(19)日本国特許庁(JP)　(12)特　許　公　報(B2)　(11)特許番号
特許第5287604号
(P5287604)
(45)発行日　平成25年9月11日(2013.9.11)　(24)登録日　平成25年6月14日(2013.6.14)

(51)Int.Cl.　F I
C08F 8/42 (2006.01)　C08F 8/42
C08L 15/00 (2006.01)　C08L 15/00
C08K 3/00 (2006.01)　C08K 3/00

請求項の数 11　(全 29 頁)

(21)出願番号　特願2009-195308 (P2009-195308)
(22)出願日　平成21年8月26日 (2009.8.26)
(65)公開番号　特開2010-77412 (P2010-77412A)
(43)公開日　平成22年4月8日 (2010.4.8)
審査請求日　平成24年6月6日 (2012.6.6)
(31)優先権主張番号　特願2008-217833 (P2008-217833)
(32)優先日　平成20年8月27日 (2008.8.27)
(33)優先権主張国　日本国(JP)

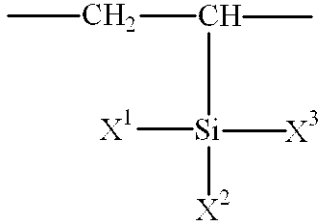
(73)特許権者　000002093
住友化学株式会社
東京都中央区新川二丁目２７番１号
(74)代理人　100113000
弁理士　中山　亨
(74)代理人　100151909
弁理士　坂元　徹
(72)発明者　大嶋　真弓
千葉県市原市姉崎海岸５の１　住友化学株式会社内

審査官　岡▲崎▼　忠

最終頁に続く

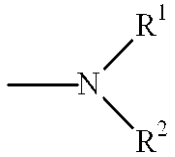
(54)【発明の名称】共役ジエン系重合体、共役ジエン系重合体組成物及び共役ジエン系重合体の製造方法

(57)【特許請求の範囲】
【請求項１】
共役ジエンに基づく構成単位と下式（Ｉ）で表される構成単位とを有する共役ジエン系重合体であって、下式（II）で表される化合物によって重合体の少なくとも一端が変性されてなることを特徴とする共役ジエン系重合体。



(I)

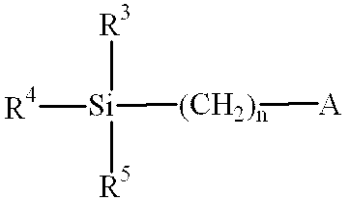
［式中、X^1、X^2及びX^3は、それぞれ独立に、下式（Ia）で表される基、水酸基、ヒドロカルビル基又は置換ヒドロカルビル基を表し、X^1、X^2及びX^3の少なくとも１つが、下式（Ia）で表される基又は水酸基である。］



(Ia)

［式中、R^1及びR^2は、それぞれ独立に、炭素原子数が１～６のヒドロカルビル基、炭素

原子数が１～６の置換ヒドロカルビル基、シリル基又は置換シリル基を表し、R^1及びR^2は結合して窒素原子と共に環構造を形成していてもよい。］



(II)

［式中、ｎは１～１０の整数を表し、R^3、R^4及びR^5は、それぞれ独立に、炭素原子数が１～４のヒドロカルビル基又は炭素原子数が１～４のヒドロカルビルオキシ基を表し、R^3、R^4及びR^5の少なくとも１つがヒドロカルビルオキシ基であり、Ａは窒素原子を有する官能基を表す。］

【請求項２】

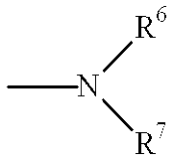
式（Ia）のR^1及びR^2が炭素原子数１～６のヒドロカルビル基であることを特徴とする請求項１に記載の共役ジエン系重合体。

【請求項３】

式（Ｉ）のX^1、X^2及びX^3の２つが式（Ia）で表される基又は水酸基であることを特徴とする請求項１又は２に記載の共役ジエン系重合体。

【請求項４】

式（II）のＡが下式（IIa）で表される基であることを特徴とする請求項１～３のいずれかに記載の共役ジエン系重合体。



(IIa)

［式中、R^6及びR^7は、それぞれ独立に、窒素原子、酸素原子及びケイ素原子からなる原子群から選ばれる少なくとも１種の原子を有していてもよい炭素原子数が１～６の基を表し、R^6及びR^7は結合して窒素原子と共に環構造を形成していてもよく、R^6及びR^7は窒素に二重結合で結合する同一の基であってもよい。］

【請求項５】

共役ジエン系重合体のビニル結合量が、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％以下であることを特徴とする請求項１～４のいずれかに記載の共役ジエン系重合体。

【請求項６】

請求項１～５のいずれかに記載の共役ジエン系重合体と充填剤とを配合してなることを特徴とする共役ジエン系重合体組成物。

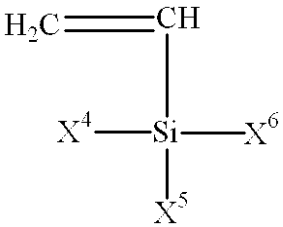
【請求項７】

共役ジエン系重合体の配合量１００重量部あたり、充填剤の配合量が１０～１５０重量部であることを特徴とする請求項６に記載の共役ジエン系重合体組成物。

【請求項８】

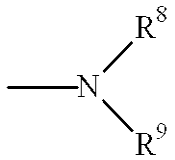
下記工程Ａおよび工程Ｂを有することを特徴とする共役ジエン系重合体の製造方法。

（工程Ａ）：炭化水素溶媒中で、アルカリ金属触媒により、共役ジエンと下式（III）で表されるビニル化合物とを含む単量体を重合させ、共役ジエンに基づく単量体単位と下式（III）で表されるビニル化合物に基づく単量体単位とを有する重合体鎖の少なくとも一端に、該触媒由来のアルカリ金属を有する重合体を得る工程。



(III)

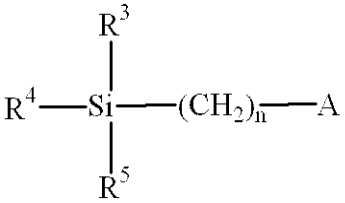
［式中、X^4、X^5及びX^6は、それぞれ独立に、下式（IIIa）で表される基、ヒドロカルビル基又は置換ヒドロカルビル基を表し、X^4、X^5及びX^6の少なくとも１つが、下式（IIIa）で表される基である。］



(IIIa)

［式中、R^8及びR^9は、それぞれ独立に、炭素原子数が１～６のヒドロカルビル基、炭素原子数が１～６の置換ヒドロカルビル基、シリル基又は置換シリル基を表し、R^8及びR^9は結合して窒素原子と共に環構造を形成していてもよい。］

（工程Ｂ）：工程Ａで得られた重合体と下式（II）で表される化合物とを反応させる工程。



(II)

［式中、ｎは１～１０の整数を表し、R^3、R^4及びR^5は、それぞれ独立に、炭素原子数が１～４のヒドロカルビル基又は炭素原子数が１～４のヒドロカルビルオキシ基を表し、R^3、R^4及びR^5の少なくとも１つがヒドロカルビルオキシ基であり、Ａは窒素原子を有する官能基を表す。］

【請求項９】

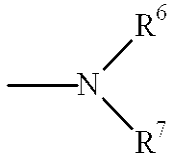
式（IIIa）のR^8及びR^9が炭素原子数１～６のヒドロカルビル基であることを特徴とする請求項８に記載の共役ジエン系重合体の製造方法。

【請求項１０】

式（III）のX^4、X^5及びX^6の２つが式（IIIa）で表される基であることを特徴とする請求項８又は９に記載の共役ジエン系重合体の製造方法。

【請求項１１】

式（II）のＡが下式（IIa）で表される基であることを特徴とする請求項８～１０のいずれかに記載の共役ジエン系重合体の製造方法。



(IIa)

［式中、R^6及びR^7は、それぞれ独立に、窒素原子、酸素原子及びケイ素原子からなる原子群から選ばれる少なくとも１種の原子を有していてもよい炭素原子数が１～６の基を表し、R^6及びR^7は結合して窒素原子と共に環構造を形成していてもよく、R^6及びR^7は窒素に二重結合で結合する同一の基であってもよい。］

【発明の詳細な説明】

【技術分野】

【０００１】

本発明は、共役ジエン系重合体、共役ジエン系重合体組成物及び共役ジエン系重合体の製造方法に関するものである。

【背景技術】

【０００２】

近年、環境問題への関心の高まりから、自動車に対して省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重合体組成物に対しても、省燃費性に優れることが求められている。自動車タイヤ用の重合体組成物としては、ポリブタジエンやブタジエン－スチレン共重合体等の共役ジエン系重合体と、カーボンブラックやシリカ等の充填材とを含有する重合体組成物等が用いられている。

例えば、共役ジエン系重合体として、アルキルリチウムを重合開始剤としてブタジエンとスチレンとを共重合してなる重合体の片末端を、ビス（ジメチルアミノ）メチルビニルシランで変性した重合体を用いた重合体組成物（例えば、特許文献１参照。）が知られている。また、共役ジエン系重合体として、アルキルリチウムを重合開始剤としてブタジエンとスチレンとを共重合してなる重合体の片末端を、ジアルキルアミノ基を有するアクリルアミドで変性した重合体を用いた重合体組成物（例えば、特許文献２参照。）、共役ジエン系重合体として、アルキルリチウムを重合開始剤としてブタジエンを重合ないしブタジエンとスチレンとを共重合してなる重合体の片末端を、ジアルキルアミノ基を有するアルコキシシランで変性した重合体を用いた重合体組成物（例えば、特許文献３、４参照。）などが、省燃費性が良好な重合体組成物として提案されている。

