(19)日本国特許庁(JP)　(12)公開特許公報(A)　(11)特許出願公開番号
特開2013-256609
(P2013-256609A)
(43)公開日　平成25年12月26日(2013.12.26)

(51)Int.Cl.			F I			テーマコード（参考）
C08L	15/00	(2006.01)	C08L	15/00		4J002
C08K	3/36	(2006.01)	C08K	3/36		4J100
C08F	8/00	(2006.01)	C08F	8/00		
B60C	1/00	(2006.01)	B60C	1/00	A	
			B60C	1/00	Z	

審査請求 未請求　請求項の数 9　ＯＬ　（全 70 頁）

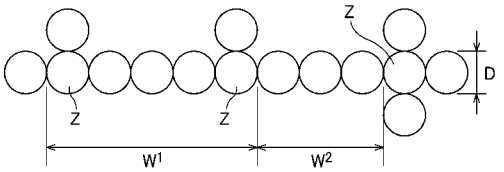
(21)出願番号　特願2012-134168 (P2012-134168)
(22)出願日　平成24年6月13日 (2012.6.13)

(71)出願人　000183233
住友ゴム工業株式会社
兵庫県神戸市中央区脇浜町３丁目６番９号
(74)代理人　110000914
特許業務法人　安富国際特許事務所
(72)発明者　廣　真誉
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

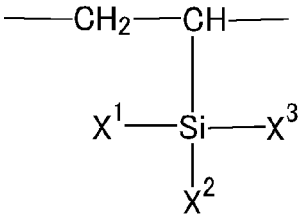
Ｆターム(参考)　4J002 AC111 DJ016 FD016 GN01
4J100 AP16Q AS02P AS03P AS04P BA31Q CA04 CA31 DA01 HA35 HC50 HC77 HC78 HE14 JA29

(54)【発明の名称】トラック・バスタイヤ用ゴム組成物及びトラック・バスタイヤ

(57)【要約】　（修正有）
【課題】低燃費性、耐摩耗性及びゴム強度をバランス良く改善できるトラック・バスタイヤ用ゴム組成物、及びそれを用いて作製したトラック・バスタイヤを提供する。
【解決手段】ゴム成分及びシリカを含有し、上記ゴム成分１００質量%のうち、共役ジエンに基づく構成単位と置換基含有ビニルシランに基づく構成単位とを有し、特定の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の含有量が５質量%以上であり、上記シリカが、１つの粒子に対して隣接する粒子が３つ以上の粒子を分岐粒子Ｚとしたとき、分岐粒子Ｚを含む分岐粒子間Ｚ－Ｚの平均長W^1が３０～４００ｎｍのものであり、上記ゴム成分１００質量部に対する上記シリカの含有量が５～１５０質量部であるトラック・バスタイヤ用ゴム組成物に関する。
【選択図】図２

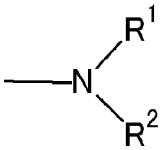


【特許請求の範囲】
【請求項１】
ゴム成分及びシリカを含有し、
前記ゴム成分１００質量％のうち、共役ジエンに基づく構成単位と下式（Ｉ）で表される構成単位とを有し、下式（ＩＩ）で表される化合物、下式（ＩＩＩ）で表される基を有する化合物、下式（ＩＶ）で表される化合物、下式（Ｖ）で表される基及び／又は下式（ＶＩ）で表される基を有するケイ素化合物、並びに下式（ＶＩＩ）で表される基を有する化合物からなる群より選択される少なくとも１種の化合物によって重合体の少なくとも一端が変性されてなる共役ジエン系重合体の含有量が５質量％以上であり、
前記シリカが、１つの粒子に対して隣接する粒子が３つ以上の粒子を分岐粒子Ｚとしたとき、分岐粒子Ｚを含む分岐粒子間Ｚ－Ｚの平均長W^1が３０～４００ｎｍのものであり、
前記ゴム成分１００質量部に対する前記シリカの含有量が５～１５０質量部であることを特徴とするトラック・バスタイヤ用ゴム組成物。
【化１】



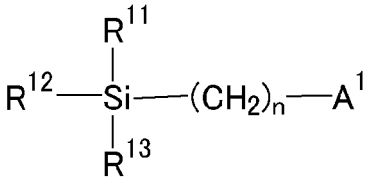
(I)

