために、好ましくは99.9質量%以上であり、より好ましくは99.95質量%以上であり、更に好ましくは100質量%である。

[0363] 重合反応は、共役ジエン単位のビニル結合量を調整する剤、共役ジエン系重合体鎖中での共役ジエン単位と共役ジエン以外の単量体に基づく単量体単位の分布を調整する剤（以下、総称して「調整剤」と記す。）の存在下で行ってもよい。このような剤としては、エーテル化合物、第三級アミン、ホスフィン化合物などをあげることができる。該エーテル化合物としては、テトラヒドロフラン、テトラヒドロピラン、1,4-ジオキサンなど環状のエーテル；ジエチルエーテル、ジブチルエーテルなどの脂肪族モノエーテル；エチレングリコールジメチルエーテル、エチレングリコールジエチルエーテル、エチレングリコールジブチルエーテル、ジエチレングリコールジエチルエーテル、ジエチレングリコールジブチルエーテルなどの脂肪族ジエーテル；ジフェニルエーテル、アニソールなどの芳香族エーテルなどがあげられる。該第三級アミンとして、トリエチルアミン、トリプロピルアミン、トリブチルアミン、N, N, N', N'-テトラメチルエチレンジアミン、N, N-ジエチルアニリン、ピリジン、キノリンなどをあげることができる。また、該ホスフィン化合物として、トリメチルホスフィン、トリエチルホスフィン、トリフェニルホスフィンなどをあげることができる。これらは1種類以上用いられる。

[0364] 工程Aでの重合温度は、通常25～100℃であり、好ましくは35～90℃である。

より好ましくは50～80℃である。重合時間は、通常10分～5時間である。

[0365] 工程Aは、多段工程であってもよい。例えば、下記工程a1、a2及びa3を有する工程であってもよい。

(工程a1)：炭化水素溶媒中で、アルカリ金属触媒により、共役ジエン、式(1)で表される化合物及びビニル芳香族炭化水素を重合させ、該触媒由来のアルカリ金属を重合体鎖末端に有する共役ジエン系重合体を得る工程

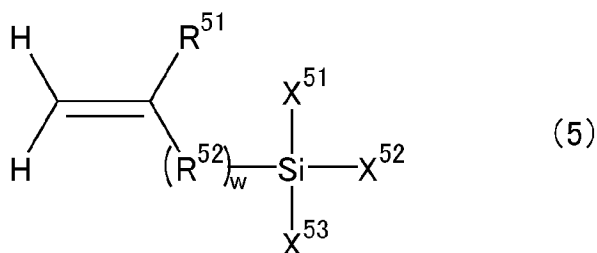
(工程a2)：工程a1で得られた炭化水素溶液に、式(2)で表される化合物を添加し、式(2)で表される化合物を該工程a1で得られた共役ジエン系重合体の重合体鎖末端に反応させて、式(2)で表される化合物に基づく単量体単位にアルカリ金属触媒由来のアルカリ金属が結合した構造を重合体鎖末端に有する共役ジエン系重合体を得る工程

(工程a3)：工程a2で得られた炭化水素溶液に、共役ジエン及びビニル芳香族炭化水素を添加して、共役ジエン及びビニル芳香族炭化水素を該工程a2で得られた共役ジエン系重合体の重合体鎖末端に重合させる工程

[0366] 工程Bにおいて、工程Aで調製された重合体に反応させる化合物(G)又はアルコキシシラン化合物の量は、有機アルカリ金属触媒由来のアルカリ金属1モルあたり、通常、0.1～3モルであり、好ましくは、0.5～2モルであり、より好ましくは、0.7～1.5モルである。

[0367] 第二の本発明に係る共役ジエン系重合体(B)は、共役ジエンに基づく単量体単位と下記式(5)で表される化合物に基づく単量体単位と、下記式(6)で表される化合物に基づく単量体単位とを有する。

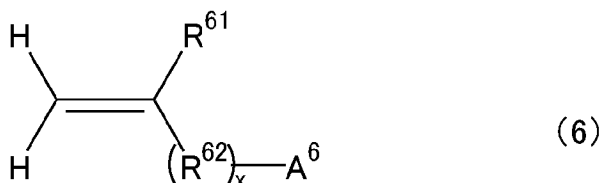
[化44]



(式中、R⁵¹は水素原子又はヒドロカルビル基を表し、wは0又は1であり

、 R^{52} はヒドロカルビレン基を表し、 X^{51} 、 X^{52} 及び X^{53} は、それぞれ独立に、置換アミノ基、又は、置換基を有していてもよいヒドロカルビル基を表し、 X^{51} 、 X^{52} 及び X^{53} の少なくとも1つが置換アミノ基である。）

[化45]



（式中、 R^{61} は水素原子又はヒドロカルビル基を表し、 x は0又は1であり、 R^{62} はヒドロカルビレン基を表し、 A^6 は置換アミノ基、又は、含窒素複素環基を表す。）

[0368] 本明細書では、ヒドロカルビル基は炭化水素残基を表す。ヒドロカルビレン基は、2価の炭化水素残基を表す。含窒素複素環基は、含窒素複素環を有する化合物の複素環の炭素原子から1つの水素原子を除いた基を表し、含窒素複素環は、環を構成するヘテロ原子として窒素原子を有する複素環を表す。

[0369] 共役ジエンとしては、1, 3-ブタジエン、イソプレン、1, 3-ペンタジエン、2, 3-ジメチル-1, 3-ブタジエン、1, 3-ヘキサジエンなどをあげることができ、これらは1種以上用いられる。共役ジエンとして、好ましくは、1, 3-ブタジエン、イソプレンである。

[0370] 式(5)の R^{51} は水素原子又はヒドロカルビル基を表す。

[0371] R^{51} のヒドロカルビル基としては、アルキル基、アルケニル基をあげることができる。

アルキル基としては、メチル基、エチル基、*n*-プロピル基、イソプロピル基、*n*-ブチル基、*sec*-ブチル基、*tert*-ブチル基をあげることができ、好ましくはメチル基である。アルケニル基としては、ビニル基、アリル基、1-プロペニル基、1-メチルエテニル基をあげることができ、好ましくはビニル基である。

[0372] R^{51} として、好ましくは、水素原子、メチル基、ビニル基である。

[0373] R^{52} のヒドロカルビレン基としては、アルキレン基、アリレーン基、アリレ

ーン基とアルキレン基とが結合した基をあげることができる。

[0374] アルキレン基としては、メチレン基、エチレン基、トリメチレン基をあげることができる。好ましくは、メチレン基又はエチレン基である。

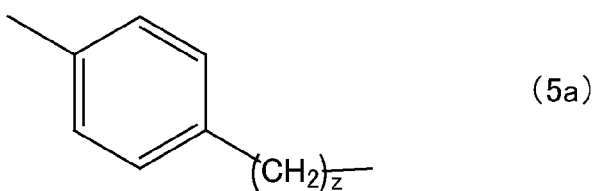
[0375] アリレン基としては、フェニレン基、ナフチレン基、ビフェニレン基をあげることができる。好ましくはフェニレン基である。

[0376] アリレン基とアルキレン基とが結合した基としては、フェニレン基とアルキレン基とが結合した基、ナフチレン基とアルキレン基とが結合した基、ビフェニレン基とアルキレン基とが結合した基をあげることができる。

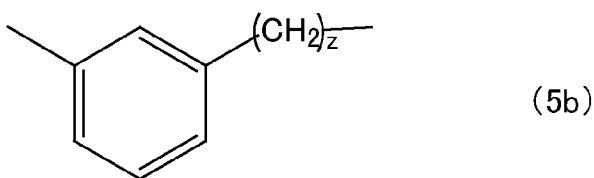
[0377] また、アリレン基とアルキレン基とが結合した基は、式(5)のケイ素原子に、アルキレン基の炭素原子が結合することが好ましい。

[0378] フェニレン基とアルキレン基とが結合した基（フェニレンーアルキレン基）では、水素原子が除かれたベンゼン環上の炭素原子とアルキレン基が結合するフェニレン基との位置によって、パラフェニレンーアルキレン基（例えば、下記式(5a)で表される基。）、メタフェニレンーアルキレン基（例えば、下記式(5b)で表される基。）、オルトフェニレンーアルキレン基（例えば、下記式(5c)で表される基。）をあげることができる。

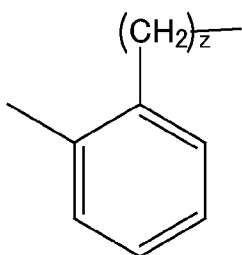
[化46]



[化47]



[化48]



(5c)

(式中、 z は、1～10の整数を表す。)

[0379] アリレン基とアルキレン基とが結合した基としては、好ましくは、フェニレン基とアルキレン基とが結合した基であり、より好ましくは、上記式(5a)で表される基、上記式(5b)で表される基であり、更に好ましくは、パラフェニレンーメチレン基($z=1$ である式(5a)で表される基)、メタフェニレンーメチレン基($z=1$ である式(5b)で表される基)、パラフェニレンーエチレン基($z=2$ である式(5a)で表される基)、メタフェニレンーエチレン基($z=2$ である式(5b)で表される基)である。

[0380] R^{51} が水素原子又はメチル基であり、 w が1である場合、 R^{52} は、好ましくは、アリレン基とアルキレン基とが結合した基又はアリレン基であり、より好ましくは、フェニレン基とアルキレン基とが結合した基又はフェニレン基であり、更に好ましくは、フェニレン基である。

[0381] R^{51} がビニル基であり、 w が1である場合、 R^{52} は、好ましくは、アルキレン基であり、より好ましくは、メチレン基又はエチレン基である。

[0382] 式(5)において、好ましくは、 R^{51} が水素原子であり、 w が0である。

[0383] X^{51} 、 X^{52} 及び X^{53} の置換基を有していてもよいヒドロカルビル基としては、酸素原子、窒素原子及びケイ素原子からなる群より選択される少なくとも1種を有していてもよいヒドロカルビル基をあげることができる。

[0384] X^{51} 、 X^{52} 及び X^{53} のヒドロカルビル基としては、アルキル基、アルケニル基、アルキニル基、アリール基、アラルキル基をあげることができる。アルキル基としては、メチル基、エチル基、 n -プロピル基、イソプロピル基、 n -ブチル基、 sec -ブチル基、 $tert$ -ブチル基をあげることができ

る。アルケニル基としては、ビニル基、アリル基、1-プロペニル基、1-メチルエテニル基をあげることができる。アルキニル基としては、エチニル基、プロパギル基をあげることができる。アリール基としては、フェニル基、トリル基、キシリル基をあげることができる。アラルキル基としては、ベンジル基をあげることができる。ヒドロカルビル基として、好ましくはアルキル基である。

[0385] X^{51} 、 X^{52} 及び X^{53} の酸素原子を有するヒドロカルビル基としては、メトキシメチル基、メトキシエチル基、エトキシメチル基、エトキシエチル基などのアルコキシアルキル基をあげることができる。

[0386] X^{51} 、 X^{52} 及び X^{53} の窒素原子を有するヒドロカルビル基としては、ジメチルアミノメチル基、ジメチルアミノエチル基、ジエチルアミノメチル基、ジエチルアミノエチル基などのジアルキルアミノアルキル基をあげることができる。

[0387] X^{51} 、 X^{52} 及び X^{53} のケイ素原子を有するヒドロカルビル基としては、トリメチルシリルメチル基、トリメチルシリルエチル基、トリエチルシリルメチル基、トリエチルシリルエチル基などのトリアルキルシリルアルキル基をあげることができる。

[0388] X^{51} 、 X^{52} 及び X^{53} の置換基を有していてもよいヒドロカルビル基の炭素原子数は、好ましくは1～10であり、より好ましくは1～4である。

[0389] X^{51} 、 X^{52} 及び X^{53} の置換基を有していてもよいヒドロカルビル基としては、好ましくは、アルキル基又はアルコキシアルキル基である。アルキル基としては、好ましくは炭素原子数が1～4のアルキル基であり、より好ましくはメチル基又はエチル基である。アルコキシアルキル基としては、好ましくは、炭素原子数2～4のアルコキシアルキル基である。

[0390] X^{51} 、 X^{52} 及び X^{53} の置換アミノ基として、好ましくは下記式(5-X)で表される基である。

[化49]



(式中、 R^{53} 及び R^{54} は、それぞれ、ヒドロカルビル基、又は、トリヒドロカルビルシリル基、あるいは、 R^{53} と R^{54} とが結合して、窒素原子及び／又は酸素原子をヘテロ原子として有していてもよいヒドロカルビレン基、又は、 R^{53} と R^{54} は1つの基であって、窒素原子に二重結合で結合する基を表す。)

[0391] R^{53} 及び R^{54} のヒドロカルビル基としては、アルキル基、アルケニル基、アルキニル基、アリール基、アラルキル基をあげることができる。アルキル基としては、メチル基、エチル基、*n*-プロピル基、イソプロピル基、*n*-ブチル基、*sec*-ブチル基、*tert*-ブチル基をあげることができる。アルケニル基としては、ビニル基、アリル基、1-プロペニル基、1-メチルエテニル基をあげることができる。アルキニル基としては、エチニル基、プロパギル基をあげることができる。アリール基としては、フェニル基、トリル基、キシリル基をあげることができる。アラルキル基としては、ベンジル基をあげることができる。

[0392] R^{53} 及び R^{54} のヒドロカルビル基の炭素原子数は、好ましくは1~10であり、より好ましくは1~4であり、更に好ましくは1~2である。

[0393] R^{53} 及び R^{54} のヒドロカルビル基としては、好ましくはアルキル基であり、より好ましくは直鎖アルキル基である。

[0394] R^{53} 及び R^{54} のトリヒドロカルビルシリル基としては、トリメチルシリル基、トリエチルシリル基、トリイソプロピルシリル基、*tert*-ブチルジメチルシリル基などのトリアルキルシリル基をあげることができる。

[0395] R^{53} 及び R^{54} のトリヒドロカルビルシリル基としては、好ましくは、炭素原子数が3~9のトリアルキルシリル基であり、より好ましくは、ケイ素原子に結合したアルキル基が炭素原子数1~3のアルキル基であるトリアルキルシリル基であり、更に好ましくは、トリメチルシリル基である。

- [0396] R^{53} 及び R^{54} が結合した窒素原子及び／又は酸素原子をヘテロ原子として有していてもよいヒドロカルビレン基としては、ヒドロカルビレン基、窒素原子を有するヒドロカルビレン基、酸素原子を有するヒドロカルビレン基などをあげることができる。ヒドロカルビレン基としては、エチレン基、トリメチレン基、テトラメチレン基、ペンタメチレン基、ヘキサメチレン基などのアルキレン基をあげることができる。窒素原子を有するヒドロカルビレン基としては、 $-CH_2CH_2-NH-CH_2-$ で表される基、 $-CH_2CH_2-N=CH-$ で表される基、 $-CH=CH-N=CH-$ で表される基、 $-CH_2CH_2-NH-CH_2CH_2-$ で表される基をあげることができる。酸素原子を有するヒドロカルビレン基としては、 $-CH_2CH_2-O-CH_2CH_2-$ で表される基をあげることができる。
- [0397] R^{53} 及び R^{54} が結合した窒素原子及び／又は酸素原子をヘテロ原子として有していてもよいヒドロカルビレン基の炭素原子数は、好ましくは 2～20 であり、より好ましくは 2～7 であり、更に好ましくは 4～6 である。
- [0398] R^{53} 及び R^{54} が結合した窒素原子及び／又は酸素原子をヘテロ原子として有していてもよいヒドロカルビレン基としては、好ましくはヒドロカルビレン基であり、より好ましくはアルキレン基であり、更に好ましくはポリメチレン基である。
- [0399] R^{53} 及び R^{54} が窒素原子に二重結合で結合する 1 つの基としては、エチリデン基、プロピリデン基、ブチリデン基、1-メチルエチリデン基、1-メチルプロピリデン基、1,3-ジメチルブチリデン基などのヒドロカルビリデン基をあげることができる。
- [0400] R^{53} 及び R^{54} が窒素原子に二重結合で結合する 1 つの基の炭素原子数は、好ましくは 2～20 であり、より好ましくは 2～6 である。
- [0401] R^{53} 及び R^{54} としては、好ましくは、アルキル基、トリアルキルシリル基、 R^{13} と R^{14} とが結合したアルキレン基であり、より好ましくはアルキル基である。
- [0402] 式 (5-X) で表される基としては、非環状アミノ基、環状アミノ基をあげ

ることができる。

[0403] 非環状アミノ基としては、ジアルキルアミノ基、ビス（トリアルキルシリル）アミノ基をあげることができる。ジアルキルアミノ基としては、ジメチルアミノ基、ジエチルアミノ基、ジ（*n*-プロピル）アミノ基、ジ（イソプロピル）アミノ基、ジ（*n*-ブチル）アミノ基、ジ（*sec*-ブチル）アミノ基、ジ（*tert*-ブチル）アミノ基、エチルメチルアミノ基をあげることができる。ビス（トリアルキルシリル）アミノ基としては、ビス（トリメチルシリル）アミノ基、ビス（*t*-ブチルジメチルシリル）アミノ基をあげることができる。

[0404] 非環状アミノ基としては、更に、エチリデンアミノ基、1-メチルプロピリデンアミノ基、1, 3-ジメチルブチリデンアミノ基、1-メチルエチリデンアミノ基、4-N, N-ジメチルアミノベンジリデンアミノ基をあげることができる。

[0405] 環状アミノ基としては、1-アジリジニル基、1-アゼチジニル基、1-ピロリジニル基、1-ピペリジニル基、1-ヘキサメチレンイミノ基、1-ヘプタメチレンイミノ基、1-オクタメチレンイミノ基、1-デカメチレンイミノ基、1-ドデカメチレンイミノ基等の1-ポリメチレンイミノ基があげられる。また、1-ピロリル基、1-ピラゾリジニル基、1-イミダゾリジニル基、1-ピラゾリル基、1-イミダゾリル基、4, 5-ジヒドロ-1-イミダゾリル基、1-ピペラジニル基、モルホリノ基があげられる。

[0406] 式（5-X）で表される基としては、好ましくは、非環状アミノ基であり、より好ましくは、ジアルキルアミノ基である。ジアルキルアミノ基として、好ましくは、ジメチルアミノ基、ジエチルアミノ基、ジ（*n*-プロピル）アミノ基、ジ（*n*-ブチル）アミノ基であり、より好ましくは、ジメチルアミノ基、ジエチルアミノ基である。

[0407] 式（5）の X^{51} 、 X^{52} 及び X^{53} の少なくとも1つが置換アミノ基であり、好ましくは、 X^{51} 、 X^{52} 及び X^{53} の2つ以上が、置換アミノ基であり、より好ましくは、 X^{51} 、 X^{52} 及び X^{53} のうち2つが、置換アミノ基である。

[0408] 式(5)で表される化合物としては、 R^{51} が水素原子であり、 X^{51} 、 X^{52} 及び X^{53} のうち1つがジアルキルアミノ基である化合物として、次の化合物をあげることができる。

[0409] w が0である化合物：

(ジメチルアミノ)ジメチルビニルシラン、
(ジエチルアミノ)ジメチルビニルシラン、
(ジ- n -プロピルアミノ)ジメチルビニルシラン、
(ジ- n -ブチルアミノ)ジメチルビニルシラン、
(ジメチルアミノ)ジエチルビニルシラン、
(ジエチルアミノ)ジエチルビニルシラン、
(ジ- n -プロピルアミノ)ジエチルビニルシラン、
(ジ- n -ブチルアミノ)ジエチルビニルシラン。

[0410] w が1である化合物：

(ジメチルアミノ)ジメチル-4-ビニルフェニルシラン、
(ジメチルアミノ)ジメチル-3-ビニルフェニルシラン、
(ジエチルアミノ)ジメチル-4-ビニルフェニルシラン、
(ジエチルアミノ)ジメチル-3-ビニルフェニルシラン、
(ジ- n -プロピルアミノ)ジメチル-4-ビニルフェニルシラン、
(ジ- n -プロピルアミノ)ジメチル-3-ビニルフェニルシラン、
(ジ- n -ブチルアミノ)ジメチル-4-ビニルフェニルシラン、
(ジ- n -ブチルアミノ)ジメチル-3-ビニルフェニルシラン、
(ジメチルアミノ)ジエチル-4-ビニルフェニルシラン、
(ジメチルアミノ)ジエチル-3-ビニルフェニルシラン、
(ジエチルアミノ)ジエチル-4-ビニルフェニルシラン、
(ジエチルアミノ)ジエチル-3-ビニルフェニルシラン、
(ジ- n -プロピルアミノ)ジエチル-4-ビニルフェニルシラン、
(ジ- n -プロピルアミノ)ジエチル-3-ビニルフェニルシラン、
(ジ- n -ブチルアミノ)ジエチル-4-ビニルフェニルシラン、

(ジー n -ブチルアミノ) ジエチルー 3 -ビニルフェニルシラン。

[0411] 式 (5) で表される化合物としては、 R^{51} が水素原子であり、 X^{51} 、 X^{52} 及び X^{53} のうち 2 つがジアルキルアミノ基である化合物として、次の化合物をあげることができる。

[0412] w が 0 である化合物：

ビス (ジメチルアミノ) メチルビニルシラン、
ビス (ジエチルアミノ) メチルビニルシラン、
ビス (ジー n -プロピルアミノ) メチルビニルシラン、
ビス (ジー n -ブチルアミノ) メチルビニルシラン、
ビス (ジメチルアミノ) エチルビニルシラン、
ビス (ジエチルアミノ) エチルビニルシラン、
ビス (ジー n -プロピルアミノ) エチルビニルシラン、
ビス (ジー n -ブチルアミノ) エチルビニルシラン。

[0413] w が 1 である化合物：

ビス (ジメチルアミノ) メチルー 4 -ビニルフェニルシラン、
ビス (ジメチルアミノ) メチルー 3 -ビニルフェニルシラン、
ビス (ジエチルアミノ) メチルー 4 -ビニルフェニルシラン、
ビス (ジエチルアミノ) メチルー 3 -ビニルフェニルシラン、
ビス (ジー n -プロピルアミノ) メチルー 4 -ビニルフェニルシラン、
ビス (ジー n -プロピルアミノ) メチルー 3 -ビニルフェニルシラン、
ビス (ジー n -ブチルアミノ) メチルー 4 -ビニルフェニルシラン、
ビス (ジー n -ブチルアミノ) メチルー 3 -ビニルフェニルシラン、
ビス (ジメチルアミノ) エチルー 4 -ビニルフェニルシラン、
ビス (ジメチルアミノ) エチルー 3 -ビニルフェニルシラン、
ビス (ジエチルアミノ) エチルー 4 -ビニルフェニルシラン、
ビス (ジエチルアミノ) エチルー 3 -ビニルフェニルシラン、
ビス (ジー n -プロピルアミノ) エチルー 4 -ビニルフェニルシラン、
ビス (ジー n -プロピルアミノ) エチルー 3 -ビニルフェニルシラン、

ビス（ジ－*n*－ブチルアミノ）エチル－４－ビニルフェニルシラン、
ビス（ジ－*n*－ブチルアミノ）エチル－３－ビニルフェニルシラン。

[0414] 式（５）で表される化合物としては、 R^{51} がメチル基であり、 X^{51} 、 X^{52} 及び X^{53} のうち２つがジアルキルアミノ基である化合物として、次の化合物をあげることができる。