【先行技術文献】

【特許文献】

【０００３】

【特許文献１】特開平１－２１７０４８号公報
【特許文献２】特開平１－２１７０４７号公報
【特許文献１】特開昭６３－１８６７４８号公報
【特許文献２】特開２００５－２９０３５５号公報

【発明の概要】

【発明が解決しようとする課題】

【０００４】

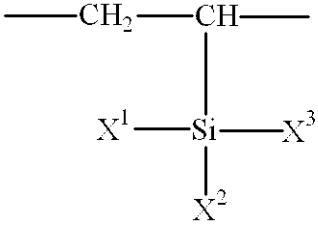
しかしながら、上記従来の共役ジエン系重合体を用いた重合体組成物は、省燃費性において必ずしも十分満足のいくものではなかった。

かかる状況のもと、本発明が解決しようとする課題は、省燃費性に優れる重合体組成物を得ることができる共役ジエン系重合体、該共役ジエン系重合体とシリカなどの充填剤とを配合してなる重合体組成物、及び、該共役ジエン系重合体の製造方法を提供することにある。

【課題を解決するための手段】

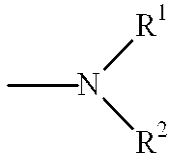
【０００５】

本発明の第１は、共役ジエンに基づく構成単位と下式（Ｉ）で表される構成単位とを有する共役ジエン系重合体であって、下式（II）で表される化合物によって重合体の少なくとも一端が変性されてなる共役ジエン系重合体にかかるものである。



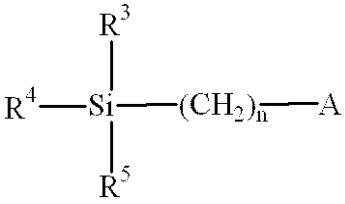
(I)

［式中、X^1、X^2及びX^3は、それぞれ独立に、下式（Ia）で表される基、水酸基、ヒドロカルビル基又は置換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、下式（Ia）で表される基又は水酸基である。］



(Ia)

［式中、R^1及びR^2は、それぞれ独立に、炭素原子数が１～６のヒドロカルビル基、炭素原子数が１～６の置換ヒドロカルビル基、シリル基又は置換シリル基を表し、R^1及びR^2は結合して窒素原子と共に環構造を形成していてもよい。］



(II)

［式中、ｎは１～１０の整数を表し、R^3、R^4及びR^5は、それぞれ独立に、炭素原子数が１～４のヒドロカルビル基又は炭素原子数が１～４のヒドロカルビルオキシ基を表し、R^3、R^4及びR^5の少なくとも１つがヒドロカルビルオキシ基であり、Ａは窒素原子を有する官能基を表す。］

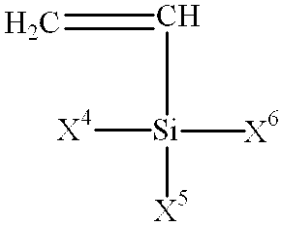
【０００６】

本発明の第２は、上記の共役ジエン系重合体と充填剤とを配合してなる共役ジエン系重合体組成物にかかるものである。

【０００７】

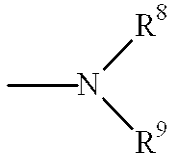
本発明の第３は、下記工程Ａおよび工程Ｂを有する共役ジエン系重合体の製造方法にかかるものである。

（工程Ａ）：炭化水素溶媒中で、アルカリ金属触媒により、共役ジエンと下式（III）で表されるビニル化合物とを含む単量体を重合させ、共役ジエンに基づく単量体単位と下式（III）で表されるビニル化合物に基づく単量体単位とを有する重合体鎖の少なくとも一端に、該触媒由来のアルカリ金属を有する重合体を得る工程。



(III)

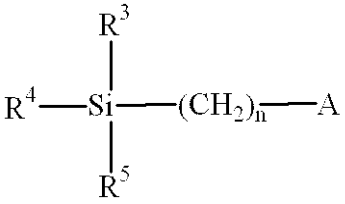
［式中、X^4、X^5及びX^6は、それぞれ独立に、下式（IIIa）で表される基、ヒドロカルビル基又は置換ヒドロカルビル基を表し、X^4、X^5及びX^6の少なくとも１つが、下式（IIIa）で表される基である。］



(IIIa)

［式中、R^8及びR^9は、それぞれ独立に、炭素原子数が１～６のヒドロカルビル基、炭素原子数が１～６の置換ヒドロカルビル基、シリル基又は置換シリル基を表し、R^8及びR^9は結合して窒素原子と共に環構造を形成していてもよい。］

（工程Ｂ）：工程Ａで得られた重合体と下式（II）で表される化合物とを反応させる工程。



(II)

［式中、ｎは１～１０の整数を表し、Ｒ[3]、Ｒ[4]及びＲ[5]は、それぞれ独立に、炭素原子数が１～４のヒドロカルビル基又は炭素原子数が１～４のヒドロカルビルオキシ基を表し、Ｒ[3]、Ｒ[4]及びＲ[5]の少なくとも１つがヒドロカルビルオキシ基であり、Ａは窒素原子を有する官能基を表す。］

【発明の効果】

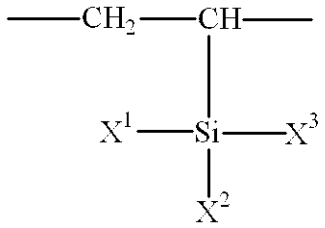
【０００８】

本発明により、省燃費性に優れる重合体組成物を得ることができる共役ジエン系重合体、該共役ジエン系重合体とシリカなどの充填剤とを配合してなる重合体組成物、及び、該共役ジエン系重合体の製造方法を提供することができる。該重合体組成物は、省燃費性に優れる。

【発明を実施するための形態】

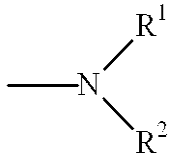
【０００９】

本発明の共役ジエン系重合体は、共役ジエンに基づく構成単位と下式（Ｉ）で表される構成単位とを有する共役ジエン系重合体であって、下式（II）で表される化合物によって重合体の少なくとも一端が変性されてなる共役ジエン系重合体である。



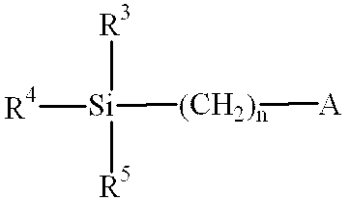
(I)

［式中、Ｘ[1]、Ｘ[2]及びＸ[3]は、それぞれ独立に、下式（Ia）で表される基、水酸基、ヒドロカルビル基又は置換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、下式（Ia）で表される基又は水酸基である。］



(Ia)

［式中、Ｒ[1]及びＲ[2]は、それぞれ独立に、炭素原子数が１～６のヒドロカルビル基、炭素原子数が１～６の置換ヒドロカルビル基、シリル基又は置換シリル基を表し、Ｒ[1]及びＲ[2]は結合して窒素原子と共に環構造を形成していてもよい。］



(II)

［式中、ｎは１～１０の整数を表し、Ｒ[3]、Ｒ[4]及びＲ[5]は、それぞれ独立に、炭素原子数が１～４のヒドロカルビル基又は炭素原子数が１～４のヒドロカルビルオキシ基を表し、Ｒ[3]、Ｒ[4]及びＲ[5]の少なくとも１つがヒドロカルビルオキシ基であり、Ａは窒素原子を有する官能基を表す。］

【００１０】

共役ジエンに基づく構成単位の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種でもよく、２種以上でもよい。入手容易性の観点から、１，３－ブタジエン、イソプレンが好ましい。

【００１１】

式（Ｉ）で表される構成単位の式（Ｉ）のX^1、X^2及びX^3は、それぞれ独立に、式（Ｉａ）で表される基、水酸基、ヒドロカルビル基又は置換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つは、式（Ｉａ）で表される基又は水酸基である。

【００１２】

式（Ｉａ）のR^1及びR^2は、それぞれ独立に、炭素原子数が１～６のヒドロカルビル基、炭素原子数が１～６の置換ヒドロカルビル基、シリル基又は置換シリル基を表し、R^1及びR^2は結合して窒素原子と共に環構造を形成していてもよい。

【００１３】

本明細書では、ヒドロカルビル基は炭化水素残基を表す。置換ヒドロカルビル基は、炭化水素残基の１つ以上の水素原子が置換基で置換されている基を表す。ヒドロカルビルオキシ基は、ヒドロキシル基の水素原子がヒドロカルビル基で置換されている基を表し、置換ヒドロカルビルオキシ基は、ヒドロカルビルオキシ基の１つ以上の水素原子が置換基で置換されている基を表す。また、置換シリル基は、シリル基の１つ以上の水素原子が置換基で置換されている基を表す。

【００１４】

R^1及びR^2の炭素原子数が１～６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、ｎ－ペンチル基、ネオペンチル基、イソペンチル基、ｎ－ヘキシ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；フェニル基などをあげることができる。