［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。］
【化２】



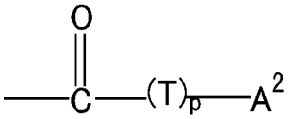
(Ia)

［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。］
【化３】



(II)

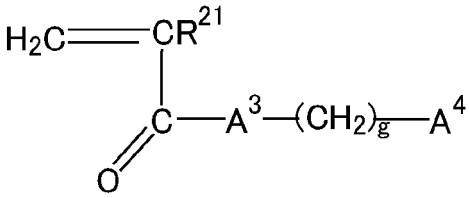
［式中、ｎは１～１０の整数を表し、R^{11}、R^{12}及びR^{13}は、それぞれ独立に、炭素原子数が１～４のヒドロカルビル基又は炭素原子数が１～４のヒドロカルビルオキシ基を表し、R^{11}、R^{12}及びR^{13}の少なくとも１つがヒドロカルビルオキシ基であり、A^1は窒素原子を有する官能基を表す。］
【化４】



(III)

［式中、ｐは０又は１の整数を表し、Ｔは、炭素原子数が１～２０のヒドロカルビレン基又は炭素原子数が１～２０の置換ヒドロカルビレン基を表し、A^2は窒素原子を有する官能基を表す。］

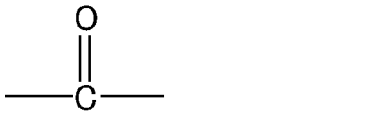
【化５】



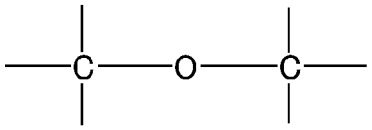
(IV)

［式中、ｇは、１～１０の整数を表し、Ｒ^{21}は、水素原子、炭素原子数が１～６のヒドロカルビル基又は炭素原子数が１～６の置換ヒドロカルビル基を表し、Ａ^{3}は、酸素原子又は－ＮＲ^{22}－基（Ｒ^{22}は、水素原子又は炭素原子数が１～１０のヒドロカルビル基を表す。）を表し、Ａ^{4}は、窒素原子及び／又は酸素原子を有する官能基を表す。］

【化６】

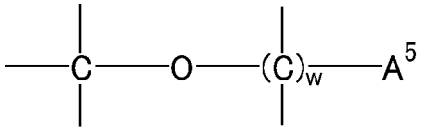


(V)



(VI)

【化７】



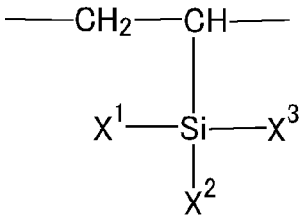
(VII)

［式中、ｗは１～１１の整数を表し、Ａ^{5}は窒素原子を有する官能基を表す。］

【請求項２】

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し、下式（ＩＩ）で表される化合物、下式（ＩＩＩ）で表される基を有する化合物、下式（ＩＶ）で表される化合物、下式（Ｖ）で表される基及び／又は下式（ＶＩ）で表される基を有するケイ素化合物、並びに下式（ＶＩＩ）で表される基を有する化合物からなる群より選択される少なくとも１種の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と、シリカゾルとを混練して得られることを特徴とするトラック・バスタイヤ用ゴム組成物。

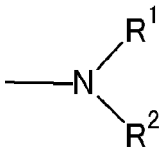
【化８】



(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。］

【化９】

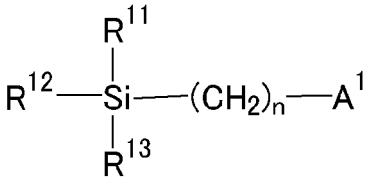


(Ia)

［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。］

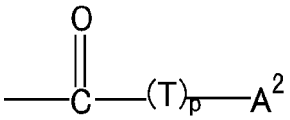
【化１０】



(II)

［式中、ｎは１～１０の整数を表し、Ｒ^{11}、Ｒ^{12}及びＲ^{13}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^{11}、Ｒ^{12}及びＲ^{13}の少なくとも１つがヒドロカルビルオキシ基であり、Ａ^{1}は窒素原子を有する官能基を表す。］