[0415] *w*が１である化合物：

ビス（ジメチルアミノ）メチル－４－イソプロペニルフェニルシラン、
ビス（ジメチルアミノ）メチル－３－イソプロペニルフェニルシラン、
ビス（ジエチルアミノ）メチル－４－イソプロペニルフェニルシラン、
ビス（ジエチルアミノ）メチル－３－イソプロペニルフェニルシラン、
ビス（ジ－*n*－プロピルアミノ）メチル－４－イソプロペニルフェニルシラン、
ビス（ジ－*n*－プロピルアミノ）メチル－３－イソプロペニルフェニルシラン、
ビス（ジ－*n*－ブチルアミノ）メチル－４－イソプロペニルフェニルシラン、
ビス（ジ－*n*－ブチルアミノ）メチル－３－イソプロペニルフェニルシラン、
ビス（ジメチルアミノ）エチル－４－イソプロペニルフェニルシラン、
ビス（ジメチルアミノ）エチル－３－イソプロペニルフェニルシラン、
ビス（ジエチルアミノ）エチル－４－イソプロペニルフェニルシラン、
ビス（ジエチルアミノ）エチル－３－イソプロペニルフェニルシラン、
ビス（ジ－*n*－プロピルアミノ）エチル－４－イソプロペニルフェニルシラン、
ビス（ジ－*n*－プロピルアミノ）エチル－３－イソプロペニルフェニルシラン、
ビス（ジ－*n*－ブチルアミノ）エチル－４－イソプロペニルフェニルシラン、
、

ビス（ジ-*n*-ブチルアミノ）エチル-3-イソプロペニルフェニルシラン。
。

[0416] 式（5）で表される化合物としては、 R^{51} がビニル基であり、 X^{51} 、 X^{52} 及び X^{53} のうち2つがジアルキルアミノ基である化合物として、次の化合物をあげることができる。

[0417] w が0である化合物：

ビス（ジメチルアミノ）メチル（1-メチレン-2-プロペニル）シラン、
ビス（ジエチルアミノ）メチル（1-メチレン-2-プロペニル）シラン、
ビス（ジ-*n*-プロピルアミノ）メチル（1-メチレン-2-プロペニル）シラン、

ビス（ジ-*n*-ブチルアミノ）メチル（1-メチレン-2-プロペニル）シラン、

ビス（ジメチルアミノ）エチル（1-メチレン-2-プロペニル）シラン、
ビス（ジエチルアミノ）エチル（1-メチレン-2-プロペニル）シラン、
ビス（ジ-*n*-プロピルアミノ）エチル（1-メチレン-2-プロペニル）シラン、

ビス（ジ-*n*-ブチルアミノ）エチル（1-メチレン-2-プロペニル）シラン。

[0418] 式（5）で表される化合物としては、 R^{51} が水素原子であり、 X^{51} 、 X^{52} 及び X^{53} の3つがジアルキルアミノ基である化合物として、次の化合物をあげることができる。

[0419] w が0である化合物：

トリス（ジメチルアミノ）ビニルシラン、
トリス（ジエチルアミノ）ビニルシラン、
トリス（ジ-*n*-プロピルアミノ）ビニルシラン、
トリス（ジ-*n*-ブチルアミノ）ビニルシラン。

[0420] w が1である化合物：

トリス（ジメチルアミノ）-4-ビニルフェニルシラン、

トリス（ジメチルアミノ）－３－ビニルフェニルシラン、
トリス（ジエチルアミノ）－４－ビニルフェニルシラン、
トリス（ジエチルアミノ）－３－ビニルフェニルシラン、
トリス（ジーｎ－プロピルアミノ）－４－ビニルフェニルシラン、
トリス（ジーｎ－プロピルアミノ）－３－ビニルフェニルシラン、
トリス（ジーｎ－ブチルアミノ）－４－ビニルフェニルシラン、
トリス（ジーｎ－ブチルアミノ）－３－ビニルフェニルシラン。

[0421] 式（５）で表される化合物としては、 R^{51} がメチル基であり、 X^{51} 、 X^{52} 及び X^{53} の３つがジアルキルアミノ基である化合物として、次の化合物をあげることができる。

[0422] w が１である化合物：

トリス（ジメチルアミノ）－４－イソプロペニルフェニルシラン、
トリス（ジメチルアミノ）－３－イソプロペニルフェニルシラン、
トリス（ジエチルアミノ）－４－イソプロペニルフェニルシラン、
トリス（ジエチルアミノ）－３－イソプロペニルフェニルシラン、
トリス（ジーｎ－プロピルアミノ）－４－イソプロペニルフェニルシラン、
トリス（ジーｎ－プロピルアミノ）－３－イソプロペニルフェニルシラン、
トリス（ジーｎ－ブチルアミノ）－４－イソプロペニルフェニルシラン、
トリス（ジーｎ－ブチルアミノ）－３－イソプロペニルフェニルシラン。

[0423] 式（５）で表される化合物としては、 R^{51} がビニル基であり、 X^{51} 、 X^{52} 及び X^{53} の３つがジアルキルアミノ基である化合物として、次の化合物をあげることができる。

[0424] w が０である化合物：

トリス（ジメチルアミノ）（１－メチレン－２－プロペニル）シラン、
トリス（ジエチルアミノ）（１－メチレン－２－プロペニル）シラン、
トリス（ジーｎ－プロピルアミノ）（１－メチレン－２－プロペニル）シラン、
トリス（ジーｎ－ブチルアミノ）（１－メチレン－２－プロペニル）シラン

。

[0425] 式(5)で表される化合物としては、好ましくは、 X^{51} 、 X^{52} 及び X^{53} のうち2つがジアルキルアミノ基である化合物であり、より好ましくは、 R^{51} が水素原子であり、 $w=0$ である化合物である。更に好ましくは、 X^{51} 、 X^{52} 及び X^{53} のうち残りの1つがアルキル基又はアルコキシアルキル基である化合物である。特に好ましくは、

ビス(ジメチルアミノ)メチルビニルシラン、
ビス(ジエチルアミノ)メチルビニルシラン、
ビス(ジー n -プロピルアミノ)メチルビニルシラン、
ビス(ジー n -ブチルアミノ)メチルビニルシラン、
ビス(ジメチルアミノ)エチルビニルシラン、
ビス(ジエチルアミノ)エチルビニルシラン、
ビス(ジー n -プロピルアミノ)エチルビニルシラン、
ビス(ジー n -ブチルアミノ)エチルビニルシランである。

[0426] 上記式(6)の R^{61} は水素原子又はヒドロカルビル基を表す。

[0427] R^{61} のヒドロカルビル基としては、アルキル基、アルケニル基をあげることができる。

アルキル基としては、メチル基、エチル基、 n -プロピル基、イソプロピル基、 n -ブチル基、*sec*-ブチル基、*tert*-ブチル基をあげることができ、好ましくはメチル基である。アルケニル基としては、ビニル基、アリル基、1-プロペニル基、1-メチルエテニル基をあげることができ、好ましくはビニル基である。

[0428] R^{61} として、好ましくは、水素原子、メチル基、ビニル基である。

[0429] R^{62} のヒドロカルビレン基としては、アルキレン基、アリレーン基、アリレーン基とアルキレン基とが結合した基をあげることができる。

[0430] アルキレン基としては、メチレン基、エチレン基、トリメチレン基をあげることができる。好ましくは、メチレン基又はエチレン基である。

[0431] アリレーン基としては、フェニレン基、ナフチレン基、ビフェニレン基をあ

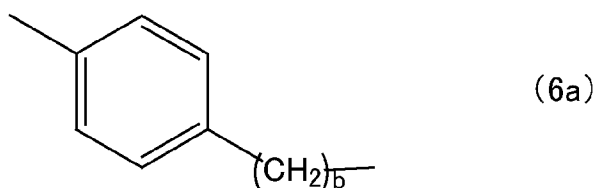
げることができる。好ましくはフェニレン基である。

[0432] アリレン基とアルキレン基とが結合した基としては、フェニレン基とアルキレン基とが結合した基、ナフチレン基とアルキレン基とが結合した基、ビフェニレン基とアルキレン基とが結合した基をあげることができ、好ましくはフェニレン基とアルキレン基が結合した基である。

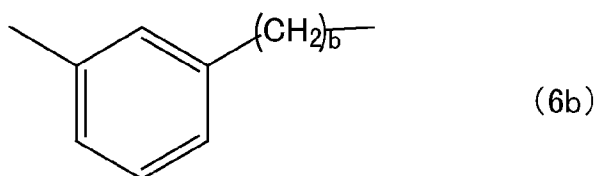
[0433] また、アリレン基とアルキレン基とが結合した基は、式(6)の R^{61} が結合している炭素原子に、アリレン基の炭素原子が結合することが好ましい。

[0434] フェニレン基とアルキレン基とが結合した基（フェニレンーアルキレン基）では、水素原子が除かれたベンゼン環上の炭素原子とアルキレン基が結合するフェニレン基との位置によって、パラフェニレンーアルキレン基（例えば、下記式(6a)で表される基。）、メタフェニレンーアルキレン基（例えば、下記式(6b)で表される基。）、オルトフェニレンーアルキレン基（例えば、下記式(6c)で表される基。）をあげることができる。

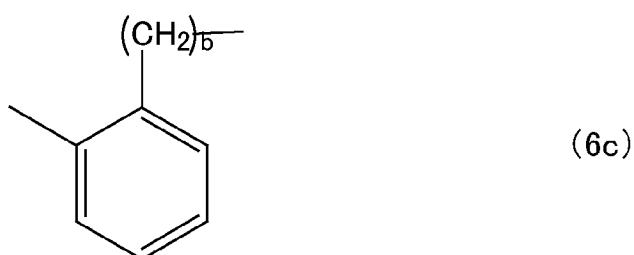
[化50]



[化51]



[化52]

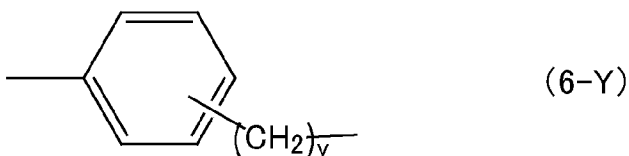


(式中、 b は1～10の整数を表す。)

[0435] アリレン基とアルキレン基とが結合した基としては、好ましくは、フェニレン基とアルキレン基とが結合した基であり、より好ましくは、上記式(6a)で表される基、上記式(6b)で表される基であり、更に好ましくは、パラフェニレンーメチレン基($b=1$ である式(6a)で表される基)、メタフェニレンーメチレン基($b=1$ である式(6b)で表される基)、パラフェニレンーエチレン基($b=2$ である式(6a)で表される基)、メタフェニレンーエチレン基($b=2$ である式(6b)で表される基)である。

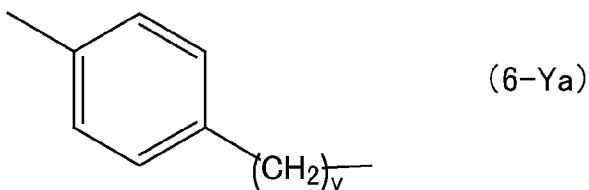
[0436] R^{61} が水素原子又はメチル基であり、 x が1である場合、 R^{62} は、好ましくは、アリレン基とアルキレン基とが結合した基又はアリレン基であり、より好ましくは、フェニレン基とアルキレン基とが結合した基又はフェニレン基であり、更に好ましくは、下記式(6-Y)で表される基であり、特に好ましくは、下記式(6-Ya)で表される基又は下記式(6-Yb)で表される基である。また、式中 y は0～5であり、好ましくは0～2である。

[化53]

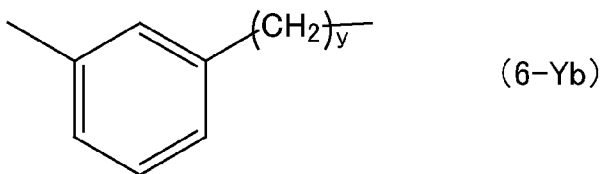


(式中、 y は0～5の整数を表し、 y が1～5の整数である場合、 $(CH_2)_y$ はベンゼン環上の置換基であり、 $(CH_2)_y$ が A^6 と結合し、 y が0である場合、 $(CH_2)_y$ はベンゼン環と A^6 との結合を表す。)

[化54]



[化55]



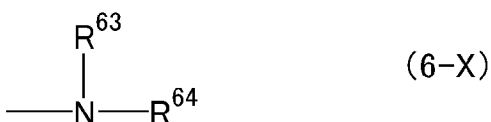
(式中、 y は 0 ～ 5 の整数を表し、 y が 1 ～ 5 の整数である場合、 $(CH_2)_y$ が A^6 と結合し、 y が 0 である場合、 $(CH_2)_y$ はベンゼン環と A^6 との結合を表す。)

[0437] R^{61} がビニル基であり、 x が 1 の場合、 R^{62} は、好ましくはアルキレン基であり、より好ましくはメチレン基又はエチレン基である。

[0438] A^6 は、置換アミノ基、又は、含窒素複素環基を表す。

[0439] A^6 の置換アミノ基としては、好ましくは下記式 (6-X) で表される基である。

[化56]



(式中、 R^{63} 及び R^{64} は、それぞれ、ヒドロカルビル基、又は、トリヒドロカルビルシリル基、あるいは、 R^{63} と R^{64} とが結合して、窒素原子及び／又は酸素原子をヘテロ原子として有していてもよいヒドロカルビレン基、又は、 R^{63} と R^{64} は 1 つの基であって、窒素原子に二重結合で結合する基を表す。)

[0440] R^{63} 及び R^{64} のヒドロカルビル基としては、アルキル基、アルケニル基、アルキニル基、アリール基、アラルキル基をあげることができる。アルキル基としては、メチル基、エチル基、 n -プロピル基、イソプロピル基、 n -ブチル基、 sec -ブチル基、 $tert$ -ブチル基をあげることができる。アルケニル基としては、ビニル基、アリル基、1-プロペニル基、1-メチルエテニル基をあげることができる。アルキニル基としては、エチニル基、プロパギル基をあげることができる。アリール基としては、フェニル基、トリ

ル基、キシリル基をあげることができる。アラルキル基としては、ベンジル基をあげることができる。

[0441] R^{63} 及び R^{64} のヒドロカルビル基の炭素原子数は、好ましくは 1 ~ 10 であり、より好ましくは 1 ~ 4 であり、更に好ましくは 1 ~ 2 である。

[0442] R^{63} 及び R^{64} のヒドロカルビル基としては、好ましくは、アルキル基、アルケニル基であり、より好ましくは、アルキル基であり、更に好ましくは、直鎖アルキル基である。

[0443] R^{63} 及び R^{64} のトリヒドロカルビルシリル基としては、トリメチルシリル基、トリエチルシリル基、トリイソプロピルシリル基、tert-ブチルジメチルシリル基などのトリアルキルシリル基をあげることができる。

[0444] R^{63} 及び R^{64} のトリヒドロカルビルシリル基としては、好ましくは、炭素原子数が 3 ~ 9 のトリアルキルシリル基であり、より好ましくは、ケイ素原子に結合したアルキル基が炭素原子数 1 ~ 4 のアルキル基であるトリアルキルシリル基であり、更に好ましくは、トリメチルシリル基である。

[0445] R^{63} 及び R^{64} が結合した窒素原子及び／又は酸素原子をヘテロ原子として有していてもよいヒドロカルビレン基としては、ヒドロカルビレン基、窒素原子を有するヒドロカルビレン基、酸素原子を有するヒドロカルビレン基などをあげることができる。ヒドロカルビレン基としては、エチレン基、トリメチレン基、テトラメチレン基、ペンタメチレン基、ヘキサメチレン基などのアルキレン基をあげることができる。窒素原子を有するヒドロカルビレン基としては、 $-CH_2CH_2-NH-CH_2-$ で表される基、 $-CH_2CH_2-N=CH-$ で表される基、 $-CH=CH-N=CH-$ で表される基、 $-CH_2CH_2-NH-CH_2CH_2-$ で表される基をあげることができる。酸素原子を有するヒドロカルビレン基としては、 $-CH_2CH_2-O-CH_2CH_2-$ で表される基をあげることができる。

[0446] R^{63} 及び R^{64} が結合した窒素原子及び／又は酸素原子をヘテロ原子として有していてもよいヒドロカルビレン基の炭素原子数は、好ましくは 2 ~ 20 であり、より好ましくは 2 ~ 7 であり、更に好ましくは 4 ~ 6 である。

- [0447] R^{63} 及び R^{64} が結合した窒素原子及び／又は酸素原子をヘテロ原子として有していてもよいヒドロカルビレン基としては、好ましくはヒドロカルビレン基であり、より好ましくはアルキレン基であり、更に好ましくはポリメチレン基である。
- [0448] R^{63} 及び R^{64} が窒素原子に二重結合で結合する1つの基としては、エチリデン基、プロピリデン基、ブチリデン基、1-メチルエチリデン基、1-メチルプロピリデン基、1,3-ジメチルブチリデン基などのヒドロカルビリデン基をあげることができる。
- [0449] R^{63} 及び R^{64} が窒素原子に二重結合で結合する1つの基の炭素原子数は、好ましくは2～20であり、より好ましくは2～6である。
- [0450] R^{63} 及び R^{64} としては、好ましくは、ヒドロカルビル基、トリヒドロカルビルシリル基、 R^{63} と R^{64} とが結合したヒドロカルビレン基である。
- [0451] 式(6-X)で表される基としては、非環状アミノ基、環状アミノ基をあげることができる。
- [0452] 非環状アミノ基としては、ジアルキルアミノ基、ビス(トリアルキルシリル)アミノ基をあげることができる。ジアルキルアミノ基としては、ジメチルアミノ基、ジエチルアミノ基、ジ(n-プロピル)アミノ基、ジ(イソプロピル)アミノ基、ジ(n-ブチル)アミノ基、ジ(sec-ブチル)アミノ基、ジ(tert-ブチル)アミノ基、エチルメチルアミノ基をあげることができる。ビス(トリアルキルシリル)アミノ基としては、ビス(トリメチルシリル)アミノ基、ビス(tert-ブチルジメチルシリル)アミノ基をあげることができる。
- [0453] 非環状アミノ基としては、更に、エチリデンアミノ基、1-メチルプロピリデンアミノ基、1,3-ジメチルブチリデンアミノ基、1-メチルエチリデンアミノ基、4-N,N-ジメチルアミノベンジリデンアミノ基をあげることができる。
- [0454] 環状アミノ基としては、1-アジリジニル基、1-アゼチジニル基、1-ピロリジニル基、1-ピペリジニル基、1-ヘキサメチレンイミノ基、1-イ

ミダゾリル基、4, 5-ジヒドロ-1-イミダゾリル基、1-ピロリル基、1-ピラゾリル基、1-イミダゾリジニル基、1-ピペラジニル基、モルホリノ基をあげることができる。

[0455] 式(6-X)で表される基としては、好ましくは、 R^{63} 及び R^{64} がヒドロカルビル基である基、 R^{63} 及び R^{64} がトリヒドロカルビルシリル基である基、 R^{63} 及び R^{64} が結合したヒドロカルビレン基である基である。より好ましくは、 R^{63} 及び R^{64} が直鎖アルキル基である基、 R^{23} 及び R^{24} がトリアルキルシリル基である基、 R^{63} 及び R^{64} が結合したポリメチレン基である基である。

[0456] 式(6-X)で表される基としては、更に好ましくは、ジメチルアミノ基、ジエチルアミノ基、ジ(n-プロピル)アミノ基、ジ(n-ブチル)アミノ基、ビス(トリメチルシリル)アミノ基、ビス(tert-ブチルジメチルシリル)アミノ基、1-ピロリジニル基、1-ピペリジニル基、1-ヘキサメチレンイミノ基であり、特に好ましくは、1-ピロリジニル基である。

[0457] A^6 の含窒素複素環基としては、含窒素脂肪族複素環基、含窒素芳香族複素環基をあげることができる。本明細書では、含窒素脂肪族複素環基は、含窒素脂肪族複素環を有する化合物の複素環の炭素原子から1つの水素原子を除いた基を表し、含窒素脂肪族複素環は、環を構成するヘテロ原子として窒素原子を有する脂肪族複素環を表す。また、含窒素芳香族複素環基は、含窒素芳香族複素環を有する化合物の複素環の炭素原子から1つの水素原子を除いた基を表し、含窒素芳香族複素環は、環を構成するヘテロ原子として窒素原子を有する芳香族複素環を表す。

[0458] A^6 の含窒素脂肪族複素環基としては、環を構成するヘテロ原子として窒素原子のみを有する基、環を構成するヘテロ原子として窒素原子と酸素原子を有する基、環を構成するヘテロ原子として窒素原子と硫黄原子を有する基などをあげることができる。

[0459] 環を構成するヘテロ原子として窒素原子のみを有する含窒素脂肪族複素環基としては、アジリジン環を有する基、アゼチジン環を有する基、ピロリジン

環を有する基、ピペリジン環を有する基、ヘキサメチレンイミン環を有する基、イミダゾリジン環を有する基、ピペラジン環を有する基、ピラゾリジン環を有する基などをあげることができる。

[0460] アジリジン環を有する基としては、N-アルキル-2-アジリジニル基をあげることができる。

アゼチジン環を有する基としては、N-アルキル-2-アゼチジニル基、N-アルキル-3-アゼチジニル基をあげることができる。

ピロリジン環を有する基としては、N-アルキル-2-ピロリジニル基、N-アルキル-3-ピロリジニル基をあげることができる。

ピペリジン環を有する基としては、N-アルキル-2-ピペリジニル基、N-アルキル-3-ピペリジニル基、N-アルキル-4-ピペリジニル基をあげることができる。

ヘキサメチレンイミン環を有する基としては、N-アルキル-2-ヘキサメチレンイミノ基、N-アルキル-3-ヘキサメチレンイミノ基、N-アルキル-4-ヘキサメチレンイミノ基をあげることができる。

イミダゾリジン環を有する基としては、1, 3-ジアルキル-2-イミダゾリジニル基、1, 3-ジアルキル-4-イミダゾリジニル基をあげることができる。

ピペラジン環を有する基としては、1, 4-ジアルキル-2-ピペラジニル基をあげることができる。

ピラゾリジン環を有する基としては、1, 2-ジアルキル-3-ピラゾリジニル基、1, 2-ジアルキル-4-ピラゾリジニル基をあげることができる。

[0461] 環を構成するヘテロ原子として窒素原子と酸素原子を有する含窒素脂肪族複素環基としては、モルホリン環を有する基、イソオキサゾリジン環を有する基などをあげることができる。

[0462] モルホリン環を有する基としては、N-アルキル-2-モルホリノ基、N-アルキル-3-モルホリノ基をあげることができる。

イソオキサゾリジン環を有する基としては、N-アルキル-3-イソオキサ

ゾリジニル基、N-アルキル-4-イソオキサゾリジニル基、N-アルキル-5-イソオキサゾリジニル基をあげることができる。

[0463] 環を構成するヘテロ原子として窒素原子と硫黄原子を有する含窒素脂肪族複素環基としては、チオモルホリン環を有する基、イソチアゾリジン環を有する基をあげることができる。

[0464] チオモルホリン環を有する基としては、N-アルキル-2-チオモルホリノ基、N-アルキル-3-チオモルホリノ基をあげることができる。

イソチアゾリジン環を有する基としては、N-アルキル-3-イソチアゾリジニル基、N-アルキル-4-イソチアゾリジニル基、N-アルキル-5-イソチアゾリジニル基をあげることができる。

[0465] A⁶の含窒素脂肪族複素環基としては、好ましくは、環を構成するヘテロ原子として窒素原子のみを有する基である。また、含窒素脂肪族複素環基の炭素原子数は、好ましくは4～10である。

[0466] A⁶の含窒素芳香族複素環基としては、環を構成するヘテロ原子として窒素原子のみを有する基、環を構成するヘテロ原子として窒素原子と酸素原子を有する基、環を構成するヘテロ原子として窒素原子と硫黄原子を有する基などをあげることができる。

