

【公報種別】特許法第 17 条の 2 の規定による補正の掲載

【部門区分】第 3 部門第 3 区分

【発行日】平成 18 年 11 月 30 日 (2006.11.30)

【公開番号】特開 2000-119400 (P2000-119400A)

【公開日】平成 12 年 4 月 25 日 (2000.4.25)

【出願番号】特願 平 11-292454

【国際特許分類】

**C 0 8 J 3/20 (2006.01)**

**B 6 0 C 1/00 (2006.01)**

**C 0 8 J 3/24 (2006.01)**

**C 0 8 K 3/04 (2006.01)**

**C 0 8 K 3/06 (2006.01)**

**C 0 8 K 3/22 (2006.01)**

**C 0 8 K 3/34 (2006.01)**

**C 0 8 K 5/548 (2006.01)**

**C 0 8 K 9/02 (2006.01)**

**C 0 8 L 9/00 (2006.01)**

【 F I 】

C 0 8 J 3/20 C E Q Z

B 6 0 C 1/00 A

C 0 8 J 3/24 C E Q Z

C 0 8 K 3/04

C 0 8 K 3/06

C 0 8 K 3/22

C 0 8 K 3/34

C 0 8 K 5/548

C 0 8 K 9/02

C 0 8 L 9/00

【手続補正書】

【提出日】平成 18 年 10 月 16 日 (2006.10.16)

【手続補正 1】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】特許請求の範囲

【補正方法】変更

【補正の内容】

【特許請求の範囲】

【請求項 1】 ゴム組成物の製造方法にして、次の：(A)(1) 共役ジエンの単独重合体および共重合体、並びに少なくとも 1 種の共役ジエンと芳香族ビニル化合物との共重合体から選ばれる少なくとも 1 種のジエン系エラストマー 100 重量部、(2) 約 30 ～ 約 100 phr の、次の：(a) 約 5 ～ 約 85 重量%のカーボンブラック、および(b)(a) に対応して約 15 ～ 約 95 重量%の、アルミナ、並びに沈降シリカ、アルミノシリケートおよび表面に水酸化珪素を含む変性カーボンブラックの内の少なくとも 1 種から選ばれるシリカ系充填材より成る群の少なくとも 1 種から選ばれる少なくとも 1 種の追加の強化用充填材を含んで成る粒状強化用充填材、および(3) 該アルミナおよびシリカ系充填材 1 重量部当たり約 0.05 ～ 約 20 重量部、あるいは約 0.05 ～ 約 10 重量部の、少なくとも 1 種の、式(I)：

【化 1】

(I)  $Z-R^1-S_n-R^1-Z$ 

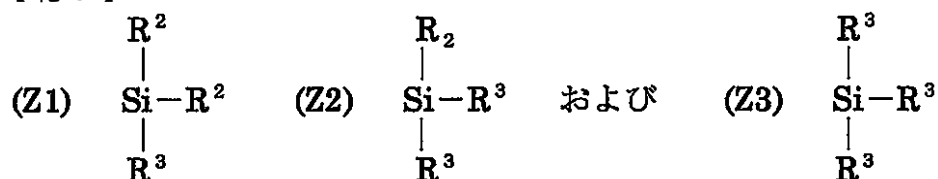
で表される有機シランジスルフィド化合物を、少なくとも1つの逐次的予備（非硬化発現）混合工程において、フリー硫黄が添加されていない状態で、約150～約185の範囲内の温度になるまで熱機械的に混合し、続いて（B）フリー硫黄、および少なくとも1種の、式（II）：

【化2】

(II)  $Z-R^1-S_m-R^1-Z$ 

で表される有機シランポリスルフィド化合物を、工程（A）の混合物と、工程（A）に続く（硬化発現）混合工程において、約100～約130の範囲内の温度になるまで混合する、工程を含んで成ることを特徴とする上記の方法：但し、上記の式において： $R^1$ は合計1～18個の炭素原子を有する置換または非置換アルキル基および合計6～12個の炭素原子を有する置換または非置換アリール基より成る群から選ばれる基であり、 $n$ は2～約6の数で、かつ $n$ の平均は2～2.6の範囲内にあり； $m$ は2～約8の数で、かつ $m$ の平均は約3.5～約4.5の範囲内にあり；そして $Z$ は次の：