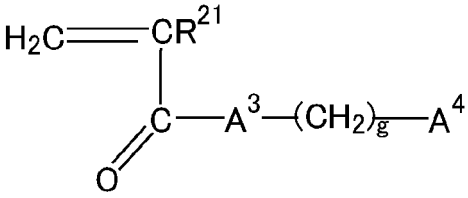
【化１１】



(III)

［式中、ｐは０又は１の整数を表し、Ｔは、炭素原子数が１～２０のヒドロカルビレン基又は炭素原子数が１～２０の置換ヒドロカルビレン基を表し、Ａ^{2}は窒素原子を有する官能基を表す。］

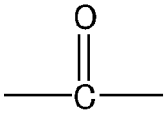
【化１２】



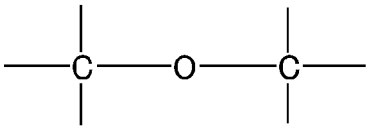
(IV)

［式中、ｇは、１～１０の整数を表し、Ｒ^{21}は、水素原子、炭素原子数が１～６のヒドロカルビル基又は炭素原子数が１～６の置換ヒドロカルビル基を表し、Ａ^{3}は、酸素原子又は－ＮＲ^{22}－基（Ｒ^{22}は、水素原子又は炭素原子数が１～１０のヒドロカルビル基を表す。）を表し、Ａ^{4}は、窒素原子及び／又は酸素原子を有する官能基を表す。］

【化１３】

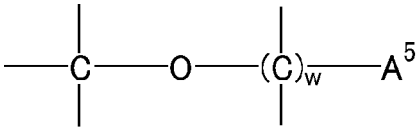


(V)



(VI)

【化１４】



(VII)

［式中、ｗは１～１１の整数を表し、Ａ^{5}は窒素原子を有する官能基を表す。］

【請求項３】

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又は２に記載のトラック・バスタイヤ用ゴム組成物。

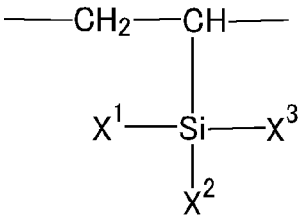
【請求項４】

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１～３のいずれかに記載のトラック・バスタイヤ用ゴム組成物。

【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、１０モル％以上８０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トラック・バスタイヤ用ゴム組成物。
【請求項６】
天然ゴム及び／又はブタジエンゴムを含有することを特徴とする請求項１～５のいずれかに記載のトラック・バスタイヤ用ゴム組成物。
【請求項７】
シリカが、平均一次粒子径をＤとしたとき、分岐粒子Ｚを含む分岐粒子間Ｚ－Ｚの平均アスペクト比W^{1}／Ｄが３～１００のものであることを特徴とする請求項１又は３～６のいずれかに記載のトラック・バスタイヤ用ゴム組成物。
【請求項８】
シリカの平均一次粒子径Ｄが５～１０００ｎｍであることを特徴とする請求項１又は３～７のいずれかに記載のトラック・バスタイヤ用ゴム組成物。
【請求項９】
請求項１～８のいずれかに記載のゴム組成物を用いて作製したトラック・バスタイヤ。
【発明の詳細な説明】
【技術分野】
【０００１】
本発明は、トラック・バスタイヤ用ゴム組成物及びそれを用いて作製したトラック・バスタイヤに関するものである。
【背景技術】
【０００２】
近年、輸送業界では、燃料代の高騰に伴う経費増大、環境規制の導入による出費増大の理由から低燃費性に優れたタイヤが望まれている。自動車タイヤ用のゴム組成物としては、天然ゴムやポリブタジエン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。
【０００３】
低燃費性を改善する方法として、例えば、特許文献１～３では、シリカを含む配合において、ゴムに特定の極性基を付加することによりシリカと親和性を持たせる方法が提案されている。しかし、近年では、低燃費性の更なる改善が求められている。また、自動車タイヤの中でも、トラック・バスタイヤは特に優れた耐摩耗性、ゴム強度が要求されるが、これらの性能は低燃費性と背反する関係にあるため、それぞれの性能を高次元でバランス良く得ることは困難であった。
【先行技術文献】
【特許文献】
【０００４】
【特許文献１】特開２００１－１１４９３９号公報
【特許文献２】特開２００５－１２６６０４号公報
【特許文献３】特開２００５－３２５２０６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、耐摩耗性及びゴム強度をバランス良く改善できるトラック・バスタイヤ用ゴム組成物、及びそれを用いて作製したトラック・バス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】
本発明は、ゴム成分及びシリカを含有し、上記ゴム成分１００質量％のうち、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し、下式（ＩＩ）で表される化