[0467] 環を構成するヘテロ原子として窒素原子のみを有する含窒素芳香族複素環基としては、ピロール環を有する基、イミダゾール環を有する基、ピラゾール環を有する基、ピリジン環を有する基、ピリダジン環を有する基、ピリミジン環を有する基、ピラジン環を有する基、キノリン環を有する基、イソキノリン環を有する基、シンノリン環を有する基、キナゾリン環を有する基、フタラジン環を有する基などをあげることができる。

[0468] ピロール環を有する基としては、2-ピロリル基、3-ピロリル基、2-(N-メチルピロリル)基、3-(N-メチルピロリル)基をあげることができる。

イミダゾール環を有する基としては、2-イミダゾリル基、4-イミダゾリル基、5-イミダゾリル基、2-(N-メチルイミダゾリル)基、4-(N

ーメチルイミダゾリル) 基、5- (N-メチルイミダゾリル) 基をあげることができる。

ピラゾール環を有する基としては、3-ピラゾリル基、4-ピラゾリル基、5-ピラゾリル基、3- (N-メチルピラゾリル) 基、4- (N-メチルピラゾリル) 基、5- (N-メチルピラゾリル) 基をあげることができる。

ピリジン環を有する基としては、2-ピリジル基、3-ピリジル基、4-ピリジル基をあげることができる。

ピリダジン環を有する基としては、3-ピリダジル基、4-ピリダジル基をあげることができる。

ピリミジン環を有する基としては、2-ピリミジル基、4-ピリミジル基、5-ピリミジル基をあげることができる。

ピラジン環を有する基としては、2-ピラジル基をあげることができる。

キノリン環を有する基としては、2-キノリル基、3-キノリル基、4-キノリル基、5-キノリル基、6-キノリル基、7-キノリル基、8-キノリル基をあげることができる。

イソキノリン環を有する基としては、1-イソキノリル基、3-イソキノリル基、4-イソキノリル基、5-イソキノリル基、6-イソキノリル基、7-イソキノリル基、8-イソキノリル基をあげることができる。

シンノリン環を有する基としては、3-シンノリニル基、4-シンノリニル基、5-シンノリニル基、6-シンノリニル基、7-シンノリニル基、8-シンノリニル基をあげることができる。

キナゾリン環を有する基としては、2-キナゾリニル基、4-キナゾリニル基、5-キナゾリニル基、6-キナゾリニル基、7-キナゾリニル基、8-キナゾリニル基をあげることができる。

フタラジン環を有する基としては、1-フタラジニル基、5-フタラジニル基、6-フタラジニル基をあげることができる。

環を構成するヘテロ原子として窒素原子のみを有する含窒素芳香族複素環基としては、好ましくは、イミダゾール環を有する基、ピリジン環を有する基

、キノリン環を有する基である。

[0469] 環を構成するヘテロ原子として窒素原子と酸素原子を有する含窒素芳香族複素環基としては、オキサゾール環を有する基、イソオキサゾール環を有する基をあげることができる。

[0470] オキサゾール環を有する基としては、2-オキサゾリル基、4-オキサゾリル基、5-オキサゾリル基をあげることができる。

イソオキサゾール環を有する基としては、3-イソオキサゾリル基、4-イソオキサゾリル基、5-イソオキサゾリル基をあげることができる。

環を構成するヘテロ原子として窒素原子と酸素原子を有する含窒素芳香族複素環基としては、好ましくは、オキサゾール環を有する基である。

[0471] 環を構成するヘテロ原子として窒素原子と硫黄原子を有する含窒素芳香族複素環基としては、チアゾール環を有する基、イソチアゾール環を有する基などをあげることができる。

[0472] チアゾール環を有する基としては、2-チアゾリル基、4-チアゾリル基、5-チアゾリル基をあげることができる。

イソチアゾール環を有する基としては、3-イソチアゾリル基、4-イソチアゾリル基、5-イソチアゾリル基をあげることができる。

環を構成するヘテロ原子として窒素原子と硫黄原子を有する含窒素芳香族複素環基としては、好ましくは、チアゾール環を有する基である。

[0473] A⁶の含窒素複素環基としては、好ましくは、含窒素芳香族複素環基であり、より好ましくは、環を構成するヘテロ原子として窒素原子のみを有する含窒素芳香族複素環基であり、更に好ましくは、イミダゾール環を有する基、ピリジン環を有する基、キノリン環を有する基であり、特に好ましくはピリジン環を有する基である。

[0474] 式(6)で表される化合物としては、R^{6.1}が水素原子であり、xが0であり、A⁶が置換アミノ基である化合物として、次の化合物をあげることができる。

[0475] 1-ビニルピロリジン、

1-ビニルピペリジン、
1-ビニルヘキサメチレンイミン、
1-ビニルピペラジン、
1-ビニルピロール、
1-ビニルイミダゾール、
1-ビニルピラゾール、
ビニルキノリン。

[0476] 式(6)で表される化合物としては、 R^{61} が水素原子であり、 x が1であり、 R^{62} が式(6-Y)で表される基であり、 A^6 が置換アミノ基である化合物として、次の化合物をあげることができる。

[0477] 式(6-Y)の y が0である化合物：

4-N, N-ジメチルアミノスチレン、
3-N, N-ジメチルアミノスチレン、
4-N, N-ジエチルアミノスチレン、
3-N, N-ジエチルアミノスチレン、
4-N, N-ジー n -プロピルアミノスチレン、
3-N, N-ジー n -プロピルアミノスチレン、
4-N, N-ジー n -ブチルアミノスチレン、
3-N, N-ジー n -ブチルアミノスチレン、
4-N, N-ジアリルアミノスチレン、
3-N, N-ジアリルアミノスチレン、
4-N, N-ビス(トリメチルシリル)アミノスチレン、
3-N, N-ビス(トリメチルシリル)アミノスチレン、
4-N, N-ビス(*tert*-ブチルジメチルシリル)アミノスチレン、
3-N, N-ビス(*tert*-ブチルジメチルシリル)アミノスチレン、
4-(1-アジリジニル)スチレン、
3-(1-アジリジニル)スチレン、
4-(1-ピロリジニル)スチレン、

- 3 - (1 - ピロリジニル) スチレン、
- 4 - (1 - ピペリジニル) スチレン、
- 3 - (1 - ピペリジニル) スチレン、
- 4 - (1 - ヘキサメチレンイミノ) スチレン、
- 3 - (1 - ヘキサメチレンイミノ) スチレン。

[0478] 式 (6 - Y) の y が 1 である化合物：

- 4 - N, N - ジメチルアミノメチルスチレン、
- 3 - N, N - ジメチルアミノメチルスチレン、
- 4 - N, N - ジエチルアミノメチルスチレン、
- 3 - N, N - ジエチルアミノメチルスチレン、
- 4 - N, N - ジー n - プロピルアミノメチルスチレン、
- 3 - N, N - ジー n - プロピルアミノメチルスチレン、
- 4 - N, N - ジー n - ブチルアミノメチルスチレン、
- 3 - N, N - ジー n - ブチルアミノメチルスチレン、
- 4 - N, N - ジアリルアミノメチルスチレン、
- 3 - N, N - ジアリルアミノメチルスチレン、
- 4 - N, N - ビス (トリメチルシリル) アミノメチルスチレン、
- 3 - N, N - ビス (トリメチルシリル) アミノメチルスチレン、
- 4 - N, N - ビス (t e r t - ブチルジメチルシリル) アミノメチルスチレン、
- 3 - N, N - ビス (t e r t - ブチルジメチルシリル) アミノメチルスチレン、
- 4 - (1 - アジリジニル) メチルスチレン、
- 3 - (1 - アジリジニル) メチルスチレン、
- 4 - (1 - ピロリジニル) メチルスチレン、
- 3 - (1 - ピロリジニル) メチルスチレン、
- 4 - (1 - ピペリジニル) メチルスチレン、
- 3 - (1 - ピペリジニル) メチルスチレン、

4 - (1 - ヘキサメチレンイミノ) メチルスチレン、

3 - (1 - ヘキサメチレンイミノ) メチルスチレン。

[0479] 式 (6 - Y) の y が 2 である化合物：

4 - N, N - ジメチルアミノエチルスチレン、

3 - N, N - ジメチルアミノエチルスチレン、

4 - N, N - ジエチルアミノエチルスチレン、

3 - N, N - ジエチルアミノエチルスチレン、

4 - N, N - ジ - n - プロピルアミノエチルスチレン、

3 - N, N - ジ - n - プロピルアミノエチルスチレン、

4 - N, N - ジ - n - ブチルアミノエチルスチレン、

3 - N, N - ジ - n - ブチルアミノエチルスチレン、

4 - N, N - ジアリルアミノエチルスチレン、

3 - N, N - ジアリルアミノエチルスチレン、

4 - N, N - ビス (トリメチルシリル) アミノエチルスチレン、

3 - N, N - ビス (トリメチルシリル) アミノエチルスチレン、

4 - N, N - ビス (tert - ブチルジメチルシリル) アミノエチルスチレン、

3 - N, N - ビス (tert - ブチルジメチルシリル) アミノエチルスチレン、

4 - (1 - アジリジニル) エチルスチレン、

3 - (1 - アジリジニル) エチルスチレン、

4 - (1 - ピロリジニル) エチルスチレン、

3 - (1 - ピロリジニル) エチルスチレン、

4 - (1 - ピペリジニル) エチルスチレン、

3 - (1 - ピペリジニル) エチルスチレン、

4 - (1 - ヘキサメチレンイミノ) エチルスチレン、

3 - (1 - ヘキサメチレンイミノ) エチルスチレン。

[0480] 式 (6) で表される化合物としては、R⁶¹ がメチル基であり、x が 0 であり

、 A^6 が置換アミノ基である化合物として、次の化合物をあげることができる。

[0481] 1-イソプロペニルピロリジン、
1-イソプロペニルピペリジン、
1-イソプロペニルヘキサメチレンイミン、
1-イソプロペニルピペラジン、
1-イソプロペニルピロール、
1-イソプロペニルイミダゾール、
1-イソプロペニルピラゾール、
イソプロペニルキノリン。

[0482] 式(6)で表される化合物としては、 R^{61} がメチル基であり、 x が1であり、 R^{62} が式(6-Y)で表される基であり、 A^6 が置換アミノ基である化合物として、次の化合物をあげることができる。

[0483] 式(6-Y)の y が0である化合物：

4-N, N-ジメチルアミノイソプロペニルベンゼン、
3-N, N-ジメチルアミノイソプロペニルベンゼン、
4-N, N-ジエチルアミノイソプロペニルベンゼン、
3-N, N-ジエチルアミノイソプロペニルベンゼン、
4-N, N-ジー n -プロピルアミノイソプロペニルベンゼン、
3-N, N-ジー n -プロピルアミノイソプロペニルベンゼン、
4-N, N-ジー n -ブチルアミノイソプロペニルベンゼン、
3-N, N-ジー n -ブチルアミノイソプロペニルベンゼン、
4-N, N-ジアリルアミノイソプロペニルベンゼン、
3-N, N-ジアリルアミノイソプロペニルベンゼン、
4-N, N-ビス(トリメチルシリル)アミノイソプロペニルベンゼン、
3-N, N-ビス(トリメチルシリル)アミノイソプロペニルベンゼン、
4-N, N-ビス(*tert*-ブチルジメチルシリル)アミノイソプロペニルベンゼン、
3-N, N-ビス(*tert*-ブチルジメチルシリル)アミノ

イソプロペニルベンゼン、4-(1-アジリジニル)イソプロペニルベンゼン、

3-(1-アジリジニル)イソプロペニルベンゼン、

4-(1-ピロリジニル)イソプロペニルベンゼン、

3-(1-ピロリジニル)イソプロペニルベンゼン、

4-(1-ピペリジニル)イソプロペニルベンゼン、

3-(1-ピペリジニル)イソプロペニルベンゼン、

4-(1-ヘキサメチレンイミノ)イソプロペニルベンゼン、

3-(1-ヘキサメチレンイミノ)イソプロペニルベンゼン。

[0484] 式(6-Y)のyが1である化合物：

4-N, N-ジメチルアミノメチルイソプロペニルベンゼン、

3-N, N-ジメチルアミノメチルイソプロペニルベンゼン、

4-N, N-ジエチルアミノメチルイソプロペニルベンゼン、

3-N, N-ジエチルアミノメチルイソプロペニルベンゼン、

4-N, N-ジー n-プロピルアミノメチルイソプロペニルベンゼン、

3-N, N-ジー n-プロピルアミノメチルイソプロペニルベンゼン、

4-N, N-ジー n-ブチルアミノメチルイソプロペニルベンゼン、

3-N, N-ジー n-ブチルアミノメチルイソプロペニルベンゼン、

4-N, N-ジアリルアミノメチルイソプロペニルベンゼン、

3-N, N-ジアリルアミノメチルイソプロペニルベンゼン、

4-N, N-ビス(トリメチルシリル)アミノメチルイソプロペニルベンゼン、

3-N, N-ビス(トリメチルシリル)アミノメチルイソプロペニルベンゼン、

4-N, N-ビス(t e r t-ブチルジメチルシリル)アミノメチルイソプロペニルベンゼン、

3-N, N-ビス(t e r t-ブチルジメチルシリル)アミノメチルイソプロペニルベンゼン、

4 - (1 - アジリジニル) メチルイソプロペニルベンゼン、
3 - (1 - アジリジニル) メチルイソプロペニルベンゼン、
4 - (1 - ピロリジニル) メチルイソプロペニルベンゼン、
3 - (1 - ピロリジニル) メチルイソプロペニルベンゼン、
4 - (1 - ピペリジニル) メチルイソプロペニルベンゼン、
3 - (1 - ピペリジニル) メチルイソプロペニルベンゼン、
4 - (1 - ヘキサメチレンイミノ) メチルイソプロペニルベンゼン、
3 - (1 - ヘキサメチレンイミノ) メチルイソプロペニルベンゼン。

[0485] 式 (6 - Y) の y が 2 である化合物：

4 - N, N - ジメチルアミノエチルイソプロペニルベンゼン、
3 - N, N - ジメチルアミノエチルイソプロペニルベンゼン、
4 - N, N - ジエチルアミノエチルイソプロペニルベンゼン、
3 - N, N - ジエチルアミノエチルイソプロペニルベンゼン、
4 - N, N - ジー n - プロピルアミノエチルイソプロペニルベンゼン、
3 - N, N - ジー n - プロピルアミノエチルイソプロペニルベンゼン、
4 - N, N - ジー n - ブチルアミノエチルイソプロペニルベンゼン、
3 - N, N - ジー n - ブチルアミノエチルイソプロペニルベンゼン、
4 - N, N - ジアリルアミノエチルイソプロペニルベンゼン、
3 - N, N - ジアリルアミノエチルイソプロペニルベンゼン、
4 - N, N - ビス (トリメチルシリル) アミノエチルイソプロペニルベンゼン、
3 - N, N - ビス (トリメチルシリル) アミノエチルイソプロペニルベンゼン、
4 - N, N - ビス (tert - ブチルジメチルシリル) アミノエチルイソプロペニルベンゼン、
3 - N, N - ビス (tert - ブチルジメチルシリル) アミノエチルイソプロペニルベンゼン、
4 - (1 - アジリジニル) エチルイソプロペニルベンゼン、

3- (1-アジリジニル) エチルイソプロペニルベンゼン、
4- (1-ピロリジニル) エチルイソプロペニルベンゼン、
3- (1-ピロリジニル) エチルイソプロペニルベンゼン、
4- (1-ピペリジニル) エチルイソプロペニルベンゼン、
3- (1-ピペリジニル) エチルイソプロペニルベンゼン、
4- (1-ヘキサメチレンイミノ) エチルイソプロペニルベンゼン、
3- (1-ヘキサメチレンイミノ) エチルイソプロペニルベンゼン。

[0486] 式(6)で表される化合物としては、 R^{61} がビニル基であり、 x が0であり、 A^6 が置換アミノ基である化合物として、次の化合物をあげることができる。

[0487] 2-N, N-ジメチルアミノ-1, 3-ブタジエン、
2-N, N-ジエチルアミノ-1, 3-ブタジエン、
2-N, N-ジー n -プロピルアミノ-1, 3-ブタジエン、
2-N, N-ジー n -ブチルアミノ-1, 3-ブタジエン、
2-N, N-ジアリルアミノ-1, 3-ブタジエン、
2-N, N-ビス(トリメチルシリル)アミノ-1, 3-ブタジエン、
2-N, N-ビス(*tert*-ブチルジメチルシリル)アミノ-1, 3-ブタジエン、
2- (1-アジリジニル) -1, 3-ブタジエン、
2- (1-ピロリジニル) -1, 3-ブタジエン、
2- (1-ピペリジニル) -1, 3-ブタジエン、
2- (1-ヘキサメチレンイミノ) -1, 3-ブタジエン、
2- (1-ピロリル) -1, 3-ブタジエン、
2- (1-イミダゾリル) -1, 3-ブタジエン、
2- (1-ピラゾリル) -1, 3-ブタジエン。

[0488] 式(6)で表される化合物としては、 R^{61} がビニル基であり、 x が1であり、 R^{62} がアルキレン基であり、 A^6 が置換アミノ基である化合物として、次の化合物をあげることができる。

[0489] R⁶²がメチレン基である化合物：

2-N, N-ジメチルアミノメチル-1, 3-ブタジエン、
2-N, N-ジエチルアミノメチル-1, 3-ブタジエン、
2-N, N-ジー n-プロピルアミノメチル-1, 3-ブタジエン、
2-N, N-ジー n-ブチルアミノメチル-1, 3-ブタジエン、
2-N, N-ジアリルアミノメチル-1, 3-ブタジエン、
2-N, N-ビス（トリメチルシリル）アミノメチル-1, 3-ブタジエン、
、
2-N, N-ビス（tert-ブチルジメチルシリル）アミノメチル-1, 3-ブタジエン、
2-（1-アジリジニル）メチル-1, 3-ブタジエン、
2-（1-ピロリジニル）メチル-1, 3-ブタジエン、
2-（1-ピペリジニル）メチル-1, 3-ブタジエン、
2-（1-ヘキサメチレンイミノ）メチル-1, 3-ブタジエン、
1-（2-メチレン-3-ブテニル）ピロール、
1-（2-メチレン-3-ブテニル）イミダゾール、
1-（2-メチレン-3-ブテニル）ピラゾール。

[0490] R⁶²がエチレン基である化合物：

5-N, N-ジメチルアミノ-3-メチレン-1-ペンテン、
5-N, N-ジエチルアミノ-3-メチレン-1-ペンテン、
5-N, N-ジー n-プロピルアミノ-3-メチレン-1-ペンテン、
5-N, N-ジー n-ブチルアミノ-3-メチレン-1-ペンテン、
5-N, N-ジアリルアミノ-3-メチレン-1-ペンテン、
5-N, N-ビス（トリメチルシリル）アミノ-3-メチレン-1-ペンテン、
、
5-N, N-ビス（tert-ブチルジメチルシリル）アミノ-3-メチレン-1-ペンテン、
5-（1-アジリジニル）-3-メチレン-1-ペンテン、

5 - (1 - ピロリジニル) - 3 - メチレン - 1 - ペンテン、
5 - (1 - ピペリジニル) - 3 - メチレン - 1 - ペンテン、
5 - (1 - ヘキサメチレンイミノ) - 3 - メチレン - 1 - ペンテン、
1 - (3 - メチレン - 4 - ペンテニル) ピロール、
1 - (3 - メチレン - 4 - ペンテニル) イミダゾール、
1 - (3 - メチレン - 4 - ペンテニル) ピラゾール。

[0491] 式 (6) で表される化合物としては、 R^{61} が水素原子であり、 x が 1 であり、 R^{62} が式 (6-Y) で表される基であり、 A^6 が含窒素脂肪族複素環基である化合物として、次の化合物をあげることができる。

[0492] 式 (6-Y) の y が 0 である化合物：

4 - N - メチル - 2 - アジリジニルスチレン、
4 - N - メチル - 2 - ピロリジニルスチレン、
4 - N - メチル - 3 - ピロリジニルスチレン、
4 - N - メチル - 2 - ヘキサメチレンイミノスチレン、
4 - N - メチル - 3 - ヘキサメチレンイミノスチレン、
4 - N - メチル - 4 - ヘキサメチレンイミノスチレン。

[0493] 式 (6-Y) の y が 1 である化合物：

4 - N - メチル - 2 - アジリジニルメチルスチレン、
4 - N - メチル - 2 - ピロリジニルメチルスチレン、
4 - N - メチル - 3 - ピロリジニルメチルスチレン、
4 - N - メチル - 2 - ヘキサメチレンイミノメチルスチレン、
4 - N - メチル - 3 - ヘキサメチレンイミノメチルスチレン、
4 - N - メチル - 4 - ヘキサメチレンイミノメチルスチレン。

[0494] 式 (6-Y) の y が 2 である化合物：

4 - N - メチル - 2 - アジリジニルエチルスチレン、
4 - N - メチル - 2 - ピロリジニルエチルスチレン、
4 - N - メチル - 3 - ピロリジニルエチルスチレン、
4 - N - メチル - 2 - ヘキサメチレンイミノエチルスチレン、

4-N-メチル-3-ヘキサメチレンイミノエチルスチレン、

4-N-メチル-4-ヘキサメチレンイミノエチルスチレン。

[0495] 式(6)で表される化合物としては、 R^{61} がメチル基であり、 x が1であり、 R^{62} が式(6-Y)で表される基であり、 A^6 が含窒素脂肪族複素環基である化合物として、次の化合物をあげることができる。

[0496] 式(6-Y)の y が0である化合物：

4-N-メチル-2-アジリジニルイソプロペニルベンゼン、

4-N-メチル-2-ピロリジニルイソプロペニルベンゼン、

4-N-メチル-3-ピロリジニルイソプロペニルベンゼン、

4-N-メチル-2-ヘキサメチレンイミノイソプロペニルベンゼン、

4-N-メチル-3-ヘキサメチレンイミノイソプロペニルベンゼン、

4-N-メチル-4-ヘキサメチレンイミノイソプロペニルベンゼン。

[0497] 式(6-Y)の y が1である化合物：

4-N-メチル-2-アジリジニルメチルイソプロペニルベンゼン、

4-N-メチル-2-ピロリジニルメチルイソプロペニルベンゼン、

4-N-メチル-3-ピロリジニルメチルイソプロペニルベンゼン、

4-N-メチル-2-ヘキサメチレンイミノメチルイソプロペニルベンゼン

、

4-N-メチル-3-ヘキサメチレンイミノメチルイソプロペニルベンゼン

、

4-N-メチル-4-ヘキサメチレンイミノメチルイソプロペニルベンゼン

。

[0498] 式(6-Y)の y が2である化合物：

4-N-メチル-2-アジリジニルエチルイソプロペニルベンゼン、

4-N-メチル-2-ピロリジニルエチルイソプロペニルベンゼン、

4-N-メチル-3-ピロリジニルエチルイソプロペニルベンゼン、

4-N-メチル-2-ヘキサメチレンイミノエチルイソプロペニルベンゼン

、

4-N-メチル-3-ヘキサメチレンイミノエチルイソプロペニルベンゼン
、
4-N-メチル-4-ヘキサメチレンイミノエチルイソプロペニルベンゼン
。

[0499] 式(6)で表される化合物としては、 R^{61} がビニル基であり、 x が0であり、 A^6 が含窒素脂肪族複素環基である化合物として、次の化合物をあげることができる。

[0500] N-メチル-2-(1-メチレン-2-プロペニル)アジリジン、
N-メチル-2-(1-メチレン-2-プロペニル)ピロリジン、
N-メチル-3-(1-メチレン-2-プロペニル)ピロリジン、
N-メチル-2-(1-メチレン-2-プロペニル)ヘキサメチレンイミン
、
N-メチル-3-(1-メチレン-2-プロペニル)ヘキサメチレンイミン
、
N-メチル-4-(1-メチレン-2-プロペニル)ヘキサメチレンイミン
。