【００１５】

R^1及びR^2の炭素原子数が１～６の置換ヒドロカルビル基としては、窒素原子を有する基、酸素原子を有する基及びケイ素原子を有する基からなる基群から選ばれる少なくとも１種の基を置換基として有する置換ヒドロカルビル基をあげることができる。窒素原子を有する基を置換基として有する基としては、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、酸素原子を有する基を置換基として有する基としては、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、ケイ素原子を有する基を置換基として有する基としては、トリメチルシリルメチル基などのトリアルキルシリルアルキル基などをあげることができる。

【００１６】

R^1及びR^2の置換シリル基としては、トリメチルシリル基、トリエチルシリル基、ｔ－ブチルジメチルシリル基などのトリアルキルシリル基などをあげることができる。

【００１７】

R^1及びR^2が結合した基としては、窒素原子、酸素原子及びケイ素原子からなる原子群から選ばれる少なくとも１種の原子を有していてもよい炭素原子数が１～１２の２価の基があげられる。例えば、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；オキシジエチレン基、オキシジプロピレン基などのオキシジアルキレン基；$-CH_2CH_2-NH-CH_2-$で表される基、$-CH_2CH_2-N=CH-$で表される基などの含窒素基などをあげることができる。

【００１８】

R^1及びR^2が結合した基としては、含窒素基が好ましく、$-CH_2CH_2-NH-CH_2-$で表される基、$-CH_2CH_2-N=CH-$で表される基がより好ましい。

【００１９】

R^1及びR^2のヒドロカルビル基としては、アルキル基が好ましく、炭素原子数が１～４のアルキル基がより好ましく、メチル基、エチル基、ｎ－プロピル基、ｎ－ブチル基が更に好ましく、エチル基、ｎ－ブチル基が特に好ましい。R^1及びR^2の置換ヒドロカルビル

基としては、アルコキシアルキル基が好ましく、炭素原子数が１～４のアルコキシアルキル基がより好ましい。R^1及びR^2の置換シリル基としては、トリアルキルシリル基が好ましく、トリメチルシリル基がより好ましい。

【００２０】

R^1及びR^2としては、好ましくは、アルキル基、アルコキシアルキル基、置換シリル基又はR^1及びR^2が結合した含窒素基であり、より好ましくは、アルキル基であり、更に好ましくは、炭素原子数が１～４のアルキル基であり、より更に好ましくは、メチル基、エチル基、ｎ－プロピル基、ｎ－ブチル基である。

【００２１】

式（Ia）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。

該非環状アミノ基としては、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、ジ（ネオペンチル）アミノ基、エチルメチルアミノ基などのジアルキルアミノ基；ジ（メトキシメチル）アミノ基、ジ（メトキシエチル）アミノ基、ジ（エトキシメチル）アミノ基、ジ（エトキシエチル）アミノ基などのジ（アルコキシアルキル）アミノ基；ジ（トリメチルシリル）アミノ基、ジ（ｔ－ブチルジメチルシリル）アミノ基などのジ（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。

【００２２】

該環状アミノ基としては、１－ピロリジニル基、１－ピペリジノ基、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をあげることができる。また、環状アミノ基としては、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、モルホリノ基などもあげることができる。

【００２３】

式（Ia）で表される基としては、経済性および入手容易性から、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り、更に好ましくは、炭素原子数が１～４のアルキル基で置換されたジアルキルアミノ基であり、より更に好ましくは、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）アミノ基である。

【００２４】

式（Ｉ）のX^1～X^3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をあげることができる。また、置換ヒドロカルビル基としては、メトキシメチル基、エトキシメチル基、メトキシエチル基、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。

【００２５】

X^1～X^3のヒドロカルビル基としては、アルキル基が好ましく、炭素原子数が１～４のアルキル基がより好ましく、メチル基又はエチル基が更に好ましい。また、X^1～X^3の置換ヒドロカルビル基としては、アルコキシアルキル基が好ましく、炭素原子数が１～４のアルコキシアルキル基がより好ましい。

【００２６】

X^1～X^3のヒドロカルビル基及び置換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り、より好ましくは、炭素原子数が１～４のアルキル基又は炭素原子数が１～４のアルコキシアルキル基であり、更に好ましくは、炭素原子数が１～４のアルキル基であり、より更に好ましくは、メチル基又はエチル基である。

【００２７】

式（Ｉ）のX^1、X^2及びX^3の少なくとも１つは、式（Ia）で表される基又は水酸基で

ある。好ましくは、X^1、X^2及びX^3の２つ以上が、式（Ia）で表される基又は水酸基であり、より好ましくは、X^1、X^2及びX^3の２つが、式（Ia）で表される基又は水酸基である。

【００２８】

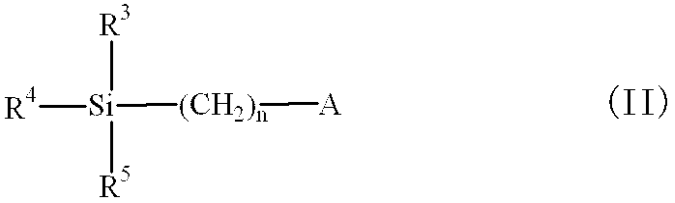
式（Ｉ）で表される構成単位としては、後述の式（III）で表されるビニル化合物に基づく構成単位を例示することができる。好ましくは、X^4、X^5及びX^6の二つが非環状アミノ基である式（III）のビニル化合物に基づく構成単位であり、省燃費性とグリップ性の観点から、より好ましくは、ビス（ジアルキルアミノ）アルキルビニルシランに基づく構成単位であり、更に好ましくは、ビス（ジメチルアミノ）メチルビニルシランに基づく構成単位、ビス（ジエチルアミノ）メチルビニルシランに基づく構成単位、ビス（ジ（ｎ－プロピル）アミノ）メチルビニルシランに基づく構成単位、ビス（ジ（ｎ－ブチル）アミノ）メチルビニルシランに基づく構成単位である。中でも、化合物の入手性の観点からは、ビス（ジエチルアミノ）メチルビニルシランに基づく構成単位、ビス（ジ（ｎ－ブチル）アミノ）メチルビニルシランに基づく構成単位が好ましい。

【００２９】

共役ジエン系重合体中の式（Ｉ）で表される構成単位の含有量は、省燃費性、グリップ性の観点から、重合体単位重量あたり、好ましくは、０．００１ｍｍｏｌ／ｇ重合体以上０．１ｍｍｏｌ／ｇ重合体以下である。より好ましくは、０．００２ｍｍｏｌ／ｇ重合体以上０．０７ｍｍｏｌ／ｇ重合体以下である。更に好ましくは、０．００３ｍｍｏｌ／ｇ重合体以上０．０５ｍｍｏｌ／ｇ重合体以下である。

【００３０】

本発明の共役ジエン系重合体は、下式（II）で表される化合物によって重合体の少なくとも一端が変性されてなる重合体である。



(II)

［式中、ｎは１～１０の整数を表し、R^3、R^4及びR^5は、それぞれ独立に、炭素原子数が１～４のヒドロカルビル基又は炭素原子数が１～４のヒドロカルビルオキシ基を表し、R^3、R^4及びR^5の少なくとも１つがヒドロカルビルオキシ基であり、Ａは窒素原子を有する官能基を表す。］

【００３１】

式（II）のR^3、R^4及びR^5は、それぞれ独立に、炭素原子数が１～４のヒドロカルビル基又は炭素原子数が１～４のヒドロカルビルオキシ基を表し、R^3、R^4及びR^5の少なくとも１つがヒドロカルビルオキシ基である。

【００３２】

R^3、R^4及びR^5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などをあげることができる。また、R^3、R^4及びR^5の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、ｎ－ブトキシ基、ｓｅｃ－ブトキシ基、ｔ－ブトキシ基などのアルコキシ基をあげることができる。

【００３３】

R^3、R^4及びR^5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、炭素原子数が１～３のアルキル基であり、より好ましくは、メチル基、エチル基である。また、R^3、R^4及びR^5のヒドロカルビルオキシ基としては、好ましくは、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、より好ましくは、メトキシ基、エトキシ基である。

【００３４】

R^3、R^4及びR^5としては、省燃費性を高める観点から、好ましくは、R^3、R^4及びR^5の少なくとも２つがヒドロカルビルオキシ基であり、より好ましくは、R^3、R^4及びR^5の３つがヒドロカルビルオキシ基である。

【００３５】

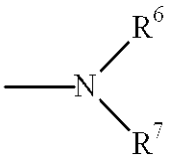
式（II）のｎは１～１０の整数を表す。省燃費性を高める観点から、好ましくは３以上であり、経済性を高める観点から、好ましくは４以下である。特に好ましくは３である。

【００３６】

式（II）のＡは窒素原子を有する官能基であり、アミノ基、イソシアノ基、シアノ基、ピリジル基、ピペリジル基、ピペリジル基、ピラジニル基、モルホリノ基などをあげることができる。

【００３７】

Ａとしては、下式（IIa）で表される基が好ましい。



(IIa)

［式中、R^6及びR^7は、それぞれ独立に、窒素原子、酸素原子及びケイ素原子からなる原子群から選ばれる少なくとも１種の原子を有していてもよい炭素原子数が１～６の基を表し、R^6及びR^7は結合して窒素原子と共に環構造を形成していてもよく、R^6及びR^7は窒素に二重結合で結合する同一の基であってもよい。］