合物、下式（ＩＩＩ）で表される基を有する化合物、下式（ＩＶ）で表される化合物、下式（Ｖ）で表される基及び／又は下式（ＶＩ）で表される基を有するケイ素化合物、並びに下式（ＶＩＩ）で表される基を有する化合物からなる群より選択される少なくとも１種の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の含有量が５質量％以上であり、上記シリカが、１つの粒子に対して隣接する粒子が３つ以上の粒子を分岐粒子Ｚとしたとき、分岐粒子Ｚを含む分岐粒子間Ｚ－Ｚの平均長Ｗ^{1}が３０～４００ｎｍのものであり、上記ゴム成分１００質量部に対する上記シリカの含有量が５～１５０質量部であるトラック・バスタイヤ用ゴム組成物に関する。

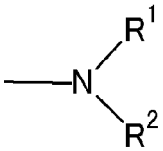
【化１】



(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。］

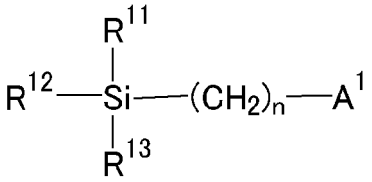
【化２】



(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。］

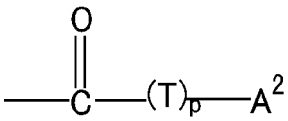
【化３】



(II)

［式中、ｎは１～１０の整数を表し、Ｒ^{11}、Ｒ^{12}及びＲ^{13}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^{11}、Ｒ^{12}及びＲ^{13}の少なくとも１つがヒドロカルビルオキシ基であり、Ａ^{1}は窒素原子を有する官能基を表す。］

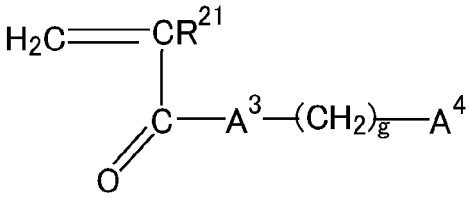
【化４】



(III)

［式中、ｐは０又は１の整数を表し、Ｔは、炭素原子数が１～２０のヒドロカルビレン基又は炭素原子数が１～２０の置換ヒドロカルビレン基を表し、Ａ^{2}は窒素原子を有する官能基を表す。］

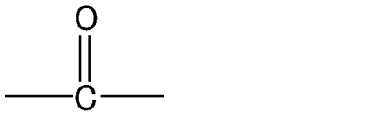
【化５】



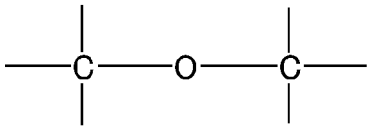
(IV)

［式中、ｇは、１～１０の整数を表し、Ｒ^{21}は、水素原子、炭素原子数が１～６のヒドロカルビル基又は炭素原子数が１～６の置換ヒドロカルビル基を表し、Ａ^{3}は、酸素原子又は－ＮＲ^{22}－基（Ｒ^{22}は、水素原子又は炭素原子数が１～１０のヒドロカルビル基を表す。）を表し、Ａ^{4}は、窒素原子及び／又は酸素原子を有する官能基を表す。］

【化６】

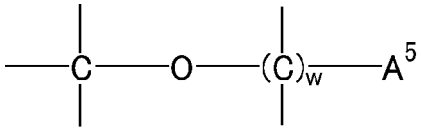


(V)



(VI)

【化７】



(VII)