【化3】



で表される基より群から選ばれ、ここで $R^2$ は同一の基であってもよいし、或いは異なる基であってもよく、そして各々独立に1～4個の炭素原子を有するアルキル基およびフェニル基より成る群から選ばれ、そして $R^3$ は同一の基であってもよいし、或いは異なる基であってもよく、そして各々独立に1～4個の炭素原子を有するアルキル基、フェニル基、1～8個の炭素原子を有するアルコキシ基および5～8個の炭素原子を有するシクロアルコキシ基より成る群から選ばれる。

【請求項2】 前記の予備混合が、該予備（非硬化発現）混合工程の総密閉式混合時間が約4～約15分の範囲内である少なくとも2つの密閉式混合工程で行われ、かつ前記の後続（硬化発現）密閉式混合工程の混合時間が約1～約3分の範囲内であり、しかも各混合工程間でゴム組成物は開放式ロール機で約2～約6分間混合され、次いで約40以下の温度まで冷却され；前記の有機シランジスルフィド化合物（I）と有機シランポリスルフィド化合物（II）は、アルコキシ成分のアルキル基がメチル基およびエチル基から選ばれ、シリルアルキル成分のアルキル基がエチル基、プロピル基およびブチル基から選ばれるビス-（3-アルコキシシリルアルキル）ポリスルフィドであり、そして混合工程（B）で、フリー硫黄の添加量と、該有機シランポリスルフィド化合物（II）のポリスルフィド橋における硫黄の約50パーセントとが合計で約0.93～約4phrの範囲内にあることを特徴とする、請求項1に記載の方法。

【請求項3】 前記の有機シランジスルフィド化合物（I）および有機シランポリスルフィド化合物（II）が、アルコキシ成分のアルキル基がメチル基およびエチル基から選ばれ、シリルアルキル成分のアルキル基がエチル基、プロピル基およびブチル基から選ばれるビス-（3-アルコキシシリルアルキル）ポリスルフィドであり、そして混合工程（B）で、フリー硫黄の添加量と、該有機シランポリスルフィド化合物（II）のポリスルフィド橋における硫黄の約50パーセントとが合計で約0.93～約4phrの範囲内にあることを特徴とする、請求項1または2に記載の方法。

【請求項4】 前記有機シランジスルフィド化合物（I）の有機シラン成分が前記予備混合工程（1つまたは2つ以上）中に前記のアルミノシリケート、沈降シリカおよび変性カーボンブラックの少なくとも1種が持つヒドロキシル基と反応してシラン系複合物を形成し；そして前記の後続添加有機シランポリスルフィド（II）が、約140～約190

の範囲内の温度におけるゴム組成物の加硫中に、前もって形成された該シラン系複合物と相互作用してフリー硫黄を遊離することを特徴とする、請求項 1 ~ 3 のいずれかに記載の方法。

【請求項 5】 前記の有機シランジスルフィド化合物 (I) および有機シランポリスルフィド化合物 (II) が、各々、個々に、約 25 ~ 約 75 重量パーセントの該スルフィド化合物 (I) および (II)、およびそれに対応して約 75 ~ 25 重量パーセントの粒状カーボンブラックから成る複合物の形で添加されることを特徴とする、請求項 1 ~ 4 のいずれかに記載の方法。

【請求項 6】 前記の粒状強化材が (a) 前記カーボンブラックと (b) 前記の少なくとも 1 種の沈降シリカ、アルミノシリケートおよび変性カーボンブラックを含んで成り；ここで該アルミノシリケートはシリケート電解質とアルミニウム電解質との共沈で約 5 ~ 約 95 重量パーセントのアルミニウムを含有するシリカ / アルミニウム複合物を形成することにより製造され、また該変性カーボンブラックは有機シランとカーボンブラックとを昇温下で反応させるか、または有機シランとオイルを昇温下で共 - 発煙させることにより製造されることを特徴とする、請求項 1 ~ 5 のいずれかに記載の方法。