【００３８】

式（IIa）のR^6及びR^7としては、炭素原子数が１～６のヒドロカルビル基、炭素原子数が１～６の置換ヒドロカルビル基、置換シリル基などをあげることができる。

【００３９】

R^6及びR^7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、ｎ－ペンチル基、ネオペンチル基、イソペンチル基、ｎ－ヘキシ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；フェニル基などをあげることができる。

【００４０】

R^6及びR^7の置換ヒドロカルビル基としては、窒素原子を有する基、酸素原子を有する基及びケイ素原子を有する基からなる基群から選ばれる少なくとも１種の基を置換基として有する置換ヒドロカルビル基をあげることができる。窒素原子を有する基を置換基として有する基としては、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、酸素原子を有する基を置換基として有する基としては、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；エポキシ基、テトラヒドロフラニル基などのアルキレンオキシド基；グリシジル基、テトラヒドロフルフリル基などのアルキレンオキシドアルキル基をあげることができ、ケイ素原子を有する基を置換基として有する基としては、トリメチルシリルメチル基などのトリアルキルシリルアルキル基などをあげることができる。

なお、本明細書において、アルキレンオキシド基は、環状エーテル化合物の環から水素原子を除いた一価の基を表す。また、アルキレンオキシドアルキル基は、アルキル基の１つ以上の水素原子がアルキレンオキシド基で置換されている基を表す。

【００４１】

R^6及びR^7の置換シリル基としては、トリメチルシリル基、トリエチルシリル基、ｔ－ブチルジメチルシリル基などのトリアルキルシリル基；トリメトキシシリル基などのトリアルコキシシリル基などをあげることができる。

【００４２】

R^6及びR^7が結合した基としては、窒素原子、酸素原子及びケイ素原子からなる原子群から選ばれる少なくとも１種の原子を有していてもよい炭素原子数が２～１２の２価の基があげられる。例えば、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；オキシジエチレン基、オキシジプロピレン基などのオキシジアルキレン基；－CH_2CH_2－NH－CH_2－で表される基、－CH_2CH_2－N＝CH－で表される基などの含窒素基などをあげることができる。

【００４３】

R^6及びR^7が結合した基としては、含窒素基が好ましく、－CH_2CH_2－NH－CH_2－で表される基、－CH_2CH_2－N＝CH－で表される基がより好ましい。

【００４４】

R^6及びR^7の窒素に二重結合で結合する同一の基としては、窒素原子、酸素原子及びケイ素原子からなる原子群から選ばれる少なくとも１種の原子を有していてもよい炭素原子数が２～１２の２価の基があげられる。例えば、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、１－メチルエチリデン基、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。

【００４５】

R^6及びR^7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、炭素原子数が１～４のアルキル基であり、更に好ましくは、メチル基、エチル基、ｎ－プロピル基、ｎ－ブチル基であり、より更に好ましくは、メチル基、エチル基である。R^6及びR^7の置換ヒドロカルビル基としては、好ましくは、アルコキシアルキル基、アルキレンオキシド基、アルキレンオキシドアルキル基である。R^6及びR^7の置換シリル基としては、好ましくは、トリアルキルシリル基、トリアルコキシシリル基であり、より好ましくは、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、トリエチルシリル基である。

【００４６】

R^6及びR^7としては、好ましくは、R^6及びR^7が結合した含窒素基、アルキル基、アルコキシアルキル基、アルキレンオキシド基、アルキレンオキシドアルキル基、置換シリル基であり、より好ましくは、アルキル基、アルキレンオキシド基、アルキレンオキシドアルキル基、トリアルキルシリル基である。

【００４７】

式（IIa）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。

該非環状アミノ基としては、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、ジ（ネオペンチル）アミノ基、エチルメチルアミノ基などのジアルキルアミノ基；ジ（メトキシメチル）アミノ基、ジ（メトキシエチル）アミノ基、ジ（エトキシメチル）アミノ基、ジ（エトキシエチル）アミノ基などのジ（アルコキシアルキル）アミノ基；ジ（トリメチルシリル）アミノ基、ジ（ｔ－ブチルジメチルシリル）アミノ基などのジ（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。また、ジ（エポキシ）アミノ基、ジ（テトラヒドロフラニル）アミノ基などのジ（アルキレンオキシド）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（アルキレンオキシドアルキル）アミノ基をあげることができる。更には、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などもあげることができる。

なお、本明細書において、ジ（アルキレンオキシド）アミノ基は、窒素原子に結合している２つの水素原子が２つのアルキレンオキシド基に置換されたアミノ基を表し、ジ（アルキレンオキシドアルキル）アミノ基は、窒素原子に結合している２つの水素原子が２つのアルキレンオキシドアルキル基に置換されたアミノ基を表す。

【００４８】

該環状アミノ基としては、１－ピロリジニル基、１－ピペリジノ基、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をあげるこ

とができる。また、環状アミノ基としては、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、モルホリノ基などもあげることができる。

【００４９】

式（IIa）で表される基としては、省燃費性、化合物の長期安定性および入手容易性から、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、ジ（アルキレンオキシド）アミノ基、ジ（アルキレンオキシドアルキル）アミノ基、ジ（トリアルキルシリル）アミノ基である。

【００５０】

式（II）で表される化合物としては、式（IIa）が、ジアルキルアミノ基、ジ（アルコキシアルキル）アミノ基、ジ（アルキレンオキシド）アミノ基、ジ（アルキレンオキシドアルキル）アミノ基、ジ（アルコキシアルキル）アミノ基などの非環状アミノ基である化合物をあげることができる。

【００５１】

式（IIa）がジアルキルアミノ基である化合物としては、
［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－（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；

【００５２】

［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；

【００５３】

［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。

【００５４】

式（IIa）がジ（アルコキシアルキル）アミノ基である化合物としては、
｛３－［ジ（メトキシメチル）アミノ］プロピル｝トリメトキシシラン、

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

【００５５】

{３－［ジ（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－［ジ（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－［ジ（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－［ジ（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－［ジ（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－［ジ（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－［ジ（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－［ジ（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－［ジ（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－［ジ（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－［ジ（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－［ジ（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－［ジ（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－［ジ（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－［ジ（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－［ジ（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－［ジ（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；

【００５６】

{３－［ジ（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－［ジ（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－［ジ（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－［ジ（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－［ジ（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－［ジ（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－［ジ（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－［ジ（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－［ジ（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－［ジ（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－［ジ（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－［ジ（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－［ジ（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－［ジ（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－［ジ（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－［ジ（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－［ジ（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。

【００５７】

式（IIa）がジ（アルキレンオキシド）アミノ基である化合物としては、
{３－［ジ（エポキシ）アミノ］プロピル}トリメトキシシラン、
{３－［ジ（エポキシ）アミノ］プロピル}トリエトキシシラン、
{３－［ジ（エポキシ）アミノ］プロピル}メチルジメトキシシラン、

｛３－［ジ（エポキシ）アミノ］プロピル｝エチルジメトキシシラン、
｛３－［ジ（エポキシ）アミノ］プロピル｝メチルジエトキシシラン、
｛３－［ジ（エポキシ）アミノ］プロピル｝エチルジエトキシシラン、
｛３－［ジ（エポキシ）アミノ］プロピル｝ジメチルメトキシシラン、
｛３－［ジ（エポキシ）アミノ］プロピル｝ジエチルメトキシシラン、
｛３－［ジ（エポキシ）アミノ］プロピル｝ジメチルエトキシシラン、
｛３－［ジ（エポキシ）アミノ］プロピル｝ジエチルエトキシシランなどの
式（IIa）がジ（エポキシ）アミノ基である化合物；

【００５８】

｛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などの
式（IIa）がジ（テトラヒドロフラニル）アミノ基である化合物をあげることができる。

【００５９】

式（IIa）がジ（アルキレンオキシドアルキル）アミノ基である化合物としては、
｛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などの
式（IIa）がジ（グリシジル）アミノ基である化合物；

【００６０】

｛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、
｛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ランなど
の
式（IIa）がジ（テトラヒドロフルフリル）アミノ基である化合物をあげることができる
。