[0501] 式(6)で表される化合物としては、 R^{61} がビニル基であり、 x が1であり、 R^{62} がアルキレン基であり、 A^6 が含窒素脂肪族複素環基である化合物として、次の化合物をあげることができる。

[0502] R^{62} がメチレン基である化合物：

N-メチル-2-(2-メチレン-3-ブテニル)アジリジン、
N-メチル-2-(2-メチレン-3-ブテニル)ピロリジン、
N-メチル-3-(2-メチレン-3-ブテニル)ピロリジン、
N-メチル-2-(2-メチレン-3-ブテニル)ヘキサメチレンイミン、
N-メチル-3-(2-メチレン-3-ブテニル)ヘキサメチレンイミン、
N-メチル-4-(2-メチレン-3-ブテニル)ヘキサメチレンイミン。

[0503] R^{62} がエチレン基である化合物：

N-メチル-2-(3-メチレン-4-ペンテニル)アジリジン、

N-メチル-2-(3-メチレン-4-ペンテニル)ピロリジン、
N-メチル-3-(3-メチレン-4-ペンテニル)ピロリジン、
N-メチル-2-(3-メチレン-4-ペンテニル)ヘキサメチレンイミン、
N-メチル-3-(3-メチレン-4-ペンテニル)ヘキサメチレンイミン、
N-メチル-4-(3-メチレン-4-ペンテニル)ヘキサメチレンイミン。

[0504] 式(6)で表される化合物としては、 R^{61} が水素原子であり、 x が0であり、 A^6 が含窒素芳香族複素環基である化合物として、次の化合物をあげることができる。

[0505] N-メチル-2-ビニルイミダゾール、
N-メチル-4-ビニルイミダゾール、
N-メチル-5-ビニルイミダゾール、
2-ビニルピリジン、
3-ビニルピリジン、
4-ビニルピリジン、
2-ビニルキノリン、
3-ビニルキノリン、
4-ビニルキノリン。

[0506] 式(6)で表される化合物としては、 R^{61} がメチル基であり、 x が0であり、 A^6 が含窒素芳香族複素環基である化合物として、次の化合物をあげることができる。

[0507] N-メチル-2-イソプロペニルイミダゾール、
N-メチル-4-イソプロペニルイミダゾール、
N-メチル-5-イソプロペニルイミダゾール、
2-イソプロペニルピリジン、
3-イソプロペニルピリジン、

4-イソプロペニルピリジン、
2-イソプロペニルキノリン、
3-イソプロペニルキノリン、
4-イソプロペニルキノリン。

[0508] 式(6)で表される化合物としては、 R^{61} がビニル基であり、 x が0であり、 A^6 が含窒素芳香族複素環基である化合物として、次の化合物をあげることができる。

[0509] N-メチル-2-(1-メチレン-2-プロペニル)イミダゾール、
N-メチル-4-(1-メチレン-2-プロペニル)イミダゾール、
N-メチル-5-(1-メチレン-2-プロペニル)イミダゾール、
2-(1-メチレン-2-プロペニル)ピリジン、
3-(1-メチレン-2-プロペニル)ピリジン、
4-(1-メチレン-2-プロペニル)ピリジン、
2-(1-メチレン-2-プロペニル)キノリン、
3-(1-メチレン-2-プロペニル)キノリン、
4-(1-メチレン-2-プロペニル)キノリン。

[0510] 式(6)で表される化合物としては、 R^{61} がビニル基であり、 x が1であり、 R^{62} がアルキレン基であり、 A^6 が含窒素芳香族複素環基である化合物として、次の化合物をあげることができる。

[0511] R^{62} がメチレン基である化合物：

N-メチル-2-(2-メチレン-3-ブテニル)イミダゾール、
N-メチル-4-(2-メチレン-3-ブテニル)イミダゾール、
N-メチル-5-(2-メチレン-3-ブテニル)イミダゾール、
2-(2-メチレン-3-ブテニル)ピリジン、
3-(2-メチレン-3-ブテニル)ピリジン、
4-(2-メチレン-3-ブテニル)ピリジン、
2-(2-メチレン-3-ブテニル)キノリン、
3-(2-メチレン-3-ブテニル)キノリン、

4 - (2 - メチレン - 3 - ブテニル) キノリン。

[0512] R^{62} がエチレン基である化合物：

N - メチル - 2 - (3 - メチレン - 4 - ペンテニル) イミダゾール、
N - メチル - 4 - (3 - メチレン - 4 - ペンテニル) イミダゾール、
N - メチル - 5 - (3 - メチレン - 4 - ペンテニル) イミダゾール、
2 - (3 - メチレン - 4 - ペンテニル) ピリジン、
3 - (3 - メチレン - 4 - ペンテニル) ピリジン、
4 - (3 - メチレン - 4 - ペンテニル) ピリジン、
2 - (3 - メチレン - 4 - ペンテニル) キノリン、
3 - (3 - メチレン - 4 - ペンテニル) キノリン、
4 - (3 - メチレン - 4 - ペンテニル) キノリン。

[0513] 式 (6) で表される化合物としては、好ましくは、 R^{61} が水素原子であり、 x が 1 であり、 R^{62} が式 (6 - Y) で表される基であり、 A^6 が置換アミノ基である化合物である。より好ましくは、 R^{61} が水素原子であり、 x が 1 であり、 R^{62} が式 (6 - Y) で表される基であり、 A^6 が式 (6 - X) で表される基である化合物である。更に好ましくは、式 (6 - X) の R^{63} 及び R^{64} が炭素原子数 1 ~ 2 の直鎖アルキル基である化合物、式 (6 - X) の R^{63} 及び R^{64} がトリメチルシリル基である化合物、式 (6 - X) の R^{63} 及び R^{64} が結合した基であって、当該基が炭素原子数 4 ~ 6 のポリメチレン基である化合物である。

[0514] 式 (6) で表される化合物としては、特に好ましくは、

4 - N, N - ビス (トリメチルシリル) アミノスチレン、
3 - N, N - ビス (トリメチルシリル) アミノスチレン、
4 - N, N - ジメチルアミノメチルスチレン、
3 - N, N - ジメチルアミノメチルスチレン、
4 - (1 - ピロリジニル) エチルスチレン、
3 - (1 - ピロリジニル) エチルスチレン
である。

- [0515] 式（５）で表される化合物に基づく単量体単位の含有量は、共役ジエン系重合体（Ｂ）１００質量％あたり、低燃費性を高めるために、好ましくは０．０１質量％以上であり、より好ましくは０．０２質量％以上であり、更に好ましくは０．０５質量％以上である。経済性、耐摩耗性を高めるために、好ましくは２０質量％以下であり、より好ましくは２質量％以下であり、更に好ましくは１質量％以下、特に好ましくは０．５質量％以下である。
- [0516] なお、式（５）で表される化合物に基づく単量体単位において、 X^{51} 、 X^{52} 及び X^{53} で表される基は、加水分解などにより、水酸基となってもよい。
- [0517] 式（６）で表される化合物に基づく単量体単位の含有量は、共役ジエン系重合体（Ｂ）１００質量％あたり、低燃費性、耐摩耗性を高めるために、好ましくは０．０１質量％以上であり、より好ましくは０．０２質量％以上であり、更に好ましくは０．０５質量％以上である。経済性、耐摩耗性を高めるために、好ましくは２０質量％以下であり、より好ましくは２質量％以下であり、更に好ましくは１質量％以下、特に好ましくは０．５質量％以下である。
- [0518] 第二の本発明に係る共役ジエン系重合体（Ｂ）は、耐摩耗性を高めるために、ビニル芳香族炭化水素に基づく構成単位（ビニル芳香族炭化水素単位）を有していてもよい。該ビニル芳香族炭化水素としては、スチレン、 α -メチルスチレン、ビニルトルエン、ビニルナフタレン、ジビニルベンゼン、トリビニルベンゼン、ジビニルナフタレンをあげることができる。好ましくは、スチレンである。
- [0519] ビニル芳香族炭化水素単位の含有量としては、共役ジエン単位とビニル芳香族炭化水素単位との総量を１００質量％として、０質量％以上（共役ジエン単位の含有量は１００質量％以下）であり、好ましくは１０質量％以上（共役ジエン単位の含有量は９０質量％以下）であり、より好ましくは１５質量％以上（共役ジエン単位の含有量は８５質量％以下）である。また、低燃費性を高めるために、ビニル芳香族炭化水素単位の含有量は、好ましくは５０

質量%以下（共役ジエン単位の含有量は50質量%以上）であり、より好ましくは45質量%以下（共役ジエン単位の含有量は55質量%以上）である。

[0520] 共役ジエン系重合体（B）のムーニー粘度（ ML_{1+4} ）は、耐摩耗性を高めるために、好ましくは10以上であり、より好ましくは20以上である。また、加工性を高めるために、好ましくは200以下であり、より好ましくは150以下である。該ムーニー粘度（ ML_{1+4} ）は、JIS K 6300（1994）に従って、100℃にて測定される。

[0521] 共役ジエン系重合体（B）のビニル結合量は、共役ジエン単位の含有量を100モル%として、低燃費性を高めるために、好ましくは80モル%以下であり、より好ましくは70モル%以下である。また、ウェットグリップ性を高めるために、好ましくは10モル%以上であり、より好ましくは15モル%以上であり、更に好ましくは20モル%以上であり、特に好ましくは40モル%以上である。該ビニル結合量は、赤外分光分析法により、ビニル基の吸収ピークである 910 cm^{-1} 付近の吸収強度より求められる。

[0522] 共役ジエン系重合体（B）の分子量分布は、低燃費性を高めるために、好ましくは1～5であり、より好ましくは1～2である。分子量分布は、ゲル・パーミエーション・クロマトグラフ（GPC）法により、数平均分子量（ M_n ）及び重量平均分子量（ M_w ）を測定し、 M_w を M_n で除すことにより求められる。

[0523] 共役ジエン系重合体（B）の好適な製造方法としては、炭化水素溶媒中で、アルカリ金属触媒により、共役ジエン、上記式（5）で表される単量体及び上記式（6）で表される単量体を含む単量体成分を重合させる方法をあげることができる。

[0524] アルカリ金属触媒としては、アルカリ金属、有機アルカリ金属化合物、アルカリ金属と極性化合物との錯体、アルカリ金属を有するオリゴマーなどをあげることができる。該アルカリ金属としては、リチウム、ナトリウム、カリウム、ルビジウム、セシウムなどをあげることがでる。該有機アルカリ金属

化合物としては、エチルリチウム、*n*-プロピルリチウム、*i*so-プロピルリチウム、*n*-ブチルリチウム、*sec*-ブチルリチウム、*t*-オクチルリチウム、*n*-デシルリチウム、フェニルリチウム、2-ナフチルリチウム、2-ブチルフェニルリチウム、4-フェニルブチルリチウム、シクロヘキシルリチウム、4-シクロペンチルリチウム、ジメチルアミノプロピルリチウム、ジエチルアミノプロピルリチウム、*t*-ブチルジメチルシリロキシプロピルリチウム、*N*-モルホリノプロピルリチウム、リチウムヘキサメチレンイミド、リチウムピロリジド、リチウムピペリジド、リチウムヘプタメチレンイミド、リチウムドデカメチレンイミド、1,4-ジリチオ-2-ブテン、ナトリウムナフタレニド、ナトリウムビフェニリド、カリウムナフタレニドなどをあげることができる。また、アルカリ金属と極性化合物との錯体としては、カリウム-テトラヒドロフラン錯体、カリウム-ジエトキシエタン錯体などをあげることができ、アルカリ金属を有するオリゴマーとしては、 α -メチルスチレンテトラマーのナトリウム塩をあげることができる。好ましくは、有機リチウム化合物又は有機ナトリウム化合物であり、より好ましくは、炭素原子数が2~20の有機リチウム化合物又は炭素原子数が2~20の有機ナトリウム化合物である。

[0525] 炭化水素溶媒は、有機アルカリ金属化合物触媒を失活させない溶媒であり、脂肪族炭化水素、芳香族炭化水素、脂環族炭化水素などをあげることができる。

該脂肪族炭化水素としては、プロパン、*n*-ブタン、*i*so-ブタン、*n*-ペンタン、*i*so-ペンタン、*n*-ヘキサン、プロペン、1-ブテン、*i*so-ブテン、トランス-2-ブテン、シス-2-ブテン、1-ペンテン、2-ペンテン、1-ヘキセン、2-ヘキセンなどをあげることができる。また、芳香族炭化水素としては、ベンゼン、トルエン、キシレン、エチルベンゼンをあげることができ、脂環族炭化水素としては、シクロペンタン、シクロヘキサンなどがあげられる。これらは1種以上用いられ、また、炭化水素溶媒は、工業用ヘキサンのような各種成分の混合物でもかまわない。好ましく

は、炭素原子数が2～12の炭化水素である。

[0526] 炭化水素溶媒中で、アルカリ金属触媒により、共役ジエン、上記式(5)で表される化合物及び上記式(6)で表される化合物を含む単量体成分を重合させ、共役ジエンに基づく単量体単位、上記式(5)で表される化合物に基づく単量体単位及び上記式(6)で表される化合物に基づく単量体単位を有する重合体を製造する。該共役ジエンとしては、1,3-ブタジエン、イソプレン、1,3-ペンタジエン、2,3-ジメチル-1,3-ブタジエン、1,3-ヘキサジエンをあげることができる。これらは1種以上用いられる。好ましくは、1,3-ブタジエン、イソプレンである。

[0527] 式(5)で表される化合物の使用量は、重合で使用した単量体成分の総使用量を100質量%として、低燃費性を高めるために、好ましくは0.01質量%以上であり、より好ましくは0.02質量%以上であり、更に好ましくは0.05質量%以上である。経済性、耐摩耗性を高めるために、好ましくは20質量%以下であり、より好ましくは2質量%以下であり、更に好ましくは1質量%以下であり、特に好ましくは0.5質量%以下である。

[0528] 式(6)で表される化合物の使用量は、重合で使用した単量体成分の総使用量を100質量%として、低燃費性、耐摩耗性を高めるために、好ましくは0.01質量%以上であり、より好ましくは0.02質量%以上であり、更に好ましくは0.05質量%以上である。経済性、耐摩耗性を高めるために、好ましくは20質量%以下であり、より好ましくは2質量%以下であり、更に好ましくは1質量%以下であり、特に好ましくは0.5質量%以下である。

[0529] 共役ジエン、式(5)で表される化合物及び式(6)で表される化合物に、ビニル芳香族炭化水素を組み合わせる重合を行ってもよく、ビニル芳香族炭化水素としては、スチレン、 α -メチルスチレン、ビニルトルエン、ビニルナフタレン、ジビニルベンゼン、トリビニルベンゼン、ジビニルナフタレン等をあげることができる。好ましくは、スチレンである。

[0530] ビニル芳香族炭化水素を用いる場合の使用量は、共役ジエンとビニル芳香族

炭化水素との総使用量を100質量%として、強度を高めるために、好ましくは10質量%以上（共役ジエンの使用量は90質量%以下）であり、より好ましくは15質量%以上（共役ジエンの使用量は85質量%以下）である。また、低燃費性を高めるために、ビニル芳香族炭化水素の使用量は、好ましくは50質量%以下（共役ジエンの使用量は50質量%以上）であり、より好ましくは45質量%以下（共役ジエンの使用量は55質量%以上）である。

[0531] また、重合反応において、共役ジエンと式（5）で表される化合物と式（6）で表される化合物とビニル芳香族炭化水素との総使用量は、単量体の総使用量を100質量%として、強度を高めるために、好ましくは99.9質量%以上であり、より好ましくは99.95質量%以上であり、更に好ましくは100質量%である。

[0532] 重合反応は、共役ジエン単位のビニル結合量を調整する剤、共役ジエン系重合体鎖中での共役ジエン単位と共役ジエン以外の単量体に基づく単量体単位の分布を調整する剤（以下、総称して「調整剤」と記す。）の存在下で行ってもよい。このような剤としては、エーテル化合物、第三級アミン、ホスフィン化合物などをあげることができる。該エーテル化合物としては、テトラヒドロフラン、テトラヒドロピラン、1,4-ジオキサンなど環状のエーテル；ジエチルエーテル、ジブチルエーテルなどの脂肪族モノエーテル；エチレングリコールジメチルエーテル、エチレングリコールジエチルエーテル、エチレングリコールジブチルエーテル、ジエチレングリコールジエチルエーテル、ジエチレングリコールジブチルエーテルなどの脂肪族ジエーテル；ジフェニルエーテル、アニソールなどの芳香族エーテルなどがあげられる。該第三級アミンとして、トリエチルアミン、トリプロピルアミン、トリブチルアミン、N, N, N', N'-テトラメチルエチレンジアミン、N, N-ジエチルアニリン、ピリジン、キノリンなどをあげることができる。また、該ホスフィン化合物として、トリメチルホスフィン、トリエチルホスフィン、トリフェニルホスフィンなどをあげることができる。これらは1種類以上用

いられる。

[0533] 重合温度は、通常 25～100℃であり、好ましくは 35～90℃である。より好ましくは 50～80℃である。重合時間は、通常 10分～5時間である。

[0534] 上記共役ジエン系重合体（A）及び（B）の製造方法においては、必要に応じて、アルカリ金属触媒による単量体の重合開始から重合停止までに、共役ジエン系重合体の炭化水素溶液にカップリング剤を添加してもよい。カップリング剤としては、下記式（7）で表される化合物をあげることができる。

[0535] $R^{11}_a ML_{4-a}$ (7)

（式中、 R^{11} はアルキル基、アルケニル基、シクロアルケニル基又はアリール基を表し、Mはケイ素原子又はスズ原子を表し、Lはハロゲン原子又はヒドロカルビルオキシ基を表し、aは0～2の整数を表す。）

[0536] 上記式（7）で表されるカップリング剤としては、四塩化珪素、メチルトリクロロシラン、ジメチルジクロロシラン、トリメチルクロロシラン、四塩化スズ、メチルトリクロロスズ、ジメチルジクロロスズ、トリメチルクロロスズ、テトラメトキシシラン、メチルトリメトキシシラン、ジメトキシジメチルシラン、メチルトリエトキシシラン、エチルトリメトキシシラン、ジメトキシジエチルシラン、ジエトキシジメチルシラン、テトラエトキシシラン、エチルトリエトキシシラン、ジエトキシジエチルシランなどをあげることができる。

[0537] カップリング剤の添加量は、共役ジエン系重合体の加工性を高めるために、アルカリ金属触媒由来のアルカリ金属 1モル当たり、好ましくは 0.03モル以上であり、より好ましくは 0.05モル以上である。また、低燃費性を高めるために、好ましくは 0.4モル以下であり、より好ましくは 0.3モル以下である。

[0538] 上記共役ジエン系重合体は、公知の回収方法、例えば、（1）共役ジエン系重合体の炭化水素溶液に凝固剤を添加する方法、（2）共役ジエン系重合体の炭化水素溶液にスチームを添加する方法によって、共役ジエン系重合体の

炭化水素溶液から回収することができる。回収した共役ジエン系重合体は、バンドドライヤーや押出型ドライヤーなどの公知の乾燥機で乾燥してもよい。

[0539] 共役ジエン系重合体（A）及び（B）は、ゴム成分として使用することができ、他のゴム成分や、シリカなどの添加剤を配合して、本発明におけるゴム組成物を得ることができる。

[0540] ゴム成分100質量%中の上記共役ジエン系重合体（A）及び（B）の含有量は、5質量%以上、好ましくは20質量%以上、より好ましくは40質量%以上である。5質量%未満であると、低燃費性の改善効果が得られにくい傾向がある。また、上記共役ジエン系重合体（A）及び（B）の含有量は、好ましくは90質量%以下、より好ましくは80質量%以下である。90質量%を超えると、耐摩耗性が低下するとともに、高コストになる傾向がある。

[0541] 上記共役ジエン系重合体（A）及び（B）以外に使用できるゴム成分としては限定されないが、例えば、天然ゴム（NR）、イソプレングム（IR）、ブタジエンゴム（BR）、スチレンブタジエンゴム（SBR）、アクリロニトリルブタジエンゴム（NBR）、クロロプレングム（CR）、ブチルゴム（IIR）などが挙げられる。これらのゴム成分は単独で用いてもよく、2種以上を組み合わせてもよい。なかでも、低燃費性、ウェットグリップ性能及び耐摩耗性をバランス良く示すことから、NR、BRが好ましい。

これらのゴム成分としては特に限定されず、タイヤ工業において一般的なものを使用できる。

[0542] ゴム成分100質量%中のNRの含有量は、好ましくは5質量%以上、より好ましくは15質量%以上である。5質量%未満であると、十分な低燃費性が得られない傾向がある。また、NRの含有量は、好ましくは60質量%以下、より好ましくは40質量%以下である。60質量%を超えると、加工性が悪化する傾向がある。

[0543] ゴム成分100質量%中のBRの含有量は、好ましくは5質量%以上、より

好ましくは15質量%以上である。5質量%未満であると、十分な耐摩耗性が得られない傾向がある。また、BRの含有量は、好ましくは60質量%以下、より好ましくは40質量%以下である。60質量%を超えると、低燃費性が悪化する傾向がある。

[0544] 本発明におけるゴム組成物は、窒素吸着比表面積が $100\text{ m}^2/\text{g}$ 以下のシリカ(Ⅰ)と、窒素吸着比表面積が $180\text{ m}^2/\text{g}$ 以上のシリカ(Ⅱ)とを含有する。シリカ(Ⅰ)及び(Ⅱ)としては、例えば、乾式法により調製されたシリカ(無水ケイ酸)、湿式法により調製されたシリカ(含水ケイ酸)などが挙げられ、表面のシラノール基が多く、シランカップリング剤との反応点が多いという理由から、湿式法により調製されたシリカが好ましい。なお、シリカの窒素吸着比表面積(N_2SA)は、ASTM D3037-93に準じてBET法で測定される値である。

[0545] シリカ(Ⅰ)の N_2SA は、 $100\text{ m}^2/\text{g}$ 以下、好ましくは $80\text{ m}^2/\text{g}$ 以下、より好ましくは $60\text{ m}^2/\text{g}$ 以下である。 $100\text{ m}^2/\text{g}$ を超えると、シリカ(Ⅰ)及び(Ⅱ)の併用による効果が十分に得られないおそれがある。シリカ(Ⅰ)の N_2SA は、好ましくは $20\text{ m}^2/\text{g}$ 以上、より好ましくは $30\text{ m}^2/\text{g}$ 以上である。 $20\text{ m}^2/\text{g}$ 未満であると、十分な補強性が得られず、耐摩耗性が低下する傾向がある。

[0546] シリカ(Ⅰ)としては特に限定されないが、例えば、デグッサ社製のウルトラジル360、ローディア社製のZ40、ローディア社製のRP80などを使用できる。シリカ(Ⅰ)は、1種のみを使用してもよいし、2種以上を組み合わせて使用してもよい。

[0547] シリカ(Ⅰ)の含有量は、ゴム成分100質量部に対して、好ましくは1質量部以上、より好ましくは3質量部以上、更に好ましくは10質量部以上である。1質量部未満では、転がり抵抗が十分に低減しない傾向がある。シリカ(Ⅰ)の含有量は、好ましくは150質量部以下、より好ましくは120質量部以下、更に好ましくは100質量部以下、特に好ましくは50質量部以下である。150質量部を超えると、耐摩耗性が低下する傾向がある。