［式中、ｗは１～１１の整数を表し、Ａ^{5}は窒素原子を有する官能基を表す。］

【０００７】

本発明はまた、上記共役ジエン系重合体と、シリカゾルとを混練して得られるトラック・バスタイヤ用ゴム組成物に関する。

【０００８】

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が好ましい。

【０００９】

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が好ましい。

【００１０】

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、１０モル％以上８０モル％以下であることが好ましい。

【００１１】

上記ゴム組成物は、天然ゴム及び／又はブタジエンゴムを含有することが好ましい。

【００１２】

シリカが、平均一次粒子径をＤとしたとき、分岐粒子Ｚを含む分岐粒子間Ｚ－Ｚの平均アスペクト比Ｗ^{1}／Ｄが３～１００のものであることが好ましい。

【００１３】

シリカの平均一次粒子径Ｄが５～１０００ｎｍであることが好ましい。

【００１４】

本発明はまた、上記ゴム組成物を用いて作製したトラック・バスタイヤに関する。

【発明の効果】

【００１５】

本発明によれば、特定の共役ジエン系重合体と、特定のシリカとを配合したゴム組成物であるので、低燃費性、耐摩耗性及びゴム強度がバランス良く改善されたトラック・バスタ

イヤを提供できる。

【図面の簡単な説明】

【００１６】

【図１】分岐粒子Ｚについての概略模式図である。

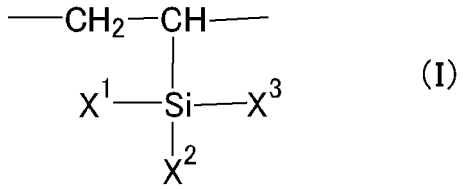
【図２】シリカの平均一次粒子径Ｄ、分岐粒子Ｚを含む分岐粒子間Ｚ－Ｚの平均長（W^1）、及び分岐粒子Ｚを含まない分岐粒子間Ｚ－Ｚの平均長（W^2）についての概略模式図である。

【発明を実施するための形態】

【００１７】

本発明のゴム組成物は、共役ジエンに基づく構成単位及び下式（Ｉ）で表される構成単位を有し、下式（ＩＩ）で表される化合物、下式（ＩＩＩ）で表される基を有する化合物、下式（ＩＶ）で表される化合物、下式（Ｖ）で表される基及び／又は下式（ＶＩ）で表される基を有するケイ素化合物、並びに下式（ＶＩＩ）で表される基を有する化合物からなる群より選択される少なくとも１種の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と、１つの粒子に対して隣接する粒子が３つ以上の粒子を分岐粒子Ｚとしたとき、分岐粒子Ｚを含む分岐粒子間Ｚ－Ｚの平均長W^1が３０～４００ｎｍであるシリカ（ストラクチャーシリカ（直鎖シリカ））とを含む。上記ストラクチャーシリカを含むゴム組成物は、例えば、上記共役ジエン系重合体とシリカゾルとを混練して製造できる。

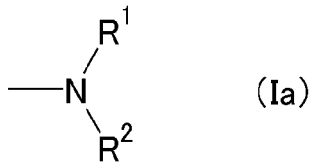
【化８】



(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。］

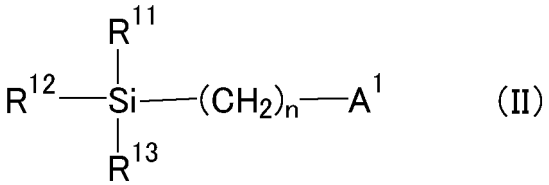
【化９】



(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。］

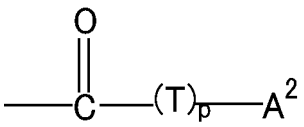
【化１０】



(II)

［式中、ｎは１～１０の整数を表し、R^{11}、R^{12}及びR^{13}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^{11}、R^{12}及びR^{13}の少なくとも１つがヒドロカルビルオキシ基であり、A^1は窒素原子を有する官能基を表す。］

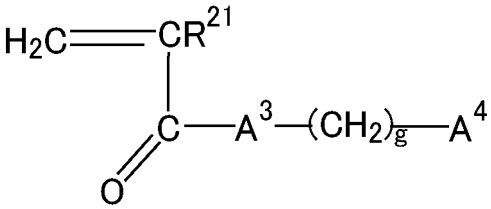
【化１１】



(III)

［式中、ｐは０又は１の整数を表し、Ｔは、炭素原子数が１～２０のヒドロカルビレン基又は炭素原子数が１～２０の置換ヒドロカルビレン基を表し、Ａ^{2}は窒素原子を有する官能基を表す。］