【請求項 7】 前記の有機シランジスルフィド化合物 (I) および有機シランポリスルフィド化合物 (II) が、(a) アルコキシ基のアルキル基がメチル基およびエチル基から選ばれ、シリルアルキル基のアルキレン基がエチル基、プロピル基およびブチル基から選ばれるビス - (3 - トリアルコキシシリルアルキル) ポリスルフィドであり、そして (b) 該有機シランジスルフィド化合物 (I) では n の少なくとも 55 パーセントが 2 であることを特徴とする、請求項 1 ~ 6 のいずれかに記載の方法。

【請求項 8】 前記の予備熱機械的混合工程 (1 つまたは複数) に合計で約 0.05 ~ 約 5 phr の少なくとも 1 種のアルキルアルコキシシランが添加され、ここで該アルキルシランは式 (III) :

【化 4】



(式中、R' は 1 ~ 18 個の炭素原子を有する飽和アルキル基若しくはアリール基または 6 ~ 12 個の炭素原子を有する飽和アルキル置換アリール基であり、そして R'' はメチル基、エチル基、プロピル基およびイソプロピル基の内の少なくとも 1 種から選ばれる。) を有することを特徴とする、請求項 1 ~ 7 のいずれかに記載の方法。

【請求項 9】 前記のアルキルアルコキシシランが、プロピルトリエトキシシラン、メチルトリエトキシシラン、ヘキサデシルトリエトキシシランおよびオクタデシルトリエトキシシランの内の少なくとも 1 種から選ばれることを特徴とする、請求項 8 に記載の方法。

【請求項 10】 前記のジエン系エラストマーについて、その共役ジエンがイソプレンおよび 1,3 - ブタジエンから選ばれ、そしてそのビニル芳香族化合物がスチレンおよび - メチルスチレンから選ばれることを特徴とする、請求項 1 ~ 9 のいずれかに記載の方法。

【請求項 11】 前記のジエン系エラストマーが、天然および合成シス 1,4 - ポリイソプレンゴム、乳化重合で合成されたスチレン / ブタジエン共重合体ゴム、有機溶液重合で合成されたスチレン / ブタジエン共重合体ゴム、3,4 - ポリイソプレンゴム、イソプレン / ブタジエンゴム、スチレン / イソプレン / ブタジエン三元共重合体ゴム、シス 1,4 - ポリブタジエンゴム、中ビニルポリブタジエンゴム (ビニル 35 ~ 50 パーセント)、高ビニルポリブタジエンゴム (ビニル 50 ~ 90 パーセント)、乳化重合で合成されたスチレン / ブタジエン / アクリロニトリル三元共重合体ゴムおよびブタジエン / アクリロニトリル共重合体ゴムの内の少なくとも 1 種から選ばれることを特徴とする、請求項 1 ~ 9 のいずれかに記載の方法。

【請求項 12】 前記式 (I) の有機シランジスルフィド化合物が、2,2'-ビス(トリメトキシシリルエチル)ジスルフィド、3,3'-ビス(トリメトキシシリルプロピル)ジスルフィド、3,3'-ビス(トリエトキシシリルプロピル)ジスルフィド、2,2'-ビス