[0548] シリカ (I I) の N_2SA は、 $180\text{ m}^2/\text{g}$ 以上、好ましくは $190\text{ m}^2/\text{g}$ 以上、より好ましくは $200\text{ m}^2/\text{g}$ 以上である。 $180\text{ m}^2/\text{g}$ 未満であると、シリカ (I) 及び (I I) の併用による効果が十分に得られないおそれがある。また、シリカ (I I) の N_2SA は、好ましくは $300\text{ m}^2/\text{g}$ 以下、より好ましくは $240\text{ m}^2/\text{g}$ 以下である。 $300\text{ m}^2/\text{g}$ を超えると、低燃費性や加工性が悪化する傾向がある。

[0549] シリカ (I I) としては特に限定されないが、例えば、ローディア社製のゼオシル 1205MP などを使用できる。シリカ (I I) は、1 種のみを使用してもよいし、2 種以上を組み合わせ使用してもよい。

[0550] シリカ (I I) の含有量は、ゴム成分 100 質量部に対して、好ましくは 1 質量部以上、より好ましくは 3 質量部以上、更に好ましくは 5 質量部以上である。1 質量部未満では、十分な耐摩耗性が得られない傾向がある。また、シリカ (I I) の含有量は、好ましくは 150 質量部以下、より好ましくは 120 質量部以下、更に好ましくは 100 質量部以下、特に好ましくは 60 質量部以下である。150 質量部を超えると、加工性が悪化する傾向がある。

[0551] シリカ (I) 及び (I I) の合計含有量は、ゴム成分 100 質量部に対して、30 質量部以上、好ましくは 40 質量部以上である。30 質量部未満では、シリカ (I) 及び (I I) をブレンドすることによる十分な補強効果が得られない傾向がある。シリカ (I) 及び (I I) の合計含有量は、150 質量部以下、好ましくは 120 質量部以下、より好ましくは 100 質量部以下である。150 質量部を超えると、ゴム組成物中において、シリカが均一に分散することが困難となり、加工性、低燃費性、耐摩耗性が悪化する傾向がある。

[0552] シリカ (I) の含有量及び (I I) の含有量は、以下の式を満たす。

$$(\text{シリカ (I) の含有量}) \times 0.2 \leq (\text{シリカ (I I) の含有量}) \leq (\text{シリカ (I) の含有量}) \times 6.5$$

シリカ (I I) の含有量は、シリカ (I) の含有量の 0.2 倍以上、好まし

くは0.5倍以上である。0.2倍未満であると、操縦安定性が低下する傾向がある。また、シリカ(11)の含有量は、シリカ(1)の含有量の6.5倍以下、好ましくは4倍以下、より好ましくは等倍(1倍)以下である。6.5倍を超えると、上記式を満たす場合に得られる改善効果が見られない傾向がある。

なお、シリカ(1)及びシリカ(11)の含有量は、ゴム成分100質量部に対する質量部のことである。

[0553] 本発明におけるゴム組成物は、上述の薬品以外の添加剤を含んでいてもよい。添加剤としては、公知のものを用いることができ、硫黄などの加硫剤；チアゾール系加硫促進剤、チウラム系加硫促進剤、スルフェンアミド系加硫促進剤、グアニジン系加硫促進剤などの加硫促進剤；ステアリン酸、酸化亜鉛などの加硫活性化剤；ジクミルパーオキシド、ジターシャリブチルパーオキシドなどの有機過酸化物；カーボンブラックなどの補強剤；炭酸カルシウム、タルク、アルミナ、クレー、水酸化アルミニウム、マイカなどの充填剤；シランカップリング剤；伸展油；加工助剤；老化防止剤；滑剤を例示することができる。

[0554] 上記硫黄としては、粉末硫黄、沈降硫黄、コロイド硫黄、不溶性硫黄、高分散性硫黄があげられる。硫黄の含有量は、ゴム成分100質量部に対して、好ましくは0.1～15質量部であり、より好ましくは0.3～10質量部であり、更に好ましくは0.5～5質量部である。

[0555] 上記加硫促進剤としては、2-メルカプトベンゾチアゾール、ジベンゾチアジルジサルファイド、N-シクロヘキシル-2-ベンゾチアジルスルフェンアミドなどのチアゾール系加硫促進剤；テトラメチルチウラムモノスルフィド、テトラメチルチウラムジスルフィドなどのチウラム系加硫促進剤；N-シクロヘキシル-2-ベンゾチアゾールスルフェンアミド、N-tert-ブチル-2-ベンゾチアゾールスルフェンアミド、N-オキシエチレン-2-ベンゾチアゾールスルフェンアミド、N-オキシエチレン-2-ベンゾチアゾールスルフェンアミド、N, N'-ジイソプロピル-2-ベンゾチアゾールス

ルフェンアミドなどのスルフェンアミド系加硫促進剤；ジフェニルグアニジン、ジオルトトリルグアニジン、オルトトリルビグアニジンなどのグアニジン系加硫促進剤をあげることができる。加硫促進剤の含有量は、ゴム成分100質量部に対して、好ましくは0.1～5質量部であり、より好ましくは0.2～3質量部である。

[0556] 上記カーボンブラックとしては、ファーネスブラック、アセチレンブラック、サーマルブラック、チャンネルブラック、グラファイトなどをあげることができる。カーボンブラックとしては、EPC、MPC及びCCのようなチャンネルカーボンブラック；SAF、ISAF、HAF、MAF、FEF、SRF、GPF、APF、FF、CF、SCF及びECFのようなファーネスカーボンブラック；FT及びMTのようなサーマルカーボンブラック；アセチレンカーボンブラックが例示される。これらは1種以上用いることができる。

[0557] カーボンブラックの窒素吸着比表面積（ N_2SA ）は、好ましくは、5～200 m^2/g であり、また、カーボンブラックのジブチルフタレート（DBP）吸収量は、好ましくは、5～300 $ml/100g$ である。該窒素吸着比表面積は、ASTM D4820-93に従って測定され、該DBP吸収量は、ASTM D2414-93に従って測定される。市販品としては、三菱化学社製 商品名 ダイアブラックN339、東海カーボン社製 商品名 シースト6、シースト7HM、シーストKH、デグッサ社製 商品名 CK3、Special Black 4Aなどを用いることができる。

[0558] カーボンブラックの含有量は、ゴム成分100質量部に対して、好ましくは1～50質量部である。また、該含有量は、耐摩耗性及び強度を高めるために、より好ましくは3質量部以上であり、更に好ましくは4質量部以上である。また、低燃費性を高めるために、より好ましくは30質量部以下であり、更に好ましくは10質量部以下である。

[0559] 補強剤の含有量は、ゴム成分100質量部に対して、好ましくは10～150質量部である。また、該含有量は、耐摩耗性及び強度を高めるために、よ

り好ましくは20質量部以上であり、更に好ましくは30質量部以上である。
また、低燃費性を高めるために、より好ましくは120質量部以下であり、更に好ましくは100質量部以下である。

[0560] また、補強剤として用いるシリカの含有量とカーボンブラックの含有量との質量比（シリカの含有量：カーボンブラックの含有量）としては、2：1～50：1であることが好ましい。該質量比は、低燃費性を高めるため、及び、補強性を高めるために、5：1～20：1であることがより好ましい。

[0561] 上記シランカップリング剤としては、ビニルトリクロロシラン、ビニルトリエトキシシラン、ビニルトリス（ β -メトキシエトキシ）シラン、 β -(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、 γ -グリシドキシプロピルトリメトキシシラン、 γ -メタクリロキシプロピルトリメトキシシラン、N-(β -アミノエチル)- γ -アミノプロピルトリメトキシシラン、N-(β -アミノエチル)- γ -アミノプロピルメチルジメトキシシラン、N-フェニル- γ -アミノプロピルトリメトキシシラン、 γ -クロロプロピルトリメトキシシラン、 γ -メルカプトプロピルトリメトキシシラン、 γ -アミノプロピルトリエトキシシラン、ビス(3-(トリエトキシシリル)プロピル)ジスルフィド、ビス(3-(トリエトキシシリル)プロピル)テトラスルフィド、 γ -トリメトキシシリルプロピルジメチルチオカルバミルテトラスルフィド、 γ -トリメトキシシリルプロピルベンゾチアジルトテトラスルフィドなどをあげることができる。これらは1種以上用いられる。
市販品としては、デグッサ社製 商品名 Si 69、Si 75などを用いることができる。

[0562] 本発明の共役ジエン系重合体にシランカップリング剤を配合した共役ジエン系重合体組成物とする場合、シランカップリング剤の含有量は、シリカ100質量部に対して、好ましくは1～20質量部であり、より好ましくは2～15質量部であり、更に好ましくは5～10質量部である。

[0563] 上記伸展油としては、アロマチック系鉱物油（粘度比重恒数（V. G. C. 値）0.900～1.049）、ナフテン系鉱物油（V. G. C. 値0.8

50～0.899)、パラフィン系鉱物油(V. G. C. 値0.790～0.849)などをあげることができる。伸展油の多環芳香族含有量は、好ましくは3質量%未満であり、より好ましくは1質量%未満である。該多環芳香族含有量は、英国石油学会346/92法に従って測定される。また、伸展油の芳香族化合物含有量(CA)は、好ましくは20質量%以上である。これらの伸展油は、1種以上用いられる。

[0564] 本発明におけるゴム組成物を製造する方法としては、公知の方法、例えば、各成分をロールやバンバリーのような公知の混合機で混練する方法を用いることができる。

[0565] 混練条件としては、加硫剤及び加硫促進剤以外の添加剤を配合する場合、混練温度は、通常50～200℃であり、好ましくは80～190℃であり、混練時間は、通常30秒～30分であり、好ましくは1分～30分である。加硫剤、加硫促進剤を配合する場合、混練温度は、通常100℃以下であり、好ましくは室温～80℃である。また、加硫剤、加硫促進剤を配合した組成物は、通常、プレス加硫などの加硫処理を行って用いられる。加硫温度としては、通常120～200℃、好ましくは140～180℃である。

[0566] 本発明におけるゴム組成物は、低燃費性、ウェットグリップ性能及び耐摩耗性が高次元でバランス良く得られる。

[0567] 本発明におけるゴム組成物は、タイヤのトレッド（キャップトレッド）に使用される。

[0568] 本発明の空気入りタイヤは、上記ゴム組成物を用いて通常の方法によって製造される。すなわち、必要に応じて各種添加剤を配合したゴム組成物を、未加硫の段階でタイヤのトレッドの形状に合わせて押し出し加工し、タイヤ成型機上にて通常の方法にて成形し、他のタイヤ部材とともに貼り合わせ、未加硫タイヤを形成する。この未加硫タイヤを加硫機中で加熱加圧して、本発明の空気入りタイヤを製造できる。

[0569] 本発明の空気入りタイヤは、乗用車用タイヤとして好適に用いることができる。

実施例

[0570] 実施例に基づいて、本発明を具体的に説明するが、本発明はこれらのみに限定されるものではない。

[0571] <共重合体 1 の作成>

内容積 20 リットルの攪拌装置付きステンレス製重合反応器を、洗浄、乾燥し、乾燥窒素で置換した。次に、工業用ヘキサン（密度 680 kg/m^3 ）10.2 kg、1,3-ブタジエン 608 g、スチレン 192 g、4-N,N-ジメチルアミノメチルスチレン 2.06 g、テトラヒドロフラン 6.1 ml、エチレングリコールジエチルエーテル 4.0 ml を重合反応器内に投入した。次に、ビス（ジエチルアミノ）メチルビニルシラン 2.74 g、及び、*n*-ブチルリチウムの *n*-ヘキサン溶液（*n*-ブチルリチウムの含有量 15.90 mmol）を重合反応器内に投入し、重合反応を開始した。

攪拌速度を 130 rpm、重合反応器内温度を 65°C とし、1,3-ブタジエンとスチレンとを重合反応器内に連続的に供給しながら、1,3-ブタジエン、スチレン、4-N,N-ジメチルアミノメチルスチレン、及びビス（ジエチルアミノ）メチルビニルシランの共重合反応を 3 時間行った。1,3-ブタジエンの供給量は 912 g、スチレンの供給量は 288 g であった。重合反応器に投入・供給した単量体総量中、4-N,N-ジメチルアミノメチルスチレンの投入量は 0.10 質量%であり、ビス（ジエチルアミノ）メチルビニルシランの投入量は 0.14 質量%であった。

次に、得られた重合反応溶液を 130 rpm の攪拌速度で攪拌し、N-（3-ジメチルアミノプロピル）アクリルアミド 12.80 mmol を添加し、15 分間攪拌した。

重合体溶液にメタノール 0.8 ml を含むヘキサン溶液 20 ml を加え、重合体溶液を 5 分間攪拌した。次に、重合体溶液に 2-tert-ブチル-6-（3-tert-ブチル-2-ヒドロキシ-5-メチルベンジル）-4-メチルフェニルアクリレート（住友化学（株）製、商品名：スミライザー GM）8.0 g、ペンタエリスリチルテトラキス（3-ラウリルチオプロピオ

ネート) (住友化学(株)製、商品名: スミライザーTP-D) 4.0 gを加え、次に、重合体溶液を、常温、24時間で蒸発させ、更に55℃で12時間減圧乾燥し、共重合体1を得た。

[0572] <共重合体2の作成>

内容積20リットルの攪拌装置付きステンレス製重合反応器を、洗浄、乾燥し、乾燥窒素で置換した。次に、工業用ヘキサン(密度680 kg/m³) 10.2 kg、1,3-ブタジエン608 g、スチレン192 g、4-N, N-ジメチルアミノメチルスチレン2.04 g、テトラヒドロフラン6.1 ml、エチレングリコールジエチルエーテル4.1 mlを重合反応器内に投入した。次に、n-ブチルリチウム15.89 mmolをn-ヘキサン溶液として重合反応器内に投入し、重合反応を開始した。

攪拌速度を130 rpm、重合反応器内温度を65℃とし、1,3-ブタジエンとスチレンとを重合反応器内に連続的に供給しながら、1,3-ブタジエン、スチレン、及び、4-N, N-ジメチルアミノメチルスチレンの共重合反応を3時間行った。1,3-ブタジエンの供給量は912 g、スチレンの供給量は288 gであった。重合反応器に投入・供給した単量体総量中、4-N, N-ジメチルアミノメチルスチレンの投入量は0.10質量%であった。

重合体溶液にメタノール0.8 mlを含むヘキサン溶液20 mlを加え、重合体溶液を5分間攪拌した。次に、重合体溶液に2-tert-ブチル-6-(3-tert-ブチル-2-ヒドロキシ-5-メチルベンジル)-4-メチルフェニルアクリレート(住友化学(株)製、商品名: スミライザーGM) 8.0 g、ペンタエリスリチルテトラキス(3-ラウリルチオプロピオネート)(住友化学(株)製、商品名: スミライザーTP-D) 4.0 gを加え、次に、重合体溶液を、常温、24時間で蒸発させ、更に55℃で12時間減圧乾燥し、共重合体2を得た。

[0573] <共重合体3の作成>

内容積20リットルの攪拌装置付きステンレス製重合反応器を、洗浄、乾燥

し、乾燥窒素で置換した。次に、工業用ヘキサン（密度 680 kg/m^3 ） 10.2 kg 、 $1,3$ -ブタジエン 608 g 、スチレン 192 g 、テトラヒドロフラン 6.1 ml 、エチレングリコールジエチルエーテル 4.4 ml を重合反応器内に投入した。次に、ビス（ジエチルアミノ）メチルビニルシラン 2.63 g 、及び、 n -ブチルリチウムの n -ヘキサン溶液（ n -ブチルリチウムの含有量 14.68 mmol ）を重合反応器内に投入し、重合反応を開始した。

攪拌速度を 130 rpm 、重合反応器内温度を 65°C とし、 $1,3$ -ブタジエンとスチレンとを重合反応器内に連続的に供給しながら、 $1,3$ -ブタジエン、スチレン、及び、ビス（ジエチルアミノ）メチルビニルシランの共重合反応を3時間行った。 $1,3$ -ブタジエンの供給量は 912 g 、スチレンの供給量は 288 g であった。重合反応器に投入・供給した単量体総量中、ビス（ジエチルアミノ）メチルビニルシランの投入量は 0.13 質量%であった。

重合体溶液にメタノール 0.8 ml を含むヘキサン溶液 20 ml を加え、重合体溶液を5分間攪拌した。次に、重合体溶液に2-tert-ブチル-6-（3-tert-ブチル-2-ヒドロキシ-5-メチルベンジル）-4-メチルフェニルアクリレート（住友化学（株）製、商品名：スミライザーGM） 8.0 g 、ペンタエリスリチルテトラキス（3-ラウリルチオプロピオネート）（住友化学（株）製、商品名：スミライザーTP-D） 4.0 g を加え、次に、重合体溶液を、常温、24時間で蒸発させ、更に 55°C で12時間減圧乾燥し、共重合体3を得た。

[0574] <共重合体4の作成>

内容積20リットルのステンレス製重合反応器内を洗浄、乾燥し、乾燥窒素で置換し、工業用ヘキサン（密度 680 kg/m^3 ） 10.2 kg 、 $1,3$ -ブタジエン 547 g 、スチレン 173 g 、テトラヒドロフラン 6.07 ml 、エチレングリコールジエチルエーテル 4.12 ml を重合反応容器内に投入した。次に、 n -ブチルリチウム 13.31 mmol を n -ヘキサン溶液

として重合反応容器内に投入し、重合反応を開始した。

攪拌速度を130rpm、重合反応器内温度を65℃とし、1,3-ブタジエンとスチレンとを重合反応容器内に連続的に供給しながら、1,3-ブタジエンとスチレンの共重合反応を3時間行った。1,3-ブタジエンの供給量は821g、スチレンの供給量は259gであった。

次に、得られた重合反応溶液を130rpmの攪拌速度で攪拌し、N-(3-ジメチルアミノプロピル)アクリルアミド11.25mmolを添加し、15分間攪拌した。

重合反応溶液にメタノール1.12mlを含むヘキサン溶液20mlを加えて、更に重合反応溶液を5分間攪拌した。

重合反応溶液に2-tert-ブチル-6-(3-tert-ブチル-2-ヒドロキシ-5-メチルベンジル)-4-メチルフェニルアクリレート(住友化学(株)製、商品名:スミライザーGM)8.0g、ペンタエリスリチルテトラキス(3-ラウリルチオプロピオネート)(住友化学(株)製、商品名:スミライザーTP-D)4.0gを加え、次に、重合反応溶液を、常温、24時間で蒸発させ、更に55℃で12時間減圧乾燥し、共重合体4を得た。

[0575] <共重合体5の作成>

内容積20リットルの攪拌装置付きステンレス製重合反応器を、洗浄、乾燥し、乾燥窒素で置換した。次に、工業用ヘキサン(密度680kg/m³)10.2kg、1,3-ブタジエン608g、スチレン192g、4-N,N-ビス(トリメチルシリル)アミノスチレン3.37g、テトラヒドロフラン6.1ml、エチレングリコールジエチルエーテル4.0mlを重合反応器内に投入した。次に、ビス(ジエチルアミノ)メチルビニルシラン2.74g、及び、n-ブチルリチウムのn-ヘキサン溶液(n-ブチルリチウムの含有量15.55mmol)を重合反応器内に投入し、重合反応を開始した。

攪拌速度を130rpm、重合反応器内温度を65℃とし、1,3-ブタジ

エンとスチレンとを重合反応器内に連続的に供給しながら、1, 3-ブタジエン、スチレン、4-N, N-ビス（トリメチルシリル）アミノスチレン、及びビス（ジエチルアミノ）メチルビニルシランの共重合反応を3時間行った。1, 3-ブタジエンの供給量は912 g、スチレンの供給量は288 gであった。重合反応器に投入・供給した単量体総量中、4-N, N-ビス（トリメチルシリル）アミノスチレンの投入量は0.17質量%であり、ビス（ジエチルアミノ）メチルビニルシランの投入量は0.14質量%であった。

次に、得られた重合反応溶液を130 rpmの撹拌速度で撹拌し、N-（3-ジメチルアミノプロピル）アクリルアミド12.80 mmolを添加し、15分間撹拌した。

重合体溶液にメタノール0.8 mlを含むヘキサン溶液20 mlを加え、重合体溶液を5分間撹拌した。次に、重合体溶液に2-tert-ブチル-6-（3-tert-ブチル-2-ヒドロキシ-5-メチルベンジル）-4-メチルフェニルアクリレート（住友化学（株）製、商品名：スミライザーGM）8.0 g、ペンタエリスリチルテトラキス（3-ラウリルチオプロピオネート）（住友化学（株）製、商品名：スミライザーTP-D）4.0 gを加え、次に、重合体溶液を、常温、24時間で蒸発させ、更に55℃で12時間減圧乾燥し、共重合体5を得た。

[0576] <共重合体6の作成>

内容積5リットルの撹拌装置付きステンレス製重合反応器内を、洗浄、乾燥し、乾燥窒素で置換した。次に、工業用ヘキサン（密度680 kg/m³）2.55 kg、1, 3-ブタジエン137 g、スチレン43 g、4-N, N-ビス（トリメチルシリル）アミノスチレン0.70 g、テトラヒドロフラン1.52 ml、エチレングリコールジエチルエーテル1.18 mlを重合反応器内に投入した。次に、n-ブチルリチウム3.81 mmolをn-ヘキサン溶液として重合反応器内に投入し、重合反応を開始した。

撹拌速度を130 rpm、重合反応器内温度を65℃とし、1, 3-ブタジ

エンとスチレンとを重合反応器内に連続的に供給しながら、1, 3-ブタジエン、スチレン、及び、4-N, N-ビス(トリメチルシリル)アミノスチレンの共重合反応を2時間行った。1, 3-ブタジエンの供給量は205g、スチレンの供給量は65gであった。重合反応器に投入・供給した単量体総量中、4-N, N-ビス(トリメチルシリル)アミノスチレンの投入量は0.16質量%であった。

重合体溶液にメタノール0.5mlを含むヘキサン溶液10mlを加え、重合体溶液を5分間攪拌した。次に、重合体溶液に2-tert-ブチル-6-(3-tert-ブチル-2-ヒドロキシ-5-メチルベンジル)-4-メチルフェニルアクリレート(住友化学(株)製、商品名:スミライザーGM)1.8g、ペンタエリスリチルテトラキス(3-ラウリルチオプロピオネート)(住友化学(株)製、商品名:スミライザーTP-D)0.9gを加え、次に、重合体溶液を、常温、24時間で蒸発させ、更に55℃で12時間減圧乾燥し、共重合体6を得た。

[0577] <共重合体7の作成>

内容積20リットルの攪拌装置付きステンレス製重合反応器を、洗浄、乾燥し、乾燥窒素で置換した。次に、工業用ヘキサン(密度680kg/m³)10.2kg、1, 3-ブタジエン608g、スチレン192g、3-(1-ピロリジニル)エチルスチレンと4-(1-ピロリジニル)エチルスチレンの混合物2.58g、テトラヒドロフラン6.1ml、エチレングリコールジエチルエーテル4.1mlを重合反応器内に投入した。次に、ビス(ジエチルアミノ)メチルビニルシラン2.74g、及び、n-ブチルリチウムのn-ヘキサン溶液(n-ブチルリチウム含量15.04mmol)を重合反応器内に投入し、重合反応を開始した。

攪拌速度を130rpm、重合反応器内温度を65℃とし、1, 3-ブタジエンとスチレンとを重合反応器内に連続的に供給しながら、1, 3-ブタジエン、スチレン、3-(1-ピロリジニル)エチルスチレン、4-(1-ピロリジニル)エチルスチレン、及びビス(ジエチルアミノ)メチルビニルシ

ランの共重合反応を3時間行った。1, 3-ブタジエンの供給量は912 g、スチレンの供給量は288 gであった。重合反応器に投入・供給した単量体総量中、3-(1-ピロリジニル)エチルスチレンと4-(1-ピロリジニル)エチルスチレンの混合物の投入量は0.13質量%であり、ビス(ジエチルアミノ)メチルビニルシランの投入量は0.14質量%であった。