【００６１】

式（IIa）がトリアルキルシリル基である化合物としては、
｛３－［ジ（トリメチルシリル）アミノ］プロピル｝トリメトキシシラン、

｛３－［ジ（ｔ－ブチルジメチルシリル）アミノ］プロピル｝トリメトキシシラン、
｛３－［ジ（トリメチルシリル）アミノ］プロピル｝トリエトキシシラン、
｛３－［ジ（ｔ－ブチルジメチルシリル）アミノ］プロピル｝トリエトキシシランなどの
｛３－［ジ（トリアルキルシリル）アミノ］プロピル｝トリアルコキシシラン；
【００６２】
｛３－［ジ（トリメチルシリル）アミノ］プロピル｝メチルジメトキシシラン、
｛３－［ジ（ｔ－ブチルジメチルシリル）アミノ］プロピル｝メチルジメトキシシラン、
｛３－［ジ（トリメチルシリル）アミノ］プロピル｝メチルジエトキシシラン、
｛３－［ジ（ｔ－ブチルジメチルシリル）アミノ］プロピル｝メチルジエトキシシランなどの
｛３－［ジ（トリアルキルシリル）アミノ］プロピル｝アルキルジアルコキシシラン；
【００６３】
｛３－［ジ（トリメチルシリル）アミノ］プロピル｝ジメチルメトキシシラン、
｛３－［ジ（ｔ－ブチルジメチルシリル）アミノ］プロピル｝ジメチルメトキシシラン、
｛３－［ジ（トリメチルシリル）アミノ］プロピル｝ジメチルエトキシシラン、
｛３－［ジ（ｔ－ブチルジメチルシリル）アミノ］プロピル｝ジメチルエトキシシランなどの
｛３－［ジ（トリアルキルシリル）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。
【００６４】
これらの中では、［３－（ジアルキルアミノ）プロピル］トリアルコキシシランが好ましく、
［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
がより好ましい。
【００６５】
また、式（II）で表される化合物としては、式（IIa）が、１－ピペリジノ基、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－ピペラジニル基、モルホリノ基などの環状アミノ基である化合物をあげることができる。
【００６６】
式（IIa）が１－ピペリジノ基である化合物としては、
３－（１－ピペリジノ）プロピルトリメトキシシラン、
３－（１－ピペリジノ）プロピルトリエトキシシラン、
３－（１－ピペリジノ）プロピルメチルジメトキシシラン、
３－（１－ピペリジノ）プロピルエチルジメトキシシラン、
３－（１－ピペリジノ）プロピルメチルジエトキシシラン、
３－（１－ピペリジノ）プロピルエチルジエトキシシランなどをあげることができる。
【００６７】
式（IIa）が１－ヘキサメチレンイミノ基である化合物としては、
３－（１－ヘキサメチレンイミノ）プロピルトリメトキシシラン、
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ランなどをあげることができる。
【００６８】

式（IIa）が１－イミダゾリル基である化合物としては、
Ｎ－（３－トリメトキシシリルプロピル）イミダゾール、
Ｎ－（３－トリエトキシシリルプロピル）イミダゾールなどをあげることができる。
【００６９】
式（IIa）が４，５－ジヒドロ－１－イミダゾリル基である化合物としては、
Ｎ－（３－トリメトキシシリルプロピル）－４，５－ジヒドロイミダゾール、
Ｎ－（３－トリエトキシシリルプロピル）－４，５－ジヒドロイミダゾールなどをあげることができる。
【００７０】
式（IIa）が１－ピペラジニル基である化合物としては、
３－（１－ピペラジニル）プロピルトリメトキシシラン、
３－（１－ピペラジニル）プロピルトリエトキシシラン、
３－（１－ピペラジニル）プロピルメチルジメトキシシラン、
３－（１－ピペラジニル）プロピルエチルジメトキシシラン、
３－（１－ピペラジニル）プロピルメチルジエトキシシラン、
３－（１－ピペラジニル）プロピルエチルジエトキシシランなどをあげることができる。
【００７１】
式（IIa）がモルホリノ基である化合物としては、
３－モルホリノプロピルトリメトキシシラン、
３－モルホリノプロピルトリエトキシシラン、
３－モルホリノプロピルメチルジメトキシシラン、
３－モルホリノプロピルエチルジメトキシシラン、
３－モルホリノプロピルメチルジエトキシシラン、
３－モルホリノプロピルエチルジエトキシシランなどをあげることができる。
【００７２】
これらの中では、式（IIa）が１－イミダゾリル基である化合物、式（IIa）が４，５－ジヒドロ－１－イミダゾリル基である化合物が好ましく、
Ｎ－（３－トリメトキシシリルプロピル）イミダゾール、
Ｎ－（３－トリエトキシシリルプロピル）イミダゾール、
Ｎ－（３－トリメトキシシリルプロピル）－４，５－ジヒドロイミダゾール、
Ｎ－（３－トリエトキシシリルプロピル）－４，５－ジヒドロイミダゾール
がより好ましい。
【００７３】
本発明の共役ジエン系重合体は、共役ジエンに基づく構成単位（共役ジエン単位）に加え、さらに、他の単量体に基づく構成単位を有していてもよい。該他の単量体としては、芳香族ビニル、ビニルニトリル、不飽和カルボン酸エステルなどがあげられる。芳香族ビニルとしては、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例示することができる。また、ビニルニトリルとしては、アクリロニトリルなどを、不飽和カルボン酸エステルとしては、アクリル酸メチル、アクリル酸エチル、メタアクリル酸メチル、メタアクリル酸エチルなどを例示することができる。これらの中では、芳香族ビニルが好ましく、スチレンがより好ましい。
【００７４】
本発明の共役ジエン系重合体は、強度の観点から、芳香族ビニルに基づく構成単位（芳香族ビニル単位）を有していることが好ましく、芳香族ビニル単位の含有量としては、共役ジエン単位と芳香族ビニル単位との総量を１００重量％として、好ましくは１０重量％以上（共役ジエン単位の含有量は９０重量％以下）であり、より好ましくは１５重量％以上（共役ジエン単位の含有量は８５重量％以下）である。また、省燃費性の観点から、芳香族ビニル単位の含有量は、好ましくは５０重量％以下（共役ジエン単位の含有量は５０重量％以上）であり、より好ましくは４５重量％以下（共役ジエン単位の含有量は５５重

量％以上）である。

【００７５】

本発明の共役ジエン系重合体のムーニー粘度（ML_{1+4}）は、強度の観点から、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、加工性の観点から、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　Ｋ６３００（１９９４）に従って、１００℃にて測定される。

【００７６】

本発明の共役ジエン系重合体のビニル結合量は、共役ジエン単位の含有量を１００モル％として、省燃費性の観点から、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、グリップ性の観点から、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９１０cm^{-1}付近の吸収強度より求められる。

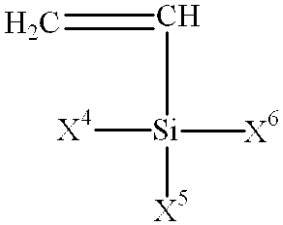
【００７７】

本発明の共役ジエン系重合体の分子量分布は、省燃費性の観点から、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・パーミエイション・クロマトグラフ（ＧＰＣ）法により、数平均分子量（Ｍｎ）および重量平均分子量（Ｍｗ）を測定し、ＭｗをＭｎで除すことにより求められる。

【００７８】

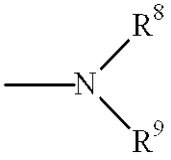
本発明の共役ジエン系重合体の好適な製造方法としては、下記工程Ａ及びＢを有する製造方法をあげることができる。

（工程Ａ）：炭化水素溶媒中で、アルカリ金属触媒により、共役ジエンと下式（III）で表されるビニル化合物とを含む単量体を重合させ、共役ジエンに基づく単量体単位と下式（III）で表されるビニル化合物に基づく単量体単位とを有する重合体鎖の少なくとも一端に、該触媒由来のアルカリ金属を有する重合体を得る工程。



(III)

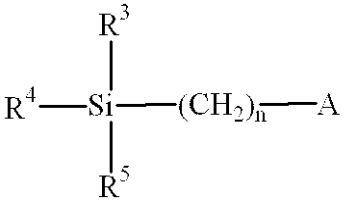
［式中、X^4、X^5及びX^6は、それぞれ独立に、下式（IIIa）で表される基、ヒドロカルビル基又は置換ヒドロカルビル基を表し、X^4、X^5及びX^6の少なくとも１つが、下式（IIIa）で表される基である。］



(IIIa)

［式中、R^8及びR^9は、それぞれ独立に、炭素原子数が１～６のヒドロカルビル基、炭素原子数が１～６の置換ヒドロカルビル基、シリル基又は置換シリル基を表し、R^8及びR^9は結合して窒素原子と共に環構造を形成していてもよい。］

（工程Ｂ）：工程Ａで得られた重合体と下式（II）で表される化合物とを反応させる工程。



(II)

［式中、ｎは１～１０の整数を表し、R^3、R^4及びR^5は、それぞれ独立に、炭素原子数が１～４のヒドロカルビル基又は炭素原子数が１～４のヒドロカルビルオキシ基を表し、R^3、R^4及びR^5の少なくとも１つがヒドロカルビルオキシ基であり、Ａは窒素原子を有する官能基を表す。］

【００７９】

（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、ｉｓｏ－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。これらの中でも、有機リチウム化合物又は有機ナトリウム化合物が好ましく、炭素原子数が２～２０の有機リチウム化合物又は有機ナトリウム化合物がより好ましい。

【００８０】

（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、ｉｓｏ－ブタン、ｎ－ペンタン、ｉｓｏ－ペンタン、ｎ－ヘキサン、プロペン、１－ブテン、ｉｓｏ－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。これらは単独で、あるいは２種以上組み合わせて用いられる。これらの中では、炭素原子数が２～１２の炭化水素が好ましい。

【００８１】

（工程Ａ）では、共役ジエンと式（III）で表されるビニル化合物とを含む単量体を重合させ、上述のアルカリ金属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、これらは単独で、あるいは２種以上組み合わせて用いられる。中でも、入手容易性の観点から、１，３－ブタジエン、イソプレンが好ましい。

【００８２】

式（III）のX^4、X^5及びX^6は、それぞれ独立に、式（IIIa）で表される基、ヒドロカルビル基又は置換ヒドロカルビル基を表し、X^4、X^5及びX^6の少なくとも１つは、式（IIIa）で表される基である。