(トリエトキシシリルエチル)ジスルフィド、2, 2'-ビス(トリプロポキシシリルエチル)ジスルフィド、2, 2'-ビス(トリ sec ブトキシシリルエチル)ジスルフィド、3, 3'-ビス(トリ t ブトキシシリルエチル)ジスルフィド、3, 3'-ビス(トリエトキシシリルエチルトリレン)ジスルフィド、3, 3'-ビス(トリメトキシシリルエチルトリレン)ジスルフィド、3, 3'-ビス(トリイソプロポキシシリルプロピル)ジスルフィド、3, 3'-ビス(トリオクトキシシリルプロピル)ジスルフィド、2, 2'-ビス(2'-エチルヘキソキシシリルエチル)ジスルフィド、2, 2'-ビス(ジメトキシエトキシシリルエチル)ジスルフィド、3, 3'-ビス(メトキシエトキシプロポキシシリルプロピル)ジスルフィド、3, 3'-ビス(メトキシジメチルシリルプロピル)ジスルフィド、3, 3'-ビス(シクロヘキソキシジメチルシリルプロピル)ジスルフィド、4, 4'-ビス(トリメトキシシリルブチル)ジスルフィド、3, 3'-ビス(トリメトキシシリル 3-メチルプロピル)ジスルフィド、3, 3'-ビス(トリプロポキシシリル 3-メチルプロピル)ジスルフィド、3, 3'-ビス(ジメトキシメチルシリル 3-エチルプロピル)ジスルフィド、3, 3'-ビス(トリメトキシシリル 2-メチルプロピル)ジスルフィド、3, 3'-ビス(ジメトキシフェニルシリル 2-メチルプロピル)ジスルフィド、3, 3'-ビス(トリメトキシシリルシクロヘキシル)ジスルフィド、12, 12'-ビス(トリメトキシシリルドデシル)ジスルフィド、12, 12'-ビス(トリエトキシシリルドデシル)ジスルフィド、18, 18'-ビス(トリメトキシシリルオクタデシル)ジスルフィド、18, 18'-ビス(メトキシジメチルシリルオクタデシル)ジスルフィド、2, 2'-ビス(トリメトキシシリル 2-メチルエチル)ジスルフィド、2, 2'-ビス(トリエトキシシリル 2-メチルエチル)ジスルフィド、2, 2'-ビス(トリプロポキシシリル 2-メチルエチル)ジスルフィドおよび2, 2'-ビス(トリオクトキシシリル 2-メチルエチル)ジスルフィドの内の少なくとも1種から選ばれることを特徴とする、請求項1~11のいずれかに記載の方法。

【請求項13】 前記式(I)の有機シランジスルフィド化合物が3, 3'-ビス(トリエトキシシリルプロピル)ジスルフィドであり、そして前記式(II)の有機シランポリスルフィド化合物がビス(3-トリメトキシシリルプロピル)トリスルフィド、ビス(3-トリメトキシシリルプロピル)テトラスルフィド、ビス(3-トリエトキシシリルプロピル)トリスルフィド、ビス(3-トリエトキシシリルプロピル)テトラスルフィド、ビス(3-トリエトキシシリルエチルトリレン)トリスルフィドおよびビス(3-トリエトキシシリルエチルトリレン)テトラスルフィドの内の少なくとも1種であることを特徴とする、請求項1~11のいずれかに記載の方法。

【請求項14】 得られた混合ゴム組成物を約140~約190 の範囲内の温度で硫黄加硫する追加の工程を含むことを特徴とする、請求項1~14のいずれかに記載の方法。

【請求項15】 得られた混合ゴム組成物を約140~約190 の範囲内の温度で硫黄加硫する追加の工程を含み、ここでフリー硫黄と、前記有機シランポリスルフィド化合物(II)のポリスルフィド橋における硫黄の約50パーセントとが合計で約0.93~約2.8 phrの範囲内にあることを特徴とする、請求項1~13のいずれかに記載の方法。

【請求項16】 請求項14または15のいずれかに記載の方法に従って製造された加硫ゴム組成物。

【請求項17】 前記のゴム組成物を整形してタイヤトレッドストック(stock)を形成し、該タイヤトレッドストックをゴムタイヤカーカスに施してそれらの集成体を形成し、そして該集成体を約140~約190 の範囲内の温度で成形および加硫してタイヤを形成することを特徴とする、請求項1~13のいずれかに記載の方法。

【請求項18】 フリー硫黄と、前記有機シランポリスルフィド化合物(II)のポリスルフィド橋における硫黄の約50パーセントとが合計で約0.93~約4 phrの範囲内にあることを特徴とする、請求項17に記載の方法。