次に、得られた重合反応溶液を130 rpmの撹拌速度で撹拌し、[3-(ジエチルアミノ)プロピル]トリメトキシシラン12.8 mmolを重合体溶液に添加し、更に15分間撹拌した。次に、メタノール0.8 mlを含むヘキサン溶液20 mlを重合体溶液に加えて、更に重合体溶液を5分間撹拌した。

重合体溶液に2-tert-ブチル-6-(3-tert-ブチル-2-ヒドロキシ-5-メチルベンジル)-4-メチルフェニルアクリレート(住友化学(株)製、商品名:スミライザーGM)8.0 g、ペンタエリスリチルテトラキス(3-ラウリルチオプロピオネート)(住友化学(株)製、商品名:スミライザーTP-D)4.0 gを加え、次に、重合体溶液を、常温、24時間で蒸発させ、更に55℃で12時間減圧乾燥し、共重合体7を得た。

[0578] <共重合体8の作成>

内容積20リットルの撹拌装置付きステンレス製重合反応器を洗浄、乾燥し、乾燥窒素で置換した。次に、ヘキサン(密度680 kg/m³)10.2 kg、1, 3-ブタジエン547 g、スチレン173 g、テトラヒドロフラン6.1 ml、エチレングリコールジエチルエーテル4.7 mlを重合反応器内に投入した。次に、n-ブチルリチウム15.38 mmolをn-ヘキサン溶液として重合反応器内に投入し、重合反応を開始した。

撹拌速度を130 rpm、重合反応器内温度を65℃とし、1, 3-ブタジエンとスチレンとを重合反応器内に連続的に供給しながら、1, 3-ブタジエンとスチレンの共重合反応を3時間行った。1, 3-ブタジエンの供給量は821 g、スチレンの供給量は259 gであった。

次に、得られた重合体溶液を130rpmの攪拌速度で攪拌し、[3-(ジエチルアミノ)プロピル]トリメトキシシラン12.80mmolを添加し、15分間攪拌した。重合体溶液にメタノール0.8mlを含むヘキサン溶液20mlを重合体溶液に加えて、更に重合体溶液を5分間攪拌した。

重合体溶液に2-tert-ブチル-6-(3-tert-ブチル-2-ヒドロキシ-5-メチルベンジル)-4-メチルフェニルアクリレート(住友化学(株)製、商品名:スミライザーGM)8.0g、ペンタエリスリチルテトラキス(3-ラウリルチオプロピオネート)(住友化学(株)製、商品名:スミライザーTP-D)4.0gを加え、次に、重合体溶液を、常温、24時間で蒸発させ、更に55℃で12時間減圧乾燥し、共重合体8を得た。

[0579] <共重合体9の作成>

内容積20リットルの攪拌装置付きステンレス製重合反応器を、洗浄、乾燥し、乾燥窒素で置換した。次に、工業用ヘキサン(密度680kg/m³)10.2kg、1,3-ブタジエン608g、スチレン192g、テトラヒドロフラン6.1ml、エチレングリコールジエチルエーテル4.4mlを重合反応器内に投入した。次に、ビス(ジエチルアミノ)メチルビニルシラン2.63g、及び、n-ブチルリチウムのn-ヘキサン溶液(n-ブチルリチウム含量14.68mmol)を重合反応器内に投入し、重合反応を開始した。

攪拌速度を130rpm、重合反応器内温度を65℃とし、1,3-ブタジエンとスチレンとを重合反応器内に連続的に供給しながら、1,3-ブタジエン、スチレン、及び、ビス(ジエチルアミノ)メチルビニルシランの共重合反応を3時間行った。1,3-ブタジエンの供給量は912g、スチレンの供給量は288gであった。重合反応器に投入・供給した単量体総量中、ビス(ジエチルアミノ)メチルビニルシランの投入量は0.13質量%であった。

重合体溶液にメタノール0.8mlを含むヘキサン溶液20mlを加え、重

合体溶液を5分間攪拌した。次に、重合体溶液に2-tert-ブチル-6-(3-tert-ブチル-2-ヒドロキシ-5-メチルベンジル)-4-メチルフェニルアクリレート(住友化学(株)製、商品名:スミライザーGM) 8.0g、ペンタエリスリチルテトラキス(3-ラウリルチオプロピオネート)(住友化学(株)製、商品名:スミライザーTP-D) 4.0gを加え、次に、重合体溶液を、常温、24時間で蒸発させ、更に55℃で12時間減圧乾燥し、共重合体9を得た。

[0580] <共重合体10の作成>

内容積5リットルの攪拌装置付きステンレス製重合反応器内を、洗浄、乾燥し、乾燥窒素で置換した。次に、工業用ヘキサン(密度680kg/m³) 2.55kg、1,3-ブタジエン137g、スチレン43g、3-(1-ピロリジニル)エチルスチレンと4-(1-ピロリジニル)エチルスチレンの混合物0.53g、テトラヒドロフラン1.52ml、エチレングリコールジエチルエーテル1.18mlを重合反応器内に投入した。次に、n-ブチルリチウム3.73mmolをn-ヘキサン溶液として重合反応器内に投入し、重合反応を開始した。

攪拌速度を130rpm、重合反応器内温度を65℃とし、1,3-ブタジエンとスチレンとを重合反応器内に連続的に供給しながら、1,3-ブタジエン、スチレン、3-(1-ピロリジニル)エチルスチレン、及び、4-(1-ピロリジニル)エチルスチレンの共重合反応を2時間行った。1,3-ブタジエンの供給量は205g、スチレンの供給量は65gであった。重合反応器に投入・供給した単量体総量中、3-(1-ピロリジニル)エチルスチレンと4-(1-ピロリジニル)エチルスチレンの混合物の投入量は0.12質量%であった。

重合体溶液にメタノール0.8mlを含むヘキサン溶液20mlを加え、重合体溶液を5分間攪拌した。次に、重合体溶液に2-tert-ブチル-6-(3-tert-ブチル-2-ヒドロキシ-5-メチルベンジル)-4-メチルフェニルアクリレート(住友化学(株)製、商品名:スミライザーG

M) 8.0 g、ペンタエリスリチルテトラキス(3-ラウリルチオプロピオネート)(住友化学(株)製、商品名:スミライザーTP-D) 4.0 gを加え、次に、重合体溶液を、常温、24時間で蒸発させ、更に55℃で12時間減圧乾燥し、共重合体10を得た。

[0581] <共重合体11の作成>

内容積20リットルの攪拌装置付きステンレス製重合反応器を、洗浄、乾燥し、乾燥窒素で置換した。次に、工業用ヘキサン(密度680 kg/m³) 10.2 kg、1,3-ブタジエン608 g、スチレン192 g、4-ビニルピリジン1.41 g、テトラヒドロフラン6.1 ml、エチレングリコールジエチルエーテル4.0 mlを重合反応器内に投入した。次に、ビス(ジエチルアミノ)メチルビニルシラン2.88 g、及び、*n*-ブチルリチウムの*n*-ヘキサン溶液(*n*-ブチルリチウム含量17.84 mmol)を重合反応器内に投入し、重合反応を開始した。

攪拌速度を130 rpm、重合反応器内温度を65℃とし、1,3-ブタジエンとスチレンとを重合反応器内に連続的に供給しながら、1,3-ブタジエン、スチレン、4-ビニルピリジン、及びビス(ジエチルアミノ)メチルビニルシランの共重合反応を3時間行った。1,3-ブタジエンの供給量は912 g、スチレンの供給量は288 gであった。

重合反応器に投入・供給した単量体総量中、4-ビニルピリジンの投入量は0.07質量%であり、ビス(ジエチルアミノ)メチルビニルシランの投入量は0.14質量%であった。

次に、得られた重合反応溶液を130 rpmの攪拌速度で攪拌し、[3-(ジエチルアミノ)プロピル]トリメトキシシラン13.4 mmolを重合体溶液に添加し、更に15分間攪拌した。次に、メタノール0.8 mlを含むヘキサン溶液20 mlを重合体溶液に加えて、更に重合体溶液を5分間攪拌した。

重合体溶液に2-tert-ブチル-6-(3-tert-ブチル-2-ヒドロキシー5-メチルベンジル)-4-メチルフェニルアクリレート(住友

化学（株）製、商品名：スミライザーGM）8.0g、ペンタエリスリチルトetraキス（3-ラウリルチオプロピオネート）（住友化学（株）製、商品名：スミライザーTP-D）4.0gを加え、次に、重合体溶液を、常温、24時間で蒸発させ、更に55℃で12時間減圧乾燥し、共重合体11を得た。

[0582] <共重合体12の作成>

内容積20リットルの攪拌装置付きステンレス製重合反応器を、洗浄、乾燥し、乾燥窒素で置換した。次に、工業用ヘキサン（密度680kg/m³）10.2kg、1,3-ブタジエン608g、スチレン192g、4-ビニルピリジン1.41g、テトラヒドロフラン6.1ml、エチレングリコールジエチルエーテル4.0mlを重合反応器内に投入した。次に、n-ブチルリチウム18.52mmolをn-ヘキサン溶液として重合反応器内に投入し、重合反応を開始した。

攪拌速度を130rpm、重合反応器内温度を65℃とし、1,3-ブタジエンとスチレンとを重合反応器内に連続的に供給しながら、1,3-ブタジエン、スチレン、及び、4-ビニルピリジンの共重合反応を3時間行った。1,3-ブタジエンの供給量は912g、スチレンの供給量は288gであった。重合反応器に投入・供給した単量体総量中、4-ビニルピリジンの投入量は0.07質量%であった。

重合体溶液にメタノール0.8mlを含むヘキサン溶液20mlを加え、重合体溶液を5分間攪拌した。次に、重合体溶液に2-tert-ブチル-6-（3-tert-ブチル-2-ヒドロキシ-5-メチルベンジル）-4-メチルフェニルアクリレート（住友化学（株）製、商品名：スミライザーGM）8.0g、ペンタエリスリチルトetraキス（3-ラウリルチオプロピオネート）（住友化学（株）製、商品名：スミライザーTP-D）4.0gを加え、次に、重合体溶液を、常温、24時間で蒸発させ、更に55℃で12時間減圧乾燥し、共重合体12を得た。

[0583] <共重合体13の作成>

内容積 5 リットルの攪拌装置付きステンレス製重合反応器内を、洗浄、乾燥し、乾燥窒素で置換した。次に、工業用ヘキサン（密度 680 kg/m^3 ） 2.55 kg 、1, 3-ブタジエン 137 g 、スチレン 43 g 、3-（1-ピロリジニル）エチルスチレンと 4-（1-ピロリジニル）エチルスチレンの混合物 0.53 g 、テトラヒドロフラン 1.52 ml 、エチレングリコールジエチルエーテル 1.18 ml を重合反応器内に投入した。次に、ビス（ジエチルアミノ）メチルビニルシラン 0.64 g 、及び、*n*-ブチルリチウムの *n*-ヘキサン溶液（*n*-ブチルリチウムの含有量 3.98 mmol ）を重合反応器内に投入し、重合反応を開始した。

攪拌速度を 130 rpm 、重合反応器内温度を 65°C とし、1, 3-ブタジエンとスチレンとを重合反応器内に連続的に供給しながら、1, 3-ブタジエン、スチレン、ビス（ジエチルアミノ）メチルビニルシラン、3-（1-ピロリジニル）エチルスチレン、及び、4-（1-ピロリジニル）エチルスチレンの共重合反応を 2 時間行った。1, 3-ブタジエンの供給量は 205 g 、スチレンの供給量は 65 g であった。重合反応器に投入・供給した単量体総量中、3-（1-ピロリジニル）エチルスチレンと 4-（1-ピロリジニル）エチルスチレンの混合物の投入量は 0.12 質量%、ビス（ジエチルアミノ）メチルビニルシランの投入量は 0.14 質量% であった。

重合体溶液にメタノール 0.5 ml を含むヘキサン溶液 10 ml を加え、重合体溶液を 5 分間攪拌した。次に、重合体溶液に 2-tert-ブチル-6-（3-tert-ブチル-2-ヒドロキシ-5-メチルベンジル）-4-メチルフェニルアクリレート（住友化学（株）製、商品名：スミライザー G M） 1.8 g 、ペンタエリスリチルテトラキス（3-ラウリルチオプロピオネート）（住友化学（株）製、商品名：スミライザー TP-D） 0.9 g を加え、次に、重合体溶液を、常温、24 時間で蒸発させ、更に 55°C で 12 時間減圧乾燥し、共重合体 13 を得た。

[0584] <共重合体 14 の作成>

内容積 5 リットルの攪拌装置付きステンレス製重合反応器内を、洗浄、乾燥

し、乾燥窒素で置換した。次に、工業用ヘキサン（密度 680 kg/m^3 ） 2.55 kg 、1,3-ブタジエン 137 g 、スチレン 43 g 、3-（1-ピロリジニル）エチルスチレンと4-（1-ピロリジニル）エチルスチレンの混合物 1.81 g 、テトラヒドロフラン 1.52 ml 、エチレングリコールジエチルエーテル 1.18 ml を重合反応器内に投入した。次に、*n*-ブチルリチウム 3.81 mmol を *n*-ヘキサン溶液として重合反応器内に投入し、重合反応を開始した。

攪拌速度を 130 rpm 、重合反応器内温度を 65°C とし、1,3-ブタジエンとスチレンとを重合反応器内に連続的に供給しながら、1,3-ブタジエン、スチレン、3-（1-ピロリジニル）エチルスチレン、及び4-（1-ピロリジニル）エチルスチレンの共重合反応を2時間行った。1,3-ブタジエンの供給量は 205 g 、スチレンの供給量は 65 g であった。重合反応器に投入・供給した単量体総量中、3-（1-ピロリジニル）エチルスチレンと4-（1-ピロリジニル）エチルスチレンの混合物の投入量は 0.40 質量% であった。

重合体溶液にメタノール 0.5 ml を含むヘキサン溶液 10 ml を加え、重合体溶液を5分間攪拌した。次に、重合体溶液に2-tert-ブチル-6-（3-tert-ブチル-2-ヒドロキシ-5-メチルベンジル）-4-メチルフェニルアクリレート（住友化学（株）製、商品名：スミライザーGM） 1.8 g 、ペンタエリスリチルテトラキス（3-ラウリルチオプロピオネート）（住友化学（株）製、商品名：スミライザーTP-D） 0.9 g を加え、次に、重合体溶液を、常温、24時間で蒸発させ、更に 55°C で12時間減圧乾燥し、共重合体14を得た。

[0585] <共重合体15の作成>

内容積5リットルの攪拌装置付きステンレス製重合反応器内を、洗浄、乾燥し、乾燥窒素で置換した。次に、工業用ヘキサン（密度 680 kg/m^3 ） 2.55 kg 、1,3-ブタジエン 137 g 、スチレン 43 g 、3-（1-ピロリジニル）エチルスチレンと4-（1-ピロリジニル）エチルスチレンの

混合物 0.53 g、テトラヒドロフラン 1.52 ml、エチレングリコールジエチルエーテル 1.18 ml を重合反応器内に投入した。次に、*n*-ブチルリチウム 3.73 mmol を *n*-ヘキサン溶液として重合反応器内に投入し、重合反応を開始した。

攪拌速度を 130 rpm、重合反応器内温度を 65℃とし、1,3-ブタジエンとスチレンとを重合反応器内に連続的に供給しながら、1,3-ブタジエン、スチレン、3-(1-ピロリジニル)エチルスチレン及び4-(1-ピロリジニル)エチルスチレンの共重合反応を2時間行った。1,3-ブタジエンの供給量は205 g、スチレンの供給量は65 gであった。重合反応器に投入・供給した単量体総量中、3-(1-ピロリジニル)エチルスチレンと4-(1-ピロリジニル)エチルスチレンの混合物の投入量は0.12質量%であった。

重合体溶液にメタノール 0.5 ml を含むヘキサン溶液 10 ml を加え、重合体溶液を5分間攪拌した。次に、重合体溶液に2-tert-ブチル-6-(3-tert-ブチル-2-ヒドロキシ-5-メチルベンジル)-4-メチルフェニルアクリレート(住友化学(株)製、商品名:スミライザーGM) 1.8 g、ペンタエリスリチルテトラキス(3-ラウリルチオプロピオネート)(住友化学(株)製、商品名:スミライザーTP-D) 0.9 g を加え、次に、重合体溶液を、常温、24時間で蒸発させ、更に55℃で12時間減圧乾燥し、共重合体15を得た。

[0586] <共重合体16の作成>

内容積20リットルの攪拌装置付きステンレス製重合反応器内を、洗浄、乾燥し、乾燥窒素で置換した。次に、工業用ヘキサン(密度680 kg/m³) 10.2 kg、1,3-ブタジエン608 g、スチレン192 g、テトラヒドロフラン6.1 ml、エチレングリコールジエチルエーテル4.0 ml を重合反応器内に投入した。次に、ビス(ジエチルアミノ)メチルビニルシラン5.43 g、及び、*n*-ブチルリチウムの*n*-ヘキサン溶液(*n*-ブチルリチウムの含有量14.72 mmol)を重合反応器内に投入し、重合反応

を開始した。

攪拌速度を130rpm、重合反応器内温度を65℃とし、1,3-ブタジエンとスチレンとを重合反応器内に連続的に供給しながら、1,3-ブタジエン、スチレン、ビス(ジエチルアミノ)メチルビニルシランの共重合反応を3時間行った。1,3-ブタジエンの供給量は912g、スチレンの供給量は288gであった。重合反応器に投入・供給した単量体総量中、ビス(ジエチルアミノ)メチルビニルシランの投入量は0.27質量%であった。重合体溶液にメタノール0.8mlを含むヘキサン溶液20mlを加え、重合体溶液を5分間攪拌した。次に、重合体溶液に2-tert-ブチル-6-(3-tert-ブチル-2-ヒドロキシ-5-メチルベンジル)-4-メチルフェニルアクリレート(住友化学(株)製、商品名:スミライザーGM)8.0g、ペンタエリスリチルテトラキス(3-ラウリルチオプロピオネート)(住友化学(株)製、商品名:スミライザーTP-D)4.0gを加え、次に、重合体溶液を、常温、24時間で蒸発させ、更に55℃で12時間減圧乾燥し、共重合体16を得た。

[0587] <共重合体17の作成>

内容積5リットルの攪拌装置付きステンレス製重合反応器内を、洗浄、乾燥し、乾燥窒素で置換した。次に、工業用ヘキサン(密度680kg/m³)2.55kg、1,3-ブタジエン137g、スチレン43g、4-N,N-ジメチルアミノメチルスチレン0.43g、テトラヒドロフラン1.52ml、エチレングリコールジエチルエーテル1.18mlを重合反応器内に投入した。次に、ビス(ジエチルアミノ)メチルビニルシラン0.64g、及び、n-ブチルリチウムのn-ヘキサン溶液(n-ブチルリチウムの含有量3.59mmol)を重合反応器内に投入し、重合反応を開始した。

攪拌速度を130rpm、重合反応器内温度を65℃とし、1,3-ブタジエンとスチレンとを重合反応器内に連続的に供給しながら、1,3-ブタジエン、スチレン、ビス(ジエチルアミノ)メチルビニルシラン、及び、4-N,N-ジメチルアミノメチルスチレンの共重合反応を2時間行った。1,

3-ブタジエンの供給量は205 g、スチレンの供給量は65 gであった。重合反応器に投入・供給した単量体総量中、4-N, N-ジメチルアミノメチルスチレンの投入量は0.10質量%、ビス(ジエチルアミノ)メチルピニルシランの投入量は0.14質量%であった。

重合体溶液にメタノール0.5 mlを含むヘキサン溶液10 mlを加え、重合体溶液を5分間攪拌した。次に、重合体溶液に2-tert-ブチル-6-(3-tert-ブチル-2-ヒドロキシ-5-メチルベンジル)-4-メチルフェニルアクリレート(住友化学(株)製、商品名:スミライザーGM)1.8 g、ペンタエリスリチルトetraキス(3-ラウリルチオプロピオネート)(住友化学(株)製、商品名:スミライザーTP-D)0.9 gを加え、次に、重合体溶液を、常温、24時間で蒸発させ、更に55℃で12時間減圧乾燥し、共重合体17を得た。

[0588] <共重合体18の作成>

内容積20リットルの攪拌装置付きステンレス製重合反応器内を、洗浄、乾燥し、乾燥窒素で置換した。次に、工業用ヘキサン(密度680 kg/m³)10.2 kg、1,3-ブタジエン608 g、スチレン192 g、4-N, N-ジメチルアミノメチルスチレン2.04 g、テトラヒドロフラン6.1 ml、エチレングリコールジエチルエーテル4.0 mlを重合反応器内に投入した。次に、n-ブチルリチウム15.89 mmolをn-ヘキサン溶液として重合反応器内に投入し、重合反応を開始した。

攪拌速度を130 rpm、重合反応器内温度を65℃とし、1,3-ブタジエンとスチレンとを重合反応器内に連続的に供給しながら、1,3-ブタジエン、スチレン、及び、4-N, N-ジメチルアミノメチルスチレンの共重合反応を3時間行った。1,3-ブタジエンの供給量は912 g、スチレンの供給量は288 gであった。重合反応器に投入・供給した単量体総量中、4-N, N-ジメチルアミノメチルスチレンの投入量は0.10質量%であった。

重合体溶液にメタノール0.8 mlを含むヘキサン溶液20 mlを加え、重

合体溶液を5分間攪拌した。次に、重合体溶液に2-tert-ブチル-6-(3-tert-ブチル-2-ヒドロキシ-5-メチルベンジル)-4-メチルフェニルアクリレート(住友化学(株)製、商品名:スミライザーGM)8.0g、ペンタエリスリチルテトラキス(3-ラウリルチオプロピオネート)(住友化学(株)製、商品名:スミライザーTP-D)4.0gを加え、次に、重合体溶液を、常温、24時間で蒸発させ、更に55℃で12時間減圧乾燥し、共重合体18を得た。

[0589] <共重合体19の作成>

内容積5リットルの攪拌装置付きステンレス製重合反応器内を、洗浄、乾燥し、乾燥窒素で置換した。次に、工業用ヘキサン(密度680kg/m³)2.55kg、1,3-ブタジエン137g、スチレン43g、4-N,N-ビス(トリメチルシリル)アミノスチレン0.70g、テトラヒドロフラン1.52ml、エチレングリコールジエチルエーテル1.18mlを重合反応器内に投入した。次に、ビス(ジエチルアミノ)メチルビニルシラン0.64g、及び、n-ブチルリチウムのn-ヘキサン溶液(n-ブチルリチウムの含有量3.66mmol)を重合反応器内に投入し、重合反応を開始した。

攪拌速度を130rpm、重合反応器内温度を65℃とし、1,3-ブタジエンとスチレンとを重合反応器内に連続的に供給しながら、1,3-ブタジエン、スチレン、ビス(ジエチルアミノ)メチルビニルシラン、及び、4-N,N-ビス(トリメチルシリル)アミノスチレンの共重合反応を2時間行った。1,3-ブタジエンの供給量は205g、スチレンの供給量は65gであった。重合反応器に投入・供給した単量体総量中、4-N,N-ビス(トリメチルシリル)アミノスチレンの投入量は0.16質量%、ビス(ジエチルアミノ)メチルビニルシランの投入量は0.14質量%であった。

重合体溶液にメタノール0.5mlを含むヘキサン溶液10mlを加え、重合体溶液を5分間攪拌した。次に、重合体溶液に2-tert-ブチル-6-(3-tert-ブチル-2-ヒドロキシ-5-メチルベンジル)-4-