【００８３】

式（IIIa）のR^8及びR^9は、それぞれ独立に、炭素原子数が１～６のヒドロカルビル基、炭素原子数が１～６の置換ヒドロカルビル基、シリル基又は置換シリル基を表し、R^8及びR^9は結合して窒素原子と共に環構造を形成していてもよい。

【００８４】

R^8及びR^9の炭素原子数が１～６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、ｎ－ペンチル基、ネオペンチル基、イソペンチル基、ｎ－ヘキシ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；フェニル基などをあげることができる。

【００８５】

R^8及びR^9の炭素原子数が１～６の置換ヒドロカルビル基としては、窒素原子を有する基、酸素原子を有する基及びケイ素原子を有する基からなる基群から選ばれる少なくとも１種の基を置換基として有する置換ヒドロカルビル基をあげることができる。窒素原子を有する基を置換基として有する基としては、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、酸素原子を有する基を置換基として有する基としては、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、ケイ素原子を有する基を置換基として有する基としては、トリメチルシリルメチル基などのトリアルキルシリルアルキル基などをあげることができる。

【００８６】

R^8及びR^9の置換シリル基としては、トリメチルシリル基、トリエチルシリル基、ｔ－ブチルジメチルシリル基などのトリアルキルシリル基などをあげることができる。

【００８７】

R^8及びR^9が結合した基としては、窒素原子、酸素原子及びケイ素原子からなる原子群から選ばれる少なくとも１種の原子を有していてもよい炭素原子数が１～１２の２価の基があげられる。例えば、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；オキシジエチレン基、オキシジプロピレン基などのオキシジアルキレン基；$-CH_2CH_2-NH-CH_2-$で表される基、$-CH_2CH_2-N=CH-$で表される基などの含窒素基などをあげることができる。

【００８８】

R^8及びR^9が結合した基としては、含窒素基が好ましく、$-CH_2CH_2-NH-CH_2-$で表される基、$-CH_2CH_2-N=CH-$で表される基がより好ましい。

【００８９】

R^8及びR^9のヒドロカルビル基としては、アルキル基が好ましく、炭素原子数が１～４のアルキル基がより好ましく、メチル基、エチル基、ｎ－プロピル基、ｎ－ブチル基が更に好ましく、エチル基、ｎ－ブチル基が特に好ましい。R^8及びR^9の置換ヒドロカルビル基としては、アルコキシアルキル基が好ましく、炭素原子数が１～４のアルコキシアルキル基がより好ましい。R^8及びR^9の置換シリル基としては、トリアルキルシリル基が好ましく、トリメチルシリル基がより好ましい。

【００９０】

R^8及びR^9としては、好ましくは、アルキル基、アルコキシアルキル基、置換シリル基又はR^8及びR^9が結合した含窒素基であり、より好ましくは、アルキル基であり、更に好ましくは、炭素原子数が１～４のアルキル基であり、より更に好ましくは、メチル基、エチル基、ｎ－プロピル基、ｎ－ブチル基である。

【００９１】

式（IIIa）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。

該非環状アミノ基としては、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、ジ（ネオペンチル）アミノ基、エチルメチルアミノ基などのジアルキルアミノ基；ジ（メトキシメチル）アミノ基、ジ（メトキシエチル）アミノ基、ジ（エトキシメチル）アミノ基、ジ（エトキシエチル）アミノ基などのジ（アルコキシアルキル）アミノ基；ジ（トリメチルシリル）アミノ基、ジ（ｔ－ブチルジメチルシリル）アミノ基などのジ（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。

【００９２】

該環状アミノ基としては、１－ピロリジニル基、１－ピペリジノ基、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をあげることができる。また、環状アミノ基としては、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、モルホリノ基などもあげることができる。

【００９３】

式（IIIa）で表される基としては、経済性および入手容易性から、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り、更に好ましくは、炭素原子数が１～４のアルキル基で置換されたジアルキルアミノ基であり、より更に好ましくは、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）アミノ基である。

【００９４】

式（III）のX^4～X^6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をあげることができる。また、置換ヒドロカルビル基としては、メトキシメチル基、エトキシメチル基、メトキシエチル基、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。

【００９５】

X^4～X^6のヒドロカルビル基としては、アルキル基が好ましく、炭素原子数が１～４のアルキル基がより好ましく、メチル基又はエチル基が更に好ましい。また、X^4～X^6の置換ヒドロカルビル基としては、アルコキシアルキル基が好ましく、炭素原子数が１～４のアルコキシアルキル基がより好ましい。

【００９６】

X^4～X^6のヒドロカルビル基及び置換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り、より好ましくは、炭素原子数が１～４のアルキル基又は炭素原子数が１～４のアルコキシアルキル基であり、更に好ましくは、炭素原子数が１～４のアルキル基であり、より更に好ましくは、メチル基又はエチル基である。

【００９７】

式（III）のX^4、X^5及びX^6の少なくとも１つは、式（IIIa）で表される基である。好ましくは、X^4、X^5及びX^6の２つ以上が、式（IIIa）で表される基であり、より好ましくは、X^4、X^5及びX^6の２つが、式（IIIa）で表される基である。

【００９８】

（工程Ａ）で用いられる式（III）で表されるビニル化合物としては、X^4～X^6の一つが式（IIIa）で表される非環状アミノ基であり、二つがヒドロカルビル基または置換ヒドロカルビル基である化合物として、（ジアルキルアミノ）ジアルキルビニルシラン、｛ジ（トリアルキルシリル）アミノ｝ジアルキルビニルシラン、（ジアルキルアミノ）ジアルコキシアルキルビニルシランなどをあげることができる。

（ジアルキルアミノ）ジアルキルビニルシランとしては、（ジメチルアミノ）ジメチルビニルシラン、（エチルメチルアミノ）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、（エチル－ｎ－プロピルアミノ）ジメチルビニルシラン、（エチルイソプロピルアミノ）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、（ジイソプロピルアミノ）ジメチルビニルシラン、（ｎ－ブチル－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、（エチルメチルアミノ）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、（エチル－ｎ－プロピルアミノ）ジエチルビニルシラン、（エチルイソプロピルアミノ）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、（ジイソプロピルアミノ）ジエチルビニルシラン、（ｎ－ブチル－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、

（ジメチルアミノ）ジプロピルビニルシラン、（エチルメチルアミノ）ジプロピルビニルシラン、（ジエチルアミノ）ジプロピルビニルシラン、（エチル－ｎ－プロピルアミノ）ジプロピルビニルシラン、（エチルイソプロピルアミノ）ジプロピルビニルシラン、（ジ（ｎ－プロピル）アミノ）ジプロピルビニルシラン、（ジイソプロピルアミノ）ジプロピルビニルシラン、（ｎ－ブチル－ｎ－プロピルアミノ）ジプロピルビニルシラン、（ジ（ｎ－ブチル）アミノ）ジプロピルビニルシラン、
（ジメチルアミノ）ジブチルビニルシラン、（エチルメチルアミノ）ジブチルビニルシラン、（ジエチルアミノ）ジブチルビニルシラン、（エチル－ｎ－プロピルアミノ）ジブチルビニルシラン、（エチルイソプロピルアミノ）ジブチルビニルシラン、（ジ（ｎ－プロピル）アミノ）ジブチルビニルシラン、（ジイソプロピルアミノ）ジブチルビニルシラン、（ｎ－ブチル－ｎ－プロピルアミノ）ジブチルビニルシラン、（ジ（ｎ－ブチル）アミノ）ジブチルビニルシランなどをあげることができる。

｛ジ（トリアルキルシリル）アミノ｝ジアルキルビニルシランとしては、｛ジ（トリメチルシリル）アミノ｝ジメチルビニルシラン、｛ジ（ｔ－ブチルジメチルシリル）アミノ｝ジメチルビニルシラン、｛ジ（トリメチルシリル）アミノ｝ジエチルビニルシラン、｛ジ（ｔ－ブチルジメチルシリル）アミノ｝ジエチルビニルシランなどをあげることができる。

（ジアルキルアミノ）ジアルコキシアルキルビニルシランとしては、（ジメチルアミノ）ジメトキシメチルビニルシラン、（ジメチルアミノ）ジメトキシエチルビニルシラン、（ジメチルアミノ）ジエトキシメチルビニルシラン、（ジメチルアミノ）ジエトキシエチルビニルシラン、（ジエチルアミノ）ジメトキシメチルビニルシラン、（ジエチルアミノ）ジメトキシエチルビニルシラン、（ジエチルアミノ）ジエトキシメチルビニルシラン、（ジエチルアミノ）ジエトキシエチルビニルシランなどをあげることができる。

【００９９】

X^4～X^6の二つが式（IIIa）で表される非環状アミノ基であり、一つがヒドロカルビル基または置換ヒドロカルビル基である化合物として、ビス（ジアルキルアミノ）アルキルビニルシラン、ビス｛ジ（トリアルキルシリル）アミノ｝アルキルビニルシラン、ビス（ジアルキルアミノ）アルコキシアルキルビニルシランなどをあげることができる。