【請求項19】 請求項17に記載の方法に従って製造された加硫ゴムタイヤ。

【請求項20】 請求項16に記載のゴム組成物を1つの構成部材として有するタイヤ。

## 【手続補正 2】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0117

【補正方法】変更

【補正の内容】

【0117】

以上、本発明を例示説明する目的から、一定の代表的な態様と細部を示したが、この技術分野の当業者には、本発明には、その精神と範囲から逸脱しない限り、様々な変更および修正をなし得ることは明らかであろう。

[本発明の態様]

[1] ゴム組成物の製造方法にして、次の：(A)(1)共役ジエンの単独重合体および共重合体、並びに少なくとも1種の共役ジエンと芳香族ビニル化合物との共重合体から選ばれる少なくとも1種のジエン系エラストマー100重量部、(2)約30～約100 phrの、次の：(a)約5～約85重量%のカーボンブラック、および(b)(a)に対応して約15～約95重量%の、アルミナ、並びに沈降シリカ、アルミノシリケートおよび表面に水酸化珪素を含む変性カーボンブラックの内の少なくとも1種から選ばれるシリカ系充填材より成る群の少なくとも1種から選ばれる少なくとも1種の追加の強化用充填材を含んで成る粒状強化用充填材、および(3)該アルミナおよびシリカ系充填材1重量部当たり約0.05～約20重量部、あるいは約0.05～約10重量部の、少なくとも1種の、式(I)：

で表される有機シランジスルフィド化合物を、少なくとも1つの逐次的予備(非硬化発現)混合工程において、フリー硫黄が添加されていない状態で、約150～約185の範囲内の温度になるまで熱機械的に混合し、続いて(B)フリー硫黄、および少なくとも1種の、式(II)：

で表される有機シランポリスルフィド化合物を、工程(A)の混合物と、工程(A)に続く(硬化発現)混合工程において、約100～約130の範囲内の温度になるまで混合する、工程を含んで成ることを特徴とする上記の方法：但し、上記の式において： $R^1$ は合計1～18個の炭素原子を有する置換または非置換アルキル基および合計6～12個の炭素原子を有する置換または非置換アリール基より成る群から選ばれる基であり、 $n$ は2～約6の数で、かつ $n$ の平均は2～2.6の範囲内にあり； $m$ は2～約8の数で、かつ $m$ の平均は約3.5～約4.5の範囲内にあり；そして $Z$ は前記の式

で表される基より群から選ばれ、ここで $R^2$ は同一の基であってもよいし、或いは異なる基であってもよく、そして各々独立に1～4個の炭素原子を有するアルキル基およびフェニル基より成る群から選ばれ、そして $R^3$ は同一の基であってもよいし、或いは異なる基であってもよく、そして各々独立に1～4個の炭素原子を有するアルキル基、フェニル基、1～8個の炭素原子を有するアルコキシ基および5～8個の炭素原子を有するシクロアルコキシ基より成る群から選ばれる。

[2] 前記の予備混合が、該予備(非硬化発現)混合工程の総密閉式混合時間が約4～約15分の範囲内である少なくとも2つの密閉式混合工程で行われ、かつ前記の後続(硬化発現)密閉式混合工程の混合時間が約1～約3分の範囲内であり、しかも各混合工程間でゴム組成物は開放式ロール機で約2～約6分間混合され、次いで約40以下の温度まで冷却され；前記の有機シランジスルフィド化合物(I)と有機シランポリスルフィド化合物(II)は、アルコキシ成分のアルキル基がメチル基およびエチル基から選ばれ、シリルアルキル成分のアルキル基がエチル基、プロピル基およびブチル基から選ばれるビス-(3-アルコキシシリルアルキル)ポリスルフィドであり、そして混合工程(B)で、フリー硫黄の添加量と、該有機シランポリスルフィド化合物(II)のポリスルフィド橋における硫黄の約50パーセントとが合計で約0.93～約4 phrの範囲内にあることを特徴とする、1に記載の方法。