メチルフェニルアクリレート（住友化学（株）製、商品名：スミライザーGM）1.8 g、ペンタエリスリチルテトラキス（3-ラウリルチオプロピオネート）（住友化学（株）製、商品名：スミライザーTP-D）0.9 gを加え、次に、重合体溶液を、常温、24時間で蒸発させ、更に55℃で12時間減圧乾燥し、共重合体19を得た。

[0590] <共重合体20の作成>

内容積5リットルの攪拌装置付きステンレス製重合反応器内を、洗浄、乾燥し、乾燥窒素で置換した。次に、工業用ヘキサン（密度680 kg/m³）2.55 kg、1,3-ブタジエン137 g、スチレン43 g、テトラヒドロフラン1.52 ml、エチレングリコールジエチルエーテル1.18 ml、4-N,N-ビス（トリメチルシリル）アミノスチレン0.70 gを重合反応器内に投入した。次に、n-ブチルリチウム3.81 mmolをn-ヘキサン溶液として重合反応器内に投入し、重合反応を開始した。

攪拌速度を130 rpm、重合反応器内温度を65℃とし、1,3-ブタジエンとスチレンとを重合反応器内に連続的に供給しながら、1,3-ブタジエン、スチレン、及び、4-N,N-ビス（トリメチルシリル）アミノスチレンの共重合反応を2時間行った。1,3-ブタジエンの供給量は205 g、スチレンの供給量は65 gであった。重合反応器に投入・供給した単量体総量中、4-N,N-ビス（トリメチルシリル）アミノスチレンの投入量は0.16質量%であった。

重合体溶液にメタノール0.5 mlを含むヘキサン溶液10 mlを加え、重合体溶液を5分間攪拌した。次に、重合体溶液に2-tert-ブチル-6-（3-tert-ブチル-2-ヒドロキシ-5-メチルベンジル）-4-メチルフェニルアクリレート（住友化学（株）製、商品名：スミライザーGM）1.8 g、ペンタエリスリチルテトラキス（3-ラウリルチオプロピオネート）（住友化学（株）製、商品名：スミライザーTP-D）0.9 gを加え、次に、重合体溶液を、常温、24時間で蒸発させ、更に55℃で12時間減圧乾燥し、共重合体20を得た。

[0591] 得られた共重合体 1 ～ 20 について、以下の方法により分析した。結果を表 1 ～ 3 に示す。

[0592] <ムーニー粘度 (ML_{1+4})>

JIS K6300 (1994) に従って、100℃にて共重合体のムーニー粘度を測定した。

[0593] <ビニル量 (単位：モル%)>

赤外分光分析法により、ビニル基の吸収ピークである 910 cm^{-1} 付近の吸収強度より共重合体のビニル量を求めた。

[0594] <スチレン量 (単位：質量%)>

JIS K6383 (1995) に従って、屈折率から共重合体のスチレン量を求めた。

[0595] <分子量分布 (M_w/M_n)>

下記の条件 (1) ～ (8) でゲル・パーミエーション・クロマトグラフ (GPC) 法により、重量平均分子量 (M_w) と数平均分子量 (M_n) を測定し、共重合体の分子量分布 (M_w/M_n) を求めた。

(1) 装置：東ソー社製 HLC-8220

(2) 分離カラム：東ソー社製 HM-H (2 本直列)

(3) 測定温度：40℃

(4) キャリア：テトラヒドロフラン

(5) 流量：0.6 mL/分

(6) 注入量：5 μL

(7) 検出器：示差屈折

(8) 分子量標準：標準ポリスチレン

[0596] [表1]

	共重合体					
	1	2	3	4	5	6
ムーニー粘度	42	39	40	42	39	50
ビニル量(モル%)	57	59	58	58	58	59
スチレン量(質量%)	25	24	24	24	25	24
M_w/M_n	1.2	1.1	1.2	1.1	1.1	1.1

[0597] [表2]

	共重合体					
	7	8	9	10	11	12
ムーニー粘度	52	49	41	41	47	36
ビニル量(モル%)	57	58	57	59	57	57
スチレン量(質量%)	25	24	24	24	25	25
Mw/Mn	1.2	1.2	1.1	1.1	1.2	1.1

[0598] [表3]

	共重合体							
	13	14	15	16	17	18	19	20
ムーニー粘度	53	39	41	45	51	39	54	50
ビニル量(モル%)	59	58	59	57	59	56	59	59
スチレン量(質量%)	24	25	24	24	24	25	22	24
分子量分布	1.1	1.1	1.1	1.1	1.1	1.1	1.1	1.1

[0599] 以下に、実施例及び比較例で用いた各種薬品について説明する。

NR : RSS # 3

BR : 宇部興産(株)製のウベポールBR150B

共重合体1~20 : 上記方法で合成

カーボンブラック : 三菱化学(株)製のダイアブラックN220 ($N_2SA : 111 m^2/g$ 、DBP吸収量 : $115 ml/100g$)

シリカ1 : デグッサ社製のウルトラジル360 ($N_2SA : 50 m^2/g$)

シリカ2 : ローディア社製のゼオシル1205MP ($N_2SA : 200 m^2/g$)

シランカップリング剤 : デグッサ社製のSi69 (ビス(3-トリエトキシシリルプロピル)テトラスルフィド)

老化防止剤 : 住友化学(株)製のアンチゲン3C

ワックス : 大内新興化学工業(株)製のサンノックN

オイル : JX日鉱日石エネルギー(株)製のX-140

ステアリン酸 : 日油(株)製のビーズステアリン酸つばき

酸化亜鉛 : 三井金属鉱業(株)製の亜鉛華1号

硫黄 : 鶴見化学工業(株)製の粉末硫黄

加硫促進剤1 : 住友化学(株)製のソクシノールCZ

加硫促進剤 2 : 住友化学 (株) 製のソクシノール D

[0600] (実施例及び比較例)

表 4 ~ 6 に示す配合内容に従い、(株) 神戸製鋼所製の 1. 7 L バンバリーミキサーを用いて、硫黄及び加硫促進剤以外の材料を 150℃ の条件下で 5 分間混練りし、混練り物を得た。次に、得られた混練り物に硫黄及び加硫促進剤を添加し、オープンロールを用いて、80℃ の条件下で 5 分間練り込み、未加硫ゴム組成物を得た。得られた未加硫ゴム組成物を 170℃ で 20 分間、0. 5 mm 厚の金型でプレス加硫し、加硫ゴム組成物を得た。

また、得られた未加硫ゴム組成物をトレッドの形状に成形し、タイヤ成型機上で他のタイヤ部材とともに貼り合わせて未加硫タイヤを形成し、170℃ で 12 分間加硫し、試験用タイヤ (サイズ : 195 / 65 R 15) を製造した。

[0601] 得られた加硫ゴム組成物及び試験用タイヤについて、以下の評価を行った。

結果を表 4 ~ 6 に示す。なお、表 4 ~ 6 における基準比較例をそれぞれ比較例 1、14、36 とした。

[0602] <評価項目及び試験方法>

< $\tan \delta$ >

シート状の加硫ゴム組成物から幅 1 mm 又は 2 mm、長さ 40 mm の短冊状試験片を打ち抜き、試験に供した。(株) 上島製作所製スペクトロメーターを用いて、動的歪振幅 1 %、周波数 10 Hz、温度 70℃ で $\tan \delta$ を測定した。 $\tan \delta$ の逆数の値について比較例 1 を 100 として指数表示した。数値が大きいほど転がり抵抗が小さく、低燃費性であることを示している。

< 転がり抵抗 >

転がり抵抗試験機を用い、試験用タイヤを、リム (15 × 6 J J)、内圧 (230 kPa)、荷重 (3. 43 kN)、速度 (80 km/h) で走行させたときの転がり抵抗を測定し、基準比較例を 100 とした時の指数で表示した。数値が大きいほど転がり抵抗が小さく、低燃費性に優れることを示している。

[0603] ＜ウェットグリップ性能＞

各試験用タイヤを車両（国産FF2000cc）の全輪に装着して、湿潤アスファルト路面にて初速度100km/hからの制動距離を求めた。結果は指数で表し、数値が大きいほどウェットスキッド性能（ウェットグリップ性能）が良好である。指数は次の式で求めた。

（ウェットグリップ性能指数）＝（基準比較例の制動距離）／（各配合の制動距離）×100

[0604] ＜耐摩耗性＞

LAT試験機（Laboratory Abrasion and Skid Tester）を用い、荷重50N、速度20km/h、スリップアングル5°の条件にて、各加硫ゴム組成物の容積損失量を測定した。表4～6の数値（耐摩耗性指数）は、基準比較例の容積損失量を100としたときの相対値である。当該数値が大きいほど耐摩耗性に優れている。

[0605] （加工性）

混練押出し直後の未加硫ゴム組成物のシート形状を目視により以下の基準で評価した。シート形状が悪いほど、加工性が低いことを示す。

◎：シート形状非常に良好。

○：シート形状良好。

×：シート形状はボロボロ。

[0606]

[表4]

	実施例												比較例												
	1	2	3	4	5	6	7	8	9	10	11	12	1	2	3	4	5	6	7	8	9	10	11	12	13
配合（質量部）	NR	20	20	20	20	20	20	20	20	20	20	20	20	20	20	20	20	20	20	20	20	20	20	20	20
	BR	20	20	20	20	20	20	20	20	20	20	20	20	20	20	20	20	20	20	20	20	20	20	20	20
	共重合体1	60	60	60	60	60	60	-	-	-	-	-	-	60	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
	共重合体2	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	60	-	-	-	-	-	60	-	-	-	-
	共重合体3	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	60	-	-	-	-	-	60	-	-	-
	共重合体4	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	60	-	-	-	-	-	-	-
	共重合体5	-	-	-	-	-	-	60	60	60	60	60	60	-	-	-	-	60	-	-	-	-	60	-	-
	共重合体6	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	60	-	-	-	-	60	60	-	-	-	60	60
	カーボンブラック	5	5	5	5	5	5	5	5	5	5	5	5	5	5	5	5	5	5	5	5	5	5	5	5
	シリカ1	3	56	112	1	19	38	3	56	112	1	19	38	5	5	5	5	5	5	5	5	5	5	5	5
	シリカ2	1	19	38	3	56	112	1	19	38	3	56	112	70	70	70	70	70	70	70	70	70	70	70	70
	シランカップリング剤	0.32	6	12	0.32	6	12	0.32	6	12	0.32	6	12	6	6	6	6	6	6	6	6	6	6	0.24	12.8
	老化防止剤	2	2	2	2	2	2	2	2	2	2	2	2	2	2	2	2	2	2	2	2	2	2	2	2
	ワックス	2	2	2	2	2	2	2	2	2	2	2	2	2	2	2	2	2	2	2	2	2	2	2	2
	オイル	20	20	20	20	20	20	20	20	20	20	20	20	20	20	20	20	20	20	20	20	20	20	20	20
ステアリン酸	2	2	2	2	2	2	2	2	2	2	2	2	2	2	2	2	2	2	2	2	2	2	2	2	
酸化亜鉛	2	2	2	2	2	2	2	2	2	2	2	2	2	2	2	2	2	2	2	2	2	2	2	2	
硫黄	1.5	1.5	1.5	1.5	1.5	1.5	1.5	1.5	1.5	1.5	1.5	1.5	1.5	1.5	1.5	1.5	1.5	1.5	1.5	1.5	1.5	1.5	1.5	1.5	
加硫促進剤CZ	1.5	1.5	1.5	1.5	1.5	1.5	1.5	1.5	1.5	1.5	1.5	1.5	1.5	1.5	1.5	1.5	1.5	1.5	1.5	1.5	1.5	1.5	1.5	1.5	
加硫促進剤D	1	1	1	1	1	1	1	1	1	1	1	1	1	1	1	1	1	1	1	1	1	1	1	1	
tan δ 指数	135	150	134	130	145	129	170	185	168	165	180	163	100	115	65	100	70	150	115	110	80	114	84	163	121
転がり抵抗指数	135	151	135	130	146	130	168	186	167	163	181	162	100	115	65	100	70	150	115	110	79	115	86	161	120
ウェットグリップ性能指数	135	151	140	130	146	135	168	186	173	163	181	168	100	115	70	100	75	140	115	110	81	114	85	111	145
耐摩耗性指数	107	122	111	102	117	106	120	130	118	115	125	113	100	102	105	100	105	102	100	100	104	100	105	88	75
評価																									

配合（質量部）

評価

[0607] 表 4 に示すように、特定の単量体単位を有し、かつ末端が特定の化合物で変性された共役ジエン系重合体（共重合体 1、5）と、特定の配合比の低比表面積及び高比表面積のシリカ混合物とを併用することで、加工性を良好に保ちつつ、低燃費性、ウェットグリップ性能、耐摩耗性の性能バランスを顕著に改善できた。特に、比較例 1、2、7 と実施例 2 の評価結果から、前記併用により、性能バランスを相乗的に改善できることが明らかとなった。

[0608]

[表5]

	実施例												比較例												
	13	14	15	16	17	18	19	20	21	22	23	24	14	15	16	17	18	19	20	21	22	23	24	25	26
配合（質量部）	NR	20	20	20	20	20	20	20	20	20	20	20	20	20	20	20	20	20	20	20	20	20	20	20	20
	BR	20	20	20	20	20	20	20	20	20	20	20	20	20	20	20	20	20	20	20	20	20	20	20	20
	共重合体7	60	60	60	60	60	-	-	-	-	-	-	-	60	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
	共重合体8	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	60	-	-	-	-	-	60	-	-	-	-
	共重合体9	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	60	-	-	-	-	-	60	-	-	-
	共重合体10	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	60	-	-	-	-	60	-	-
	共重合体11	-	-	-	-	-	-	60	60	60	60	60	60	-	-	-	-	60	-	-	-	-	-	60	60
	共重合体12	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	60	-	-	-	-	-	60	60	-	-	-	-
	カーボンブラック	5	5	5	5	5	5	5	5	5	5	5	5	5	5	5	5	5	5	5	5	5	5	5	5
	シリカ1	3	56	112	1	19	38	3	56	112	1	19	38	5	5	5	5	5	5	56	19	56	56	2	120
	シリカ2	1	19	38	3	56	112	1	19	38	3	56	112	70	70	70	70	70	70	19	56	19	19	1	40
	シランカップリング剤	0.32	6	12	0.32	6	12	0.32	6	12	0.32	6	12	6	6	6	6	6	6	6	6	6	6	0.24	12.8
	老化防止剤	2	2	2	2	2	2	2	2	2	2	2	2	2	2	2	2	2	2	2	2	2	2	2	2
	ワックス	2	2	2	2	2	2	2	2	2	2	2	2	2	2	2	2	2	2	2	2	2	2	2	2
	オイル	20	20	20	20	20	20	20	20	20	20	20	20	20	20	20	20	20	20	20	20	20	20	20	20
ステアリン酸	2	2	2	2	2	2	2	2	2	2	2	2	2	2	2	2	2	2	2	2	2	2	2	2	
酸化亜鉛	2	2	2	2	2	2	2	2	2	2	2	2	2	2	2	2	2	2	2	2	2	2	2	2	
硫黄	1.5	1.5	1.5	1.5	1.5	1.5	1.5	1.5	1.5	1.5	1.5	1.5	1.5	1.5	1.5	1.5	1.5	1.5	1.5	1.5	1.5	1.5	1.5	1.5	
加硫促進剤OZ	1.5	1.5	1.5	1.5	1.5	1.5	1.5	1.5	1.5	1.5	1.5	1.5	1.5	1.5	1.5	1.5	1.5	1.5	1.5	1.5	1.5	1.5	1.5	1.5	
加硫促進剤D	1	1	1	1	1	1	1	1	1	1	1	1	1	1	1	1	1	1	1	1	1	1	1	1	
tan δ 指数	130	144	129	125	139	124	187	204	185	182	198	179	100	110	100	95	70	165	115	110	115	105	77	149	133
転がり抵抗指数	130	145	130	125	140	125	185	205	184	179	199	178	100	110	100	95	70	165	115	110	115	105	77	148	132
ウェットグリップ性能指数	130	145	134	125	140	130	185	205	190	179	199	185	100	110	100	90	70	155	115	110	115	99	77	139	161
耐摩耗性指数	107	122	111	102	117	106	120	130	118	115	125	113	100	102	100	90	80	102	100	100	100	90	80	89	75
評価																									

配合（質量部）

評価

[0609] 表 5 に示すように、特定の単量体単位を有し、かつ末端が特定の化合物で変性された共役ジエン系重合体（共重合体 7、11）と、特定の配合比の低比表面積及び高比表面積のシリカ混合物とを併用することで、加工性を良好に保ちつつ、低燃費性、ウェットグリップ性能、耐摩耗性の性能バランスを顕著に改善できた。特に、比較例 14、15、20 と実施例 14 の評価結果から、前記併用により、性能バランスを相乗的に改善できることが明らかとなった。

[0610]

[表6]

	実施例						比較例									
	25	26	27	28	29	30	27	28	29	30	31	32	33	34	35	36
NIR	20	20	20	20	20	20	20	20	20	20	20	20	20	20	20	20
BR	20	20	40	20	40	20	20	20	20	20	20	20	20	20	20	20
重合体13	60	60	40	—	—	—	—	—	—	60	60	—	—	—	—	—
重合体14	—	—	—	—	—	—	60	—	—	—	—	—	—	—	—	60
重合体15	—	—	—	—	—	—	—	60	—	—	—	—	—	—	—	—
重合体16	—	—	—	—	—	—	—	—	60	—	—	—	—	—	—	—
重合体17	—	—	—	60	40	—	—	—	—	—	—	—	—	60	—	—
重合体18	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	60	—	—	—	—
重合体19	—	—	—	—	—	60	—	—	—	—	—	—	—	—	60	—
重合体20	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	60	—	—	—
カーボンブラック	5	5	5	5	5	5	5	5	5	5	5	5	5	5	5	5
シリカ1	50	10	50	50	50	50	50	50	50	5	65	50	65	65	65	65
シリカ2	25	65	25	25	25	25	25	25	25	70	10	25	10	10	10	10
シランカップリング剤	6	6	6	6	6	6	6	6	6	6	6	6	6	6	6	6
老化防止剤	2	2	2	2	2	2	2	2	2	2	2	2	2	2	2	2
ワックス	2	2	2	2	2	2	2	2	2	2	2	2	2	2	2	2
オイル	20	20	20	20	20	20	20	20	20	20	20	20	20	20	20	20
ステアリン酸	2	2	2	2	2	2	2	2	2	2	2	2	2	2	2	2
酸化亜鉛	2	2	2	2	2	2	2	2	2	2	2	2	2	2	2	2
硫黄	1.5	1.5	1.5	1.5	1.5	1.5	1.5	1.5	1.5	1.5	1.5	1.5	1.5	1.5	1.5	1.5
加硫促進剤1	1.5	1.5	1.5	1.5	1.5	1.5	1.5	1.5	1.5	1.5	1.5	1.5	1.5	1.5	1.5	1.5
加硫促進剤2	1	1	1	1	1	1	1	1	1	1	1	1	1	1	1	1
tan δ 指数	171	158	132	174	155	170	94	89	141	154	173	94	94	177	172	100
転がり抵抗指数	169	157	127	173	154	168	96	93	140	152	171	94	95	174	168	100
ウエットグリップ性能指数	159	162	129	173	152	177	102	90	155	163	150	105	105	167	169	100
耐摩耗性指数	121	143	117	127	123	123	108	120	88	132	108	110	110	116	111	100
加工性	○	○	○	○	○	○	○	○	○	×	○	○	○	○	○	○

配合（質量部）

評価

[0611] 表6に示すように、本発明における特定の変性共役ジエン重合体（共重合体

13、17、19)と、特定の配合比の低比表面積及び高比表面積のシリカ混合物とを併用することで、加工性を良好に保ちつつ、低燃費性、ウェットグリップ性能、耐摩耗性の性能バランスを顕著に改善できた。特に、比較例27、31、36と実施例25の評価結果から、前記併用により、性能バランスを相乗的に改善できることが明らかとなった。

請求の範囲

[請求項1]

ゴム成分と、窒素吸着比表面積が $100 \text{ m}^2/\text{g}$ 以下のシリカ (I) と、窒素吸着比表面積が $180 \text{ m}^2/\text{g}$ 以上のシリカ (II) とを含有し、
 前記ゴム成分 100 質量%中、共役ジエンに基づく単量体単位、下記式 (1) で表される化合物に基づく単量体単位、及び、下記式 (2) で表される化合物に基づく単量体単位を有し、下記化合物 (G) 又はアルコキシシラン化合物によって共重合体の少なくとも一端が変性されている共役ジエン系重合体 (A) の含有量が 5 質量%以上であり、前記ゴム成分 100 質量部に対する前記シリカ (I) 及び (II) の合計含有量が 30～150 質量部であり、
 前記シリカ (I) 及び (II) の含有量が以下の式を満たすゴム組成物を用いて作製したトレッドを有する空気入りタイヤ。

$$(\text{シリカ (I) の含有量}) \times 0.2 \leq (\text{シリカ (II) の含有量}) \leq (\text{シリカ (I) の含有量}) \times 6.5$$

[化1]



(式中、 V^1 は重合性炭素-炭素二重結合を有するヒドロカルビル基を表し、 S^1 は置換シリル基を表す。)

[化2]



(式中、 V^2 は重合性炭素-炭素二重結合を有するヒドロカルビル基を表し、 A^2 は置換アミノ基、又は、含窒素複素環基を表す。)

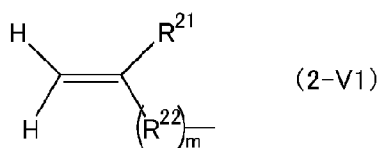
化合物 (G) : 置換基を有していてもよいアミノ基及びカルボニル基を有する化合物、並びに置換基を有していてもよいアミノ基及びチオカルボニル基を有する化合物からなる化合物群から選ばれる少なくとも 1 種の化合物。

[請求項2]

前記式 (2) 中の V^2 で表される基が、下記式 (2-V1) で表され

る基である請求項 1 記載の空気入りタイヤ。

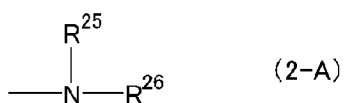
[化3]



(式中、 R^{21} は水素原子又はヒドロカルビル基を表し、 m は0又は1であり、 R^{22} はヒドロカルビレン基を表す。)

[請求項3] 前記式(2)中の A^2 の置換アミノ基が下記式(2-A)で表される基である請求項1又は2記載の空気入りタイヤ。

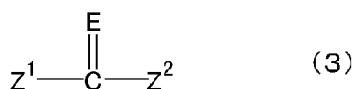
[化4]



(式中、 R^{25} 及び R^{26} は、それぞれ、ヒドロカルビル基、又は、トリヒドロカルビルシリル基、あるいは、 R^{25} と R^{26} とが結合して、窒素原子及び／又は酸素原子をヘテロ原子として有していてもよいヒドロカルビレン基、又は、 R^{25} と R^{26} は1つの基であって、窒素原子に二重結合で結合する基を表す。)

[請求項4] 前記化合物(G)が下記式(3)で表される化合物であり、前記アルコキシシラン化合物が下記式(4)で表される化合物である請求項1～3のいずれかに記載の空気入りタイヤ。

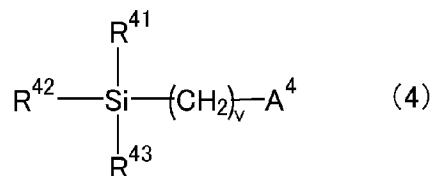
[化5]