ビス（ジアルキルアミノ）アルキルビニルシランとしては、ビス（ジメチルアミノ）メチルビニルシラン、ビス（エチルメチルアミノ）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（エチル－ｎ－プロピルアミノ）メチルビニルシラン、ビス（エチルイソプロピルアミノ）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（ジイソプロピルアミノ）メチルビニルシラン、ビス（ｎ－ブチル－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（エチルメチルアミノ）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（エチル－ｎ－プロピルアミノ）エチルビニルシラン、ビス（エチルイソプロピルアミノ）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（ジイソプロピルアミノ）エチルビニルシラン、ビス（ｎ－ブチル－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、
ビス（ジメチルアミノ）プロピルビニルシラン、ビス（エチルメチルアミノ）プロピルビニルシラン、ビス（ジエチルアミノ）プロピルビニルシラン、ビス（エチル－ｎ－プロピルアミノ）プロピルビニルシラン、ビス（エチルイソプロピルアミノ）プロピルビニルシラン、ビス（ジ（ｎ－プロピル）アミノ）プロピルビニルシラン、ビス（ジイソプロピルアミノ）プロピルビニルシラン、ビス（ｎ－ブチル－ｎ－プロピルアミノ）プロピルビニルシラン、ビス（ジ（ｎ－ブチル）アミノ）プロピルビニルシラン、
ビス（ジメチルアミノ）ブチルビニルシラン、ビス（エチルメチルアミノ）ブチルビニルシラン、ビス（ジエチルアミノ）ブチルビニルシラン、ビス（エチル－ｎ－プロピルアミノ）ブチルビニルシラン、ビス（エチルイソプロピルアミノ）ブチルビニルシラン、ビス

（ジ（ｎ－プロピル）アミノ）ブチルビニルシラン、ビス（ジイソプロピルアミノ）ブチルビニルシラン、ビス（ｎ－ブチル－ｎ－プロピルアミノ）ブチルビニルシラン、ビス（ジ（ｎ－ブチル）アミノ）ブチルビニルシランなどをあげることができる。

ビス｛ジ（トリアルキルシリル）アミノ｝アルキルビニルシランとしては、ビス｛ジ（トリメチルシリル）アミノ｝メチルビニルシラン、ビス｛ジ（ｔ－ブチルジメチルシリル）アミノ｝メチルビニルシラン、ビス｛ジ（トリメチルシリル）アミノ｝エチルビニルシラン、ビス｛ジ（ｔ－ブチルジメチルシリル）アミノ｝エチルビニルシランなどをあげることができる。

ビス（ジアルキルアミノ）アルコキシアルキルビニルシランとしては、ビス（ジメチルアミノ）メトキシメチルビニルシラン、ビス（ジメチルアミノ）メトキシエチルビニルシラン、ビス（ジメチルアミノ）エトキシメチルビニルシラン、ビス（ジメチルアミノ）エトキシエチルビニルシラン、

ビス（ジエチルアミノ）メトキシメチルビニルシラン、ビス（ジエチルアミノ）メトキシエチルビニルシラン、ビス（ジエチルアミノ）エトキシメチルビニルシラン、ビス（ジエチルアミノ）エトキシエチルビニルシランなどをあげることができる。

【０１００】

X^4～X^6の三つが式（IIIa）で表される非環状アミノ基である化合物として、トリ（ジアルキルアミノ）ビニルシランなどをあげることができる。

例えば、トリ（ジメチルアミノ）ビニルシラン、トリ（エチルメチルアミノ）ビニルシラン、トリ（ジエチルアミノ）ビニルシラン、トリ（エチルプロピルアミノ）ビニルシラン、トリ（ジプロピルアミノ）ビニルシラン、トリ（ブチルプロピルアミノ）ビニルシランなどをあげることができる。

【０１０１】

X^4～X^6の二つが式（IIIa）で表される環状アミノ基であり、一つがヒドロカルビル基または置換ヒドロカルビル基である化合物として、ビス（モルホリノ）メチルビニルシラン、ビス（ピペリジノ）メチルビニルシラン、ビス（４，５－ジヒドロイミダゾリル）メチルビニルシラン、ビス（ヘキサメチレンイミノ）メチルビニルシランなどをあげることができる。

【０１０２】

X^4、X^5及びX^6の二つが式（IIIa）で表される基である式（III）で表されるビニル化合物として、好ましくは、X^4、X^5及びX^6の二つが非環状アミノ基であるビニル化合物であり、省燃費性とグリップ性の観点から、より好ましくは、ビス（ジアルキルアミノ）アルキルビニルシランであり、更に好ましくは、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（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である。中でも、化合物の入手性の観点からは、ビス（ジエチルアミノ）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が好ましい。

【０１０３】

（工程Ａ）では、共役ジエンと式（III）で表されるビニル化合物とに、他の単量体とを組み合わせて重合を行ってもよい。他の単量体としては、芳香族ビニル、ビニルニトリル、不飽和カルボン酸エステルなどがあげられる。芳香族ビニルとしては、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例示することができる。また、ビニルニトリルとしては、アクリロニトリルなどを、不飽和カルボン酸エステルとしては、アクリル酸メチル、アクリル酸エチル、メタアクリル酸メチル、メタアクリル酸エチルなどを例示することができる。これらの中では、芳香族ビニルが好ましく、スチレンがより好ましい。

【０１０４】

（工程Ａ）の重合は、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構成単位の分布を調整する剤（以下、総称して「調整剤」と記す。）など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。これらは単独で用いても、２種類以上を組み合わせて用いてもよい。

【０１０５】

（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。さらに好ましくは５０～８０℃である。重合時間は、通常１０分～５時間である。

【０１０６】

（工程Ｂ）において、工程Ａで調製された重合体に接触させる式（II）で表される化合物の量は、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。

【０１０７】

（工程Ｂ）において、工程Ａで調製された重合体と式（II）で表される化合物とを接触させる温度は、通常２５～１００℃であり、好ましくは３５～９０℃である。さらに好ましくは５０～８０℃である。接触させる時間は、通常、６０秒～５時間であり、好ましくは５分～１時間であり、より好ましくは１５分～１時間である。

【０１０８】

本発明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において、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、下式（IV）で表される化合物をあげることができる。

$$R^{10}{}_aML_{4-a} \qquad (IV)$$

（式中、R^{10}はアルキル基、アルケニル基、シクロアルケニル基または芳香族残基を表し、Ｍはケイ素原子またはスズ原子を表し、Ｌはハロゲン原子また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。）

ここで、芳香族残基は、芳香族炭化水素から芳香環に結合している水素を除いた一価の基を表す。

【０１０９】

式（IV）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。

【０１１０】

カップリング剤の添加量は、アルカリ金属触媒由来のアルカリ金属１モル当たり、共役ジエン系重合体の加工性の観点から、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、省燃費性の観点から、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。

【０１１１】

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。

【０１１２】

また、本発明の共役ジエン系重合体の製造方法においては、加水分解などにより、重合体の式（Ia）で表される基を水酸基に置換させる処理を行ってもよい。該処理は、重合体単独の状態で行ってもよく、後述のような組成物の状態で行ってもよい。

【０１１３】

本発明の共役ジエン系重合体は、他の重合体成分や添加剤などを配合して、共役ジエン系重合体組成物にして用いることができる。

【０１１４】

他の重合体成分としては、従来のスチレン－ブタジエン共重合体ゴム、ポリブタジエンゴム、ブタジエン－イソプレン共重合体ゴム、ブチルゴムなどをあげることができる。また、天然ゴム、エチレン－プロピレン共重合体、エチレン－オクテン共重合体などもあげることができる。これらの重合体成分は、２種以上組み合わせて用いてもよい。

【０１１５】

本発明の共役ジエン系重合体に他の重合体成分を配合する場合、本発明の共役ジエン系重合体の配合量は、省燃費性の観点から、重合体成分の総配合量（共役ジエン系重合体の配合量含む）を１００重量部として、好ましくは１０重量部以上であり、より好ましくは２０重量部以上である。

【０１１６】

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；有機過酸化物；シリカ、カーボンブラック、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。

【０１１７】

上記シリカとしては、乾式シリカ（無水ケイ酸）、湿式シリカ（含水ケイ酸）、コロイダルシリカ、沈降シリカ、ケイ酸カルシウム、ケイ酸アルミニウムなどをあげることができる。これらは１種または２種以上組み合わせて用いることができる。シリカのＢＥＴ比表面積は、通常、５０～２５０m^2／ｇである。該ＢＥＴ比表面積は、ＡＳＴＭ　Ｄ１９９３－０３に従って測定される。市販品としては、東ソー・シリカ社製　商品名　ＶＮ３、ＡＱ、ＥＲ、ＲＳ－１５０、Ｒｈｏｄｉａ社製　商品名　Ｚｅｏｓｉｌ　１１１５ＭＰ、１１６５ＭＰ等を用いることができる。

【０１１８】

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種または２種以上組み合わせて用いることができる。

カーボンブラックの窒素吸着比表面積（N_2ＳＡ）は、通常、５～２００m^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、通常、５～３００ｍｌ／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、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、Ｄｅ

ｇｕｓｓａ社製　商品名　ＣＫ　３、Ｓｐｅｃｉａｌ　Ｂｌａｃｋ　４Ａ等を用いることができる。

【０１１９】

上記シランカップリング剤としては、ビニルトリクロルシラン、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種または２種以上組み合わせて用いることができる。市販品としては、Ｄｅｇｕｓｓａ社製　商品名　Ｓｉ６９、Ｓｉ７５等を用いることができる。

【０１２０】

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０．８５０～０．８９９）、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重量％未満であり、より好ましくは１重量％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重量％以上である。これらの伸展油は、２種以上組み合わされて用いられてもよい。