[3] 前記の有機シランジスルフィド化合物(I)および有機シランポリスルフィド化合物(II)が、アルコキシ成分のアルキル基がメチル基およびエチル基から選ばれ、シ

リルアルキル成分のアルキル基がエチル基、プロピル基およびブチル基から選ばれるビス - ( 3 - アルコキシシリルアルキル ) ポリスルフィドであり、そして混合工程 ( B ) で、フリー硫黄の添加量と、該有機シランポリスルフィド化合物 ( I I ) のポリスルフィド橋における硫黄の約 50 パーセントとが合計で約 0.93 ~ 約 4 phr の範囲内にあることを特徴とする、1 または 2 に記載の方法。

[ 4 ] 前記有機シランジスルフィド化合物 ( I ) の有機シラン成分が前記予備混合工程 ( 1 つまたは 2 つ以上 ) 中に前記のアルミノシリケート、沈降シリカおよび変性カーボンブラックの少なくとも 1 種が持つヒドロキシル基と反応してシラン系複合物を形成し ; そして前記の後続添加有機シランポリスルフィド ( I I ) が、約 140 ~ 約 190 の範囲内の温度におけるゴム組成物の加硫中に、前もって形成された該シラン系複合物と相互作用してフリー硫黄を遊離することを特徴とする、1 ~ 3 のいずれかに記載の方法。

[ 5 ] 前記の有機シランジスルフィド化合物 ( I ) および有機シランポリスルフィド化合物 ( I I ) が、各々、個々に、約 25 ~ 約 75 重量パーセントの該スルフィド化合物 ( I ) および ( I I ) 、およびそれに対応して約 75 ~ 25 重量パーセントの粒状カーボンブラックから成る複合物の形で添加されることを特徴とする、1 ~ 4 のいずれかに記載の方法。

[ 6 ] 前記の粒状強化材が ( a ) 前記カーボンブラックと ( b ) 前記の少なくとも 1 種の沈降シリカ、アルミノシリケートおよび変性カーボンブラックを含んで成り ; ここで該アルミノシリケートはシリケート電解質とアルミニウム電解質との共沈で約 5 ~ 約 95 重量パーセントのアルミニウムを含有するシリカ / アルミニウム複合物を形成することにより製造され、また該変性カーボンブラックは有機シランとカーボンブラックとを昇温下で反応させるか、または有機シランとオイルを昇温下で共 - 発煙させることにより製造されることを特徴とする、1 ~ 5 のいずれかに記載の方法。

[ 7 ] 前記の有機シランジスルフィド化合物 ( I ) および有機シランポリスルフィド化合物 ( I I ) が、( a ) アルコキシ基のアルキル基がメチル基およびエチル基から選ばれる、シリルアルキル基のアルキレン基がエチル基、プロピル基およびブチル基から選ばれるビス - ( 3 - トリアルコキシシリルアルキル ) ポリスルフィドであり、そして ( b ) 該有機シランジスルフィド化合物 ( I ) では n の少なくとも 55 パーセントが 2 であることを特徴とする、1 ~ 6 のいずれかに記載の方法。

[ 8 ] 前記の予備熱機械的混合工程 ( 1 つまたは複数 ) に合計で約 0.05 ~ 約 5 phr の少なくとも 1 種のアルキルアルコキシシランが添加され、ここで該アルキルシランは式 ( I I I )

( 式中、R' は 1 ~ 18 個の炭素原子を有する飽和アルキル基若しくはアリール基または 6 ~ 12 個の炭素原子を有する飽和アルキル置換アリール基であり、そして R'' はメチル基、エチル基、プロピル基およびイソプロピル基の内の少なくとも 1 種から選ばれる。 ) を有することを特徴とする、1 ~ 7 のいずれかに記載の方法。

[ 9 ] 前記のアルキルアルコキシシランが、プロピルトリエトキシシラン、メチルトリエトキシシラン、ヘキサデシルトリエトキシシランおよびオクタデシルトリエトキシシランの内の少なくとも 1 種から選ばれることを特徴とする、8 に記載の方法。