(式中、 E は、酸素原子又は硫黄原子を表し、 Z^1 及び Z^2 は、置換アミノ基、水素原子、置換基を有していてもよいヒドロカルビル基、又は、置換基を有していてもよいヒドロカルビルオキシ基を表し、 Z^1 及び Z^2 の少なくとも1つが置換アミノ基を有する基であるか、あるいは、 Z^1 と Z^2 とが結合して、置換アミノ基を有する環構造を Z^1

と Z^2 とカルボニル炭素とで形成する基を表す。)

[化6]

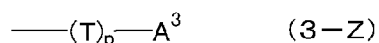


(式中、 v は 1 ～ 10 の整数を表し、 R^{41} 、 R^{42} 及び R^{43} は、それぞれ独立にアルキル基又はアルコキシ基を表し、 R^{41} 、 R^{42} 及び R^{43} の少なくとも 1 つがアルコキシ基であり、 A^4 は置換アミノ基を表す。)

[請求項5]

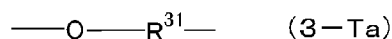
前記式 (3) において、 E が酸素原子であり、 Z^1 が下記式 (3-Z) で表される基であり、 Z^2 がヒドロカルビル基又は下記式 (3-Z) で表される基である請求項 4 記載の空気入りタイヤ。

[化7]



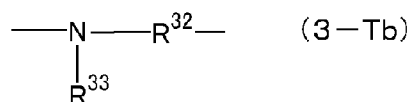
(式中、 p は 0 又は 1 であり、 T は炭素原子数 1 ～ 10 のヒドロカルビレン基、下記式 (3-Ta) で表される基、又は、下記式 (3-Tb) で表される基を表し、 A^3 は置換アミノ基を表し、式 (3) の Z^2 がヒドロカルビル基である場合、 Z^1 の A^3 と Z^2 のヒドロカルビル基とは結合していてもよく、式 (3) の Z^2 が式 (3-Z) で表される基である場合、 Z^1 の A^3 と Z^2 の A^3 とは結合していてもよい。)

[化8]



(式中、 R^{31} は炭素原子数 1 ～ 10 のヒドロカルビレン基を表し、 R^{31} が A^3 と結合する。)

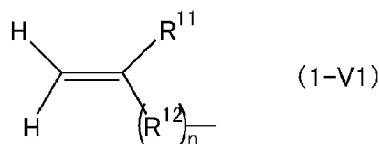
[化9]



(式中、 R^{32} は炭素原子数1～10のヒドロカルビレン基を表し、 R^{33} は水素原子又は炭素原子数1～10のヒドロカルビル基を表し、 R^{32} が A^3 と結合する。)

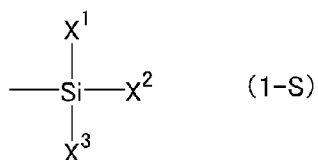
[請求項6] 前記式(1)中の V^1 で表される基が下記式(1-V1)で表される基であり、式(1)中の S^1 で表される基が下記式(1-S)で表される基である請求項1～5のいずれかに記載の空気入りタイヤ。

[化10]



(式中、 R^{11} は水素原子又はヒドロカルビル基を表し、 n は0又は1であり、 R^{12} はヒドロカルビレン基を表す。)

[化11]



(式中、 X^1 、 X^2 及び X^3 は、それぞれ独立に、置換アミノ基、又は、置換基を有していてもよいヒドロカルビル基を表し、 X^1 、 X^2 及び X^3 の少なくとも1つが置換アミノ基である。)

[請求項7] 前記式(1-V1)の R^{11} が水素原子であり、 n が0である請求項6記載の空気入りタイヤ。

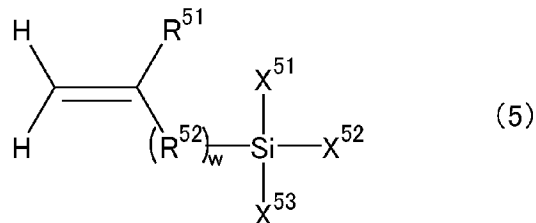
[請求項8] 前記共役ジエン系重合体(A)のビニル結合量が、共役ジエンに基づく構成単位の含有量を100モル%として、20モル%以上70モル%以下である請求項1～7のいずれかに記載の空気入りタイヤ。

[請求項9] ゴム成分と、窒素吸着比表面積が100 m^2/g 以下のシリカ(I)と、窒素吸着比表面積が180 m^2/g 以上のシリカ(II)とを含有し、
前記ゴム成分100質量%中、共役ジエンに基づく単量体単位、下記

式（５）で表される化合物に基づく単量体単位、及び、下記式（６）で表される化合物に基づく単量体単位を有する共役ジエン系重合体（Ｂ）の含有量が５質量％以上であり、
前記ゴム成分１００質量部に対する前記シリカ（１）及び（１１）の合計含有量が３０～１５０質量部であり、
前記シリカ（１）及び（１１）の含有量が以下の式を満たすゴム組成物を用いて作製したトレッドを有する空気入りタイヤ。

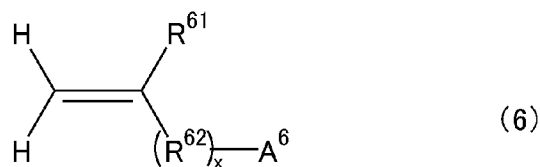
$$(\text{シリカ (1) の含有量}) \times 0.2 \leq (\text{シリカ (11) の含有量}) \leq (\text{シリカ (1) の含有量}) \times 6.5$$

[化12]



（式中、 R^{51} は水素原子又はヒドロカルビル基を表し、 w は０又は１であり、 R^{52} はヒドロカルビレン基を表し、 X^{51} 、 X^{52} 及び X^{53} は、それぞれ独立に、置換アミノ基、又は、置換基を有していてもよいヒドロカルビル基を表し、 X^{51} 、 X^{52} 及び X^{53} の少なくとも１つが置換アミノ基である。）

[化13]

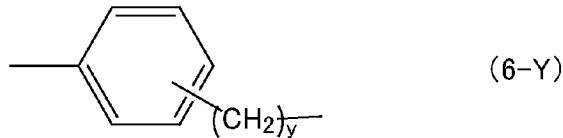


（式中、 R^{61} は水素原子又はヒドロカルビル基を表し、 x は０又は１であり、 R^{62} はヒドロカルビレン基を表し、 A^6 は置換アミノ基、又は、含窒素複素環基を表す。）

[請求項10] 前記式（５）の R^{51} が水素原子であり、 w が０である請求項９に記載の空気入りタイヤ。

- [請求項11] 前記式(6)の R^{61} が水素原子であり、 x が1であり、 R^{62} が下記式(6-Y)で表される基であり、 A^6 が置換アミノ基である請求項9又は10に記載の空気入りタイヤ。

[化14]



(式中、 y は0～5の整数を表し、 y が1～5の整数である場合、 $(CH_2)_y$ はベンゼン環上の置換基であり、 $(CH_2)_y$ が A^6 と結合し、 y が0である場合、 $(CH_2)_y$ はベンゼン環と A^6 との結合を表す。)

- [請求項12] 前記共役ジエン系重合体(B)のビニル結合量が、共役ジエンに基づく構成単位の含有量を100モル%として、20モル%以上70モル%以下である請求項9～11のいずれかに記載の空気入りタイヤ。

補正された請求の範囲

[2014年6月10日(10.06.2014)国際事務局受理]

[請求項1] (補正後) ゴム成分と、窒素吸着比表面積が $100 \text{ m}^2/\text{g}$ 以下のシリカ (I) と、窒素吸着比表面積が $180 \text{ m}^2/\text{g}$ 以上のシリカ (II) とを含有し、

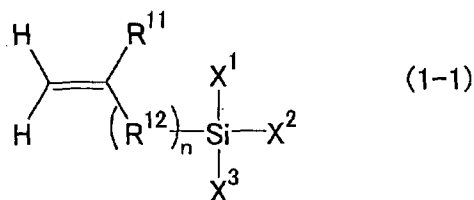
前記ゴム成分 100 質量%中、共役ジエンに基づく単量体単位、下記式 (1-1) で表される化合物に基づく単量体単位、及び、下記式 (2-1) で表される化合物に基づく単量体単位を有し、下記式 (3) で表される化合物 (G) 又は下記式 (4) で表されるアルコキシシラン化合物によって共重合体の少なくとも一端が変性されている共役ジエン系重合体 (A) の含有量が 5 質量%以上であり、

前記ゴム成分 100 質量部に対する前記シリカ (I) 及び (II) の合計含有量が 30 ~ 150 質量部であり、

前記シリカ (I) 及び (II) の含有量が以下の式を満たすゴム組成物を用いて作製したトレッドを有する空気入りタイヤ。

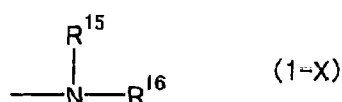
$$(\text{シリカ (I) の含有量}) \times 0.2 \leq (\text{シリカ (II) の含有量}) \leq (\text{シリカ (I) の含有量}) \times 6.5$$

[化1]



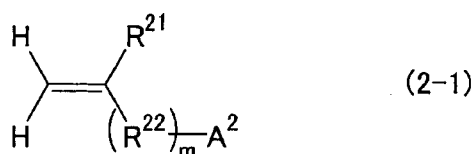
(式中、 R^{11} は水素原子又はヒドロカルビル基を表し、 n は 0 又は 1 であり、 R^{12} はヒドロカルビレン基を表し、 X^1 、 X^2 及び X^3 は、それぞれ独立に、下記式 (1-X) で表される基、又は、置換基を有していてもよいヒドロカルビル基を表し、 X^1 、 X^2 及び X^3 の少なくとも 1 つが下記式 (1-X) で表される基である。)

[化2]



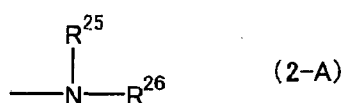
(式中、 R^{15} 及び R^{16} は、それぞれ、ヒドロカルビル基、又は、トリヒドロカルビルシリル基、あるいは、 R^{15} と R^{16} とが結合して、窒素原子及び／又は酸素原子をヘテロ原子として有していてもよいヒドロカルビレン基、又は、 R^{15} と R^{16} は1つの基であって、窒素原子に二重結合で結合する基を表す。)

[化3]



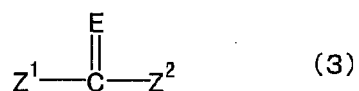
(式中、 R^{21} は水素原子又はヒドロカルビル基を表し、 m は0又は1であり、 R^{22} はヒドロカルビレン基を表し、 A^2 は下記式(2-A)で表される基、又は、含窒素複素環基を表す。)

[化4]



(式中、 R^{25} 及び R^{26} は、それぞれ、ヒドロカルビル基、又は、トリヒドロカルビルシリル基、あるいは、 R^{25} と R^{26} とが結合して、窒素原子及び／又は酸素原子をヘテロ原子として有していてもよいヒドロカルビレン基、又は、 R^{25} と R^{26} は1つの基であって、窒素原子に二重結合で結合する基を表す。)

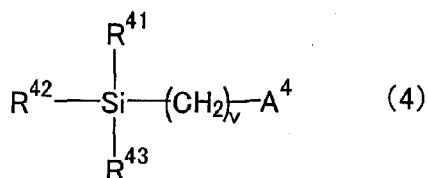
[化5]



(式中、 E は、酸素原子又は硫黄原子を表し、 Z^1 及び Z^2 は、置換アミノ基、水素原子、置換基を有していてもよいヒドロカルビル基、又は、置換基を有していてもよいヒドロカルビルオキシ基を表し、 Z^1 及び Z^2 の少なくとも1つが置換アミノ基を有する基であるか、あるいは、 Z^1 と Z^2 とが結合して、置換アミノ基を有する環構造を Z^1

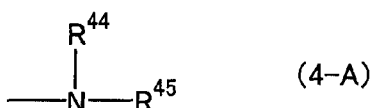
と Z^2 とカルボニル炭素とで形成する基を表す。)

[化6]



(式中、 v は 1 ～ 10 の整数を表し、 R^{41} 、 R^{42} 及び R^{43} は、それぞれ独立にアルキル基又はアルコキシ基を表し、 R^{41} 、 R^{42} 及び R^{43} の少なくとも 1 つがアルコキシ基であり、 A^4 は下記式 (4-A) で表される基を表す。)

[化7]



(式中、 R^{44} 及び R^{45} は、それぞれ、水素原子、窒素原子及び／又は酸素原子を有していてもよいヒドロカルビル基、あるいは、 R^{44} と R^{45} とが結合して、窒素原子及び／又は酸素原子をヘテロ原子として有していてもよいヒドロカルビレン基、又は、 R^{44} と R^{45} は 1 つの基であって、窒素原子に二重結合で結合する基を表す。)

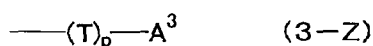
[請求項2] (削除)

[請求項3] (削除)

[請求項4] (削除)

[請求項5] (補正後) 前記式 (3) において、 E が酸素原子であり、 Z^1 が下記式 (3-Z) で表される基であり、 Z^2 がヒドロカルビル基又は下記式 (3-Z) で表される基である請求項 1 記載の空気入りタイヤ。

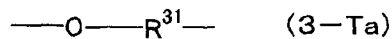
[化8]



(式中、 p は 0 又は 1 であり、 T は炭素原子数 1 ～ 10 のヒドロカルビレン基、下記式 (3-Ta) で表される基、又は、下記式 (3-T

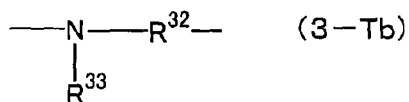
b) で表される基を表し、 A^3 は置換アミノ基を表し、式(3)の Z^2 がヒドロカルビル基である場合、 Z^1 の A^3 と Z^2 のヒドロカルビル基とは結合していてもよく、式(3)の Z^2 が式(3-Z)で表される基である場合、 Z^1 の A^3 と Z^2 の A^3 とは結合していてもよい。)

[化9]



(式中、 R^{31} は炭素原子数1～10のヒドロカルビレン基を表し、 R^{31} が A^3 と結合する。)

[化10]



(式中、 R^{32} は炭素原子数1～10のヒドロカルビレン基を表し、 R^{33} は水素原子又は炭素原子数1～10のヒドロカルビル基を表し、 R^{32} が A^3 と結合する。)

[請求項6]

(削除)

[請求項7]

(補正後) 前記式(1-1)の R^{11} が水素原子であり、 n が0である請求項1又は5記載の空気入りタイヤ。

[請求項8]

(補正後) 前記共役ジエン系重合体(A)のビニル結合量が、共役ジエンに基づく構成単位の含有量を100モル%として、20モル%以上70モル%以下である請求項1、5及び7のいずれかに記載の空気入りタイヤ。

[請求項9]

(補正後) ゴム成分と、窒素吸着比表面積が $100\text{ m}^2/\text{g}$ 以下のシリカ(I)と、窒素吸着比表面積が $180\text{ m}^2/\text{g}$ 以上のシリカ(II)とを含有し、

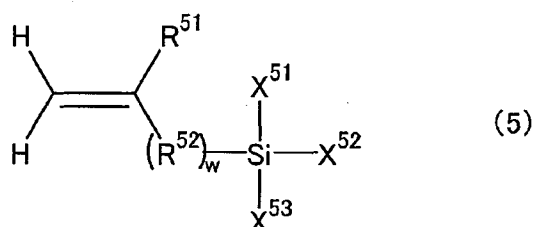
前記ゴム成分100質量%中、共役ジエンに基づく単量体単位、下記式(5)で表される化合物に基づく単量体単位、及び、下記式(6)で表される化合物に基づく単量体単位を有する共役ジエン系重合体(B)の含有量が5質量%以上であり、

前記ゴム成分 100 質量部に対する前記シリカ (I) 及び (II) の合計含有量が 30～150 質量部であり、

前記シリカ (I) 及び (II) の含有量が以下の式を満たすゴム組成物を用いて作製したトレッドを有する空気入りタイヤ。

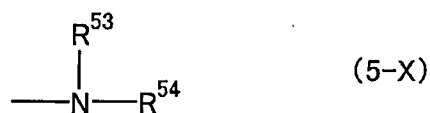
$$(\text{シリカ (I) の含有量}) \times 0.2 \leq (\text{シリカ (II) の含有量}) \leq (\text{シリカ (I) の含有量}) \times 6.5$$

[化11]



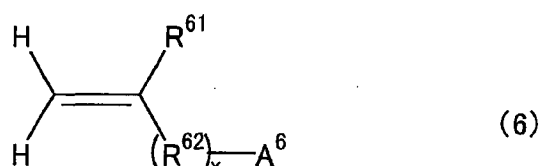
(式中、 R^{51} は水素原子又はヒドロカルビル基を表し、 w は0又は1であり、 R^{52} はヒドロカルビレン基を表し、 X^{51} 、 X^{52} 及び X^{53} は、それぞれ独立に、下記式(5-X)で表される基、又は、置換基を有していてもよいヒドロカルビル基を表し、 X^{51} 、 X^{52} 及び X^{53} の少なくとも1つが下記式(5-X)で表される基である。)

[化12]



(式中、 R^{53} 及び R^{54} は、それぞれ、ヒドロカルビル基、又は、トリヒドロカルビルシリル基、あるいは、 R^{53} と R^{54} とが結合して、窒素原子及び／又は酸素原子をヘテロ原子として有していてもよいヒドロカルビレン基、又は、 R^{53} と R^{54} は1つの基であって、窒素原子に二重結合で結合する基を表す。)

[化13]



(式中、 R^{61} は水素原子又はヒドロカルビル基を表し、 x は0又は1であり、 R^{62} はヒドロカルビレン基を表し、 A^6 は下記式(6-X)で表される基、又は、含窒素複素環基を表す。)

[化14]

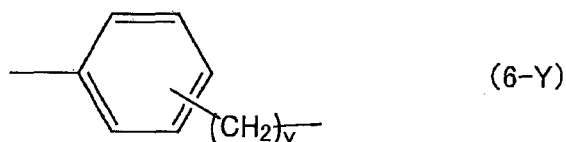


(式中、 R^{63} 及び R^{64} は、それぞれ、ヒドロカルビル基、又は、トリヒドロカルビルシリル基、あるいは、 R^{63} と R^{64} とが結合して、窒素原子及び／又は酸素原子をヘテロ原子として有していてもよいヒドロカルビレン基、又は、 R^{63} と R^{64} は1つの基であって、窒素原子に二重結合で結合する基を表す。)

[請求項10] 前記式(5)の R^{61} が水素原子であり、 w が0である請求項9に記載の空気入りタイヤ。

[請求項11] (補正後) 前記式(6)の R^{61} が水素原子であり、 x が1であり、 R^{62} が下記式(6-Y)で表される基である請求項9又は10に記載の空気入りタイヤ。

[化15]



(式中、 y は0～5の整数を表し、 y が1～5の整数である場合、 $(\text{CH}_2)_y$ はベンゼン環上の置換基であり、 $(\text{CH}_2)_y$ が A^6 と結合し、 y が0である場合、 $(\text{CH}_2)_y$ はベンゼン環と A^6 との結合を表す。)

[請求項12] 前記共役ジエン系重合体(B)のビニル結合量が、共役ジエンに基づく構成単位の含有量を100モル%として、20モル%以上70モル%以下である請求項9～11のいずれかに記載の空気入りタイヤ。

条約第19条(1)に基づく説明書

請求項1：旧請求項2、3、4、及び6、出願時明細書段落[0054]、[0319]を根拠に、式(1)で表される化合物、式(2)で表される化合物、化合物(G)及びアルコキシシラン化合物をそれぞれ特定式に限定した。

請求項2～4：削除した。

請求項5：請求項1の補正に伴う形式的な補正を行った。

請求項6：削除した。

請求項7：請求項1の補正に伴う形式的な補正を行った。

請求項8：請求項1の補正に伴う形式的な補正を行った。

請求項9：出願時明細書段落[0390]、[0439]を根拠に、式(5)で表される化合物及び式(6)で表される化合物をそれぞれ特定式に限定した。

請求項11：請求項9の補正に伴う形式的な補正を行った。

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2014/052997

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

C08L15/00(2006.01)i, B60C1/00(2006.01)i, C08C19/25(2006.01)i, C08K3/36(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)

C08L15/00, B60C1/00, C08C19/25, C08K3/36

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	1996-2014
Kokai Jitsuyo Shinan Koho	1971-2014	Toroku Jitsuyo Shinan Koho	1994-2014

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

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
Y	JP 2012-197408 A (Sumitomo Chemical Co., Ltd.), 18 October 2012 (18.10.2012), claims 1 to 10; paragraphs [0006], [0327] to [0329], [0344], [0354] to [0358] & US 2012/0041134 A1 & DE 102011109827 A & CN 102382258 A & SG 178682 A	1-8
Y	JP 2012-197406 A (Sumitomo Chemical Co., Ltd.), 18 October 2012 (18.10.2012), claims 1 to 7; paragraphs [0006], [0187] to [0189], [0203], [0204], [0214] to [0217] & US 2012/0041135 A1 & DE 102011109823 A & CN 102382257 A & SG 178681 A	9-12

☒ 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
04 April, 2014 (04.04.14)

Date of mailing of the international search report
15 April, 2014 (15.04.14)

Name and mailing address of the ISA/
Japanese Patent Office

Authorized officer

Facsimile No.

Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2014/052997

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
Y	JP 2006-233177 A (Sumitomo Rubber Industries, Ltd.), 07 September 2006 (07.09.2006), claim 1; paragraphs [0007], [0013], [0039] to [0041] & US 2006/0173118 A1 & EP 1686151 A1 & DE 602006000323 D & CN 1821293 A	1-12

A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (I P C))

Int.Cl. C08L15/00(2006.01)i, B60C1/00(2006.01)i, C08C19/25(2006.01)i, C08K3/36(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 (I P C))

Int.Cl. C08L15/00, B60C1/00, C08C19/25, C08K3/36

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	1 9 2 2 - 1 9 9 6 年
日本国公開実用新案公報	1 9 7 1 - 2 0 1 4 年
日本国実用新案登録公報	1 9 9 6 - 2 0 1 4 年
日本国登録実用新案公報	1 9 9 4 - 2 0 1 4 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)

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
Y	JP 2012-197408 A (住友化学株式会社) 2012. 10. 18, 【請求項 1】 - 【請求項 10】, 段落【0006】, 【0327】 - 【0329】, 【0344】, 【0354】 - 【0358】 & US 2012/0041134 A1 & DE 102011109827 A & CN 102382258 A & SG 178682 A	1-8
Y	JP 2012-197406 A (住友化学株式会社) 2012. 10. 18, 【請求項 1】 - 【請求項 7】, 段落【0006】, 【0187】 - 【0189】, 【0203】, 【0204】, 【0214】 - 【0217】	9-12

☒ C 欄の続きにも文献が列挙されている。☐ パテントファミリーに関する別紙を参照。

* 引用文献のカテゴリー

「A」特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの
「E」国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの
「L」優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献 (理由を付す)
「O」口頭による開示、使用、展示等に言及する文献
「P」国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願

の日の後に公表された文献

「T」国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と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

0 4 . 0 4 . 2 0 1 4

国際調査報告の発送日

1 5 . 0 4 . 2 0 1 4

国際調査機関の名称及びあて先

日本国特許庁 (I S A / J P)
郵便番号 1 0 0 - 8 9 1 5
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)

小森 勇

4 J

4 7 7 0

電話番号 0 3 - 3 5 8 1 - 1 1 0 1 内線 3 4 5 7

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
Y	& US 2012/0041135 A1 & DE 102011109823 A & CN 102382257 A & SG 178681 A JP 2006-233177 A (住友ゴム工業株式会社) 2006.09.07, 【請求項1】,段落【0007】,【0013】,【0039】-【0041】 & US 2006/0173118 A1 & EP 1686151 A1 & DE 602006000323 D & CN 1821293 A	1-12