【０１２１】

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等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等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－ｔ－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等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等のグアニジン系加硫促進剤をあげることができ、その使用量は、ゴム成分１００重量部に対して０．１～５重量部が好ましく、さらに好ましくは０．２～３重量部である。

【０１２２】

本発明の共役ジエン系重合体に充填剤を配合した共役ジエン系重合体組成物とする場合、充填剤の配合量は、本発明の共役ジエン系重合体の配合量を１００重量部あたり、通常１０～１５０重量部である。また、該配合量は、耐摩耗性および強度の観点から、好ましくは２０重量部以上であり、より好ましくは３０重量部以上である。また、補強性を高める観点から、好ましくは１２０重量部以下であり、より好ましくは１００重量部以下である。

【０１２３】

本発明の共役ジエン系重合体に充填剤を配合した共役ジエン系重合体組成物を用いる場合、省燃費性の観点から、充填剤として、シリカを用いることが好ましい。シリカの配合量としては、充填剤の総配合量を１００重量部として、好ましくは５０重量部以上であり、より好ましくは７０重量部以上である。

【０１２４】

本発明の共役ジエン系重合体に、他の重合体成分や添加剤などを配合して共役ジエン系

重合体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。

【０１２５】

混練条件としては、加硫剤およ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。

【０１２６】

本発明の共役ジエン系重合体、共役ジエン系重合体組成物は、省燃費性に優れる。また、グリップ性も良好である。

【０１２７】

本発明の共役ジエン系重合体、共役ジエン系重合体組成物は、タイヤ、靴底、床材、防振材などに用いられ、特に、タイヤに好適に用いられる。

【実施例】

【０１２８】

以下、実施例によって本発明を説明する。

物性評価は次の方法で行った。

【０１２９】

１．ムーニー粘度（ML_{1+4}）

ＪＩＳ　Ｋ６３００（１９９４）に従って、１００℃にて重合体のムーニー粘度を測定した。

【０１３０】

２．ビニル結合量（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９１０ｃｍ$^{-1}$付近の吸収強度より重合体のビニル結合量を求めた。

【０１３１】

３．スチレン単位の含量（単位：重量％）

ＪＩＳ　Ｋ６３８３（１９９５）に従って、屈折率から重合体のスチレン単位の含量を求めた。

【０１３２】

４．分子量分布（Ｍｗ／Ｍｎ）

下記の条件(1)～(8)でゲル・パーミエイション・クロマトグラフ（ＧＰＣ）法により、重量平均分子量（Ｍｗ）と数平均分子量（Ｍｎ）を測定し、重合体の分子量分布（Ｍｗ／Ｍｎ）を求めた。

(1)装置：東ソー社製ＨＬＣ－８０２０

(2)分離カラム：東ソー社製ＧＭＨ－ＸＬ（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：０．６ｍＬ／分

(6)注入量：５μＬ

(7)検出器：示差屈折

(8)分子量標準：標準ポリスチレン

【０１３３】

５．省燃費性

シート状の加硫成形体から幅１ｍｍまたは２ｍｍ、長さ４０ｍｍの短冊上試験片を打ち抜き、試験に供した。測定は、粘弾性測定装置（上島製作所社製）によって、歪み１％及び周波数１０Ｈｚの条件下で、温度７０℃での試験片の損失正接（ｔａｎδ(70℃)）を測定した。この値が小さいほど、省燃費性に優れる。

【０１３４】
実施例１
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、ヘキサン（比重０．６８ｇ/ｃｍ^3）１０．２ｋｇ、１，３－ブタジエン５４７ｇ、スチレン１７３ｇ、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５．０ｍｌを重合反応容器内に投入した。次に、ビス（ジエチルアミノ）メチルビニルシラン１１．１ｍｍｏｌおよびｎ－ブチルリチウム１３．１ｍｍｏｌを、それぞれ、シクロヘキサン溶液およびｎ－ヘキサン溶液として投入し、重合を開始した。
撹拌速度を１３０ｒｐｍ、重合反応器内温度を６５℃とし、単量体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を３時間行った。全重合での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、得られた重合体溶液を１３０ｒｐｍの撹拌速度で撹拌し、３－ジエチルアミノプロピルトリエトキシシラン１１．１ｍｍｏｌを添加し、１５分間撹拌した。重合体溶液にメタノール０．５４ｍｌを含むヘキサン溶液２０ｍｌを加えて、更に重合体溶液を５分間撹拌した。
【０１３５】
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（住友化学社製、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）（住友化学社製、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、重合体を得た。重合体の評価結果を表１に示す。なお、重合反応器内への原料の投入量及び供給量から計算したビス（ジエチルアミノ）メチルビニルシラン単位の含有量は、重合体単位重量あたり０．００６ｍｍｏｌ／ｇ重合体であった。
【０１３６】
得られた重合体１００重量部、シリカ（デグッサ社製、商品名：ウルトラシルＶＮ３－Ｇ）７８．４重量部、シランカップリング剤（デグッサ社製、商品名：Ｓｉ６９）６．４重量部、カーボンブラック（三菱化学社製、商品名：ダイヤブラックＮ３３９）６．４重量部、伸展油（共同石油社製、商品名：Ｘ－１４０）４７．６重量部、老化防止剤（住友化学社製、商品名：アンチゲン３Ｃ）１．５重量部、ステアリン酸２重量部、亜鉛華２重量部、加硫促進剤（住友化学社製、商品名：ソクシノールＣＺ）１重量部、加硫促進剤（住友化学社製、商品名：ソクシノールＤ）１重量部、ワックス（大内新興化学工業社製、商品名：サンノックＮ）１．５重量部、硫黄１．４重量部を、ラボプラストミルにて混練して、重合体組成物を調整した。得られた重合体組成物を６インチロールでシートに成形し、該シートを１６０℃で４５分加熱して加硫させ、加硫シートを調製した。加硫シートの物性評価結果を表１に示す。
【０１３７】
比較例１
内容積５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、ヘキサン（比重０．６８ｇ/ｃｍ^3）２．５５ｋｇ、１，３－ブタジエン１３７ｇ、スチレン４３ｇ、テトラヒドロフラン１．５ｍｌ、エチレングリコールジエチルエーテル１．２ｍｌを重合反応容器内に投入した。次に、ｎ－ブチルリチウム３．６ｍｍｏｌをｎ－ヘキサン溶液として投入し、１，３－ブタジエンとスチレンの共重合を２．５時間行った。重合中、撹拌速度を１３０ｒｐｍ、重合反応器内温度を６５℃とし、単量体を重合反応容器内に連続的に供給した。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。
該２．５時間の重合後、ビス（ジエチルアミノ）メチルビニルシラン２．８ｍｍｏｌをシクロヘキサン溶液として、撹拌速度１３０ｒｐｍ、重合反応器内温度６５℃の条件下で、重合反応器内に投入し３０分撹拌した。
次に、メタノール０．１４ｍｌを含むヘキサン溶液２０ｍｌを重合反応器内に投入し、

重合体溶液を５分間撹拌した。

【０１３８】

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（住友化学社製、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）（住友化学社製、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、重合体を得た。重合体の評価結果を表１に示す。なお、重合反応器内への原料の投入量及び供給量から計算したビス（ジエチルアミノ）メチルビニルシラン単位の含有量は、重合体単位重量あたり０．００６ｍｍｏｌ／ｇ重合体であった。

【０１３９】

得られた重合体１００重量部、シリカ（デグッサ社製、商品名：ウルトラシルＶＮ３－Ｇ）７８．４重量部、シランカップリング剤（デグッサ社製、商品名：Ｓｉ６９）６．４重量部、カーボンブラック（三菱化学社製、商品名：ダイヤブラックＮ３３９）６．４重量部、伸展油（共同石油社製、商品名：Ｘ－１４０）４７．６重量部、老化防止剤（住友化学社製、商品名：アンチゲン３Ｃ）１．５重量部、ステアリン酸２重量部、亜鉛華２重量部、加硫促進剤（住友化学社製、商品名：ソクシノールＣＺ）１重量部、加硫促進剤（住友化学社製、商品名：ソクシノールＤ）１重量部、ワックス（大内新興化学工業社製、商品名：サンノックＮ）１．５重量部、硫黄１．４重量部を、ラボプラストミルにて混練して、重合体組成物を調整した。得られた重合体組成物を６インチロールでシートに成形し、該シートを１６０℃で４５分加熱して加硫させ、加硫シートを調製した。加硫シートの物性評価結果を表１に示す。

【０１４０】

【表１】

		実施例 1	比較例 1
ムーニー粘度	－	45	38
ビニル結合量	%	59	59
スチレン単位の含量	重量%	25	25
分子量分布	－	1.23	1.14
省燃費性 ｔａｎδ(70℃)	－	0.119	0.197

フロントページの続き

(56)参考文献 特開平０１－２１７０１１（ＪＰ，Ａ）
特開２００５－２９０３５５（ＪＰ，Ａ）
特開２００１－１５８８３４（ＪＰ，Ａ）
特開昭６３－１６８４０２（ＪＰ，Ａ）

(58)調査した分野(Int.Cl.，ＤＢ名)
Ｃ０８Ｆ　　８／００－８／５０
Ｃ０８Ｋ　　３／００－３／４０
Ｃ０８Ｌ　１５／００－１５／０２