[ 10 ] 前記のジエン系エラストマーについて、その共役ジエンがイソプレンおよび 1,3 - ブタジエンから選ばれ、そしてそのビニル芳香族化合物がスチレンおよび - メチルスチレンから選ばれることを特徴とする、1 ~ 9 のいずれかに記載の方法。

[ 11 ] 前記のジエン系エラストマーが、天然および合成シス 1,4 - ポリイソプレンゴム、乳化重合で合成されたスチレン / ブタジエン共重合体ゴム、有機溶液重合で合成されたスチレン / ブタジエン共重合体ゴム、3,4 - ポリイソプレンゴム、イソプレン / ブタジエンゴム、スチレン / イソプレン / ブタジエン三元共重合体ゴム、シス 1,4 - ポリブタジエンゴム、中ビニルポリブタジエンゴム ( ビニル 35 ~ 50 パーセント ) 、高ビニルポリブタジエンゴム ( ビニル 50 ~ 90 パーセント ) 、乳化重合で合成されたスチレン / ブタジエン / アクリロニトリル三元共重合体ゴムおよびブタジエン / アクリロニトリル共重合体ゴムの内の少なくとも 1 種から選ばれることを特徴とする、1 ~ 9 のいずれかに

記載の方法。

[ 1 2 ] 前記式 ( I ) の有機シランジスルフィド化合物が、2, 2'-ビス(トリメトキシシリルエチル)ジスルフィド、3, 3'-ビス(トリメトキシシリルプロピル)ジスルフィド、3, 3'-ビス(トリエトキシシリルプロピル)ジスルフィド、2, 2'-ビス(トリエトキシシリルエチル)ジスルフィド、2, 2'-ビス(トリプロポキシシリルエチル)ジスルフィド、2, 2'-ビス(トリsec-ブトキシシリルエチル)ジスルフィド、3, 3'-ビス(トリtert-ブトキシシリルエチル)ジスルフィド、3, 3'-ビス(トリエトキシシリルエチルトリレン)ジスルフィド、3, 3'-ビス(トリメトキシシリルエチルトリレン)ジスルフィド、3, 3'-ビス(トリイソプロポキシシリルプロピル)ジスルフィド、3, 3'-ビス(トリオクトキシシリルプロピル)ジスルフィド、2, 2'-ビス(2'-エチルヘキソキシシリルエチル)ジスルフィド、2, 2'-ビス(ジメトキシエトキシシリルエチル)ジスルフィド、3, 3'-ビス(メトキシエトキシプロポキシシリルプロピル)ジスルフィド、3, 3'-ビス(メトキシジメチルシリルプロピル)ジスルフィド、3, 3'-ビス(シクロヘキソキシジメチルシリルプロピル)ジスルフィド、4, 4'-ビス(トリメトキシシリルブチル)ジスルフィド、3, 3'-ビス(トリメトキシシリル 3-メチルプロピル)ジスルフィド、3, 3'-ビス(トリプロポキシシリル 3-メチルプロピル)ジスルフィド、3, 3'-ビス(ジメトキシメチルシリル 3-エチルプロピル)ジスルフィド、3, 3'-ビス(トリメトキシシリル 2-メチルプロピル)ジスルフィド、3, 3'-ビス(ジメトキシフェニルシリル 2-メチルプロピル)ジスルフィド、3, 3'-ビス(トリメトキシシリルシクロヘキシル)ジスルフィド、1, 2, 1, 2'-ビス(トリメトキシシリルドデシル)ジスルフィド、1, 2, 1, 2'-ビス(トリエトキシシリルドデシル)ジスルフィド、1, 8, 1, 8'-ビス(トリメトキシシリルオクタデシル)ジスルフィド、1, 8, 1, 8'-ビス(メトキシジメチルシリルオクタデシル)ジスルフィド、2, 2'-ビス(トリメトキシシリル 2-メチルエチル)ジスルフィド、2, 2'-ビス(トリエトキシシリル 2-メチルエチル)ジスルフィド、2, 2'-ビス(トリプロポキシシリル 2-メチルエチル)ジスルフィドおよび2, 2'-ビス(トリオクトキシシリル 2-メチルエチル)ジスルフィドの内の少なくとも1種から選ばれることを特徴とする、1~11のいずれかに記載の方法。

[ 1 3 ] 前記式 ( I ) の有機シランジスルフィド化合物が3, 3'-ビス(トリエトキシシリルプロピル)ジスルフィドであり、そして前記式 ( I I ) の有機シランポリスルフィド化合物がビス(3-トリメトキシシリルプロピル)トリスルフィド、ビス(3-トリメトキシシリルプロピル)テトラスルフィド、ビス(3-トリエトキシシリルプロピル)トリスルフィド、ビス(3-トリエトキシシリルプロピル)テトラスルフィド、ビス(3-トリエトキシシリルエチルトリレン)トリスルフィドおよびビス(3-トリエトキシシリルエチルトリレン)テトラスルフィドの内の少なくとも1種であることを特徴とする、1~11のいずれかに記載の方法。

[ 1 4 ] 前記式 ( I ) の有機シランジスルフィド化合物が3, 3'-ビス(トリエトキシシリルプロピル)ジスルフィドであり、そして前記式 ( I I ) の有機シランポリスルフィド化合物がビス(3-トリメトキシシリルプロピル)トリスルフィド、ビス(3-トリメトキシシリルプロピル)テトラスルフィド、ビス(3-トリエトキシシリルプロピル)トリスルフィドおよびビス(3-トリエトキシシリルプロピル)テトラスルフィドの内の少なくとも1種であることを特徴とする、1~11のいずれかに記載の方法。

[ 1 5 ] 得られた混合ゴム組成物を約140~約190 の範囲内の温度で硫黄加硫する追加の工程を含むことを特徴とする、1~14のいずれかに記載の方法。

[ 1 6 ] 得られた混合ゴム組成物を約140~約190 の範囲内の温度で硫黄加硫する追加の工程を含み、ここでフリー硫黄と、前記有機シランポリスルフィド化合物 ( I I ) のポリスルフィド橋における硫黄の約50パーセントとが合計で約0.93~約4 phrの範囲内にあることを特徴とする、1~14のいずれかに記載の方法。

[ 1 7 ] 得られた混合ゴム組成物を約140~約190 の範囲内の温度で硫黄加硫する追加の工程を含み、ここでフリー硫黄と、前記有機シランポリスルフィド化合物 ( I I

）のポリスルフィド橋における硫黄の約 50 パーセントとが合計で約 0.93 ～ 約 2.8 phr の範囲内にあることを特徴とする、1 ～ 14 のいずれかに記載の方法。

[ 18 ] 15 ～ 17 のいずれかに記載の方法に従って製造された加硫ゴム組成物。

[ 19 ] 前記のゴム組成物を整形してタイヤトレッドストック (stock) を形成し、該タイヤトレッドストックをゴムタイヤカーカスに施してそれらの集成体を形成し、そして該集成体を約 140 ～ 約 190 の範囲内の温度で成形および加硫してタイヤを形成することを特徴とする、1 ～ 13 のいずれかに記載の方法。

[ 20 ] フリー硫黄と、前記有機シランポリスルフィド化合物 (II) のポリスルフィド橋における硫黄の約 50 パーセントとが合計で約 0.93 ～ 約 4 phr の範囲内にあることを特徴とする、19 に記載の方法。

[ 21 ] 19 または 20 に記載の方法に従って製造された加硫ゴムタイヤ。

[ 22 ] 18 に記載のゴム組成物を 1 つの構成部材として有するタイヤ。

[ 23 ] 18 に記載のゴム組成物より成るトレッドを有するタイヤ。

[ 24 ] 18 に記載のゴム組成物を少なくとも 1 つの構成部材として有する製品。

[ 25 ] 18 に記載のゴム組成物を少なくとも 1 つの構成部材として有するベルトおよびホースの少なくとも 1 つから選ばれる工業製品。