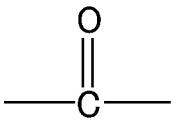
【化１２】



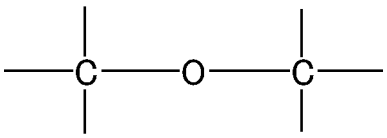
(IV)

［式中、ｇは、１～１０の整数を表し、Ｒ^{21}は、水素原子、炭素原子数が１～６のヒドロカルビル基又は炭素原子数が１～６の置換ヒドロカルビル基を表し、Ａ^{3}は、酸素原子又は－ＮＲ^{22}－基（Ｒ^{22}は、水素原子又は炭素原子数が１～１０のヒドロカルビル基を表す。）を表し、Ａ^{4}は、窒素原子及び／又は酸素原子を有する官能基を表す。］

【化１３】

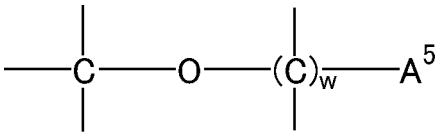


(V)



(VI)

【化１４】



(VII)

［式中、ｗは１～１１の整数を表し、Ａ^{5}は窒素原子を有する官能基を表す。］

【００１８】

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。

【００１９】

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。

【００２０】

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。

【００２１】

本明細書では、ヒドロカルビル基は１価の炭化水素残基を表す。ここで、炭化水素残基とは、炭化水素から水素を除いた基を表す。置換ヒドロカルビル基は、１価の炭化水素残基

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。ヒドロカルビレン基は、２価の炭化水素残基を表す。置換ヒドロカルビレン基は、２価の炭化水素残基の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。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。

【００２２】

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。

【００２３】

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。

【００２４】

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。

【００２５】

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。

【００２６】

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。

【００２７】

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。

【００２８】

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。

【００２９】

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。

【００３０】
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。
【００３１】
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。
【００３２】
式（Ｉａ）で表される基としては、経済性及び入手容易性から、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。
【００３３】
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。
【００３４】
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。
【００３５】
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。
【００３６】
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。また、低燃費性、耐摩耗性及びゴム強度を高次元でバランス良く得られるという点から、X^1、X^2及びX^3の少なくとも１つが水酸基であることが好ましく、X^1、X^2及びX^3の２つ以上が水酸基であることがより好ましく、X^1、X^2及びX^3の２つが水酸基であることが更に好ましい。
【００３７】
低燃費性、耐摩耗性及びゴム強度をバランス良く高める観点から、式（Ｉ）で表される構成単位としては、X^1、X^2及びX^3の２つが非環状アミノ基又は水酸基である構成単位が好ましい。X^1、X^2及びX^3の２つが非環状アミノ基である構成単位としては、ビス

（ジアルキルアミノ）アルキルビニルシラン単位が好ましく、ビス（ジメチルアミノ）メチルビニルシラン単位、ビス（ジエチルアミノ）メチルビニルシラン単位、ビス（ジ（ｎ－プロピル）アミノ）メチルビニルシラン単位、ビス（ジ（ｎ－ブチル）アミノ）メチルビニルシラン単位がより好ましい。Ｘ^{1}、Ｘ^{2}及びＸ^{3}の２つが水酸基である構成単位としては、ジヒドロキシアルキルビニルシラン単位が好ましく、ジヒドロキシメチルビニルシラン単位がより好ましい。

【００３８】

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、低燃費性、耐摩耗性及びゴム強度をバランス良く高める観点から、重合体単位質量あたり、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。

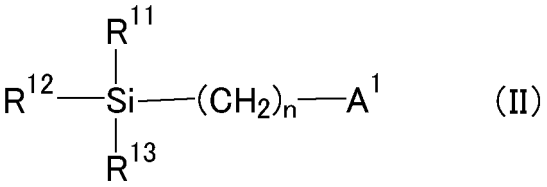
【００３９】

上記共役ジエン系重合体は、特定の化合物（変性剤１～５）によって重合体の少なくとも一端が変性されている。これにより、シリカとの相互作用が生じ、低燃費性、耐摩耗性及びゴム強度をバランス良く改善できる。

【００４０】

以下、下式（ＩＩ）で表される化合物（変性剤１）について説明する。

【化１５】



［式中、ｎは１～１０の整数を表し、Ｒ^{11}、Ｒ^{12}及びＲ^{13}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^{11}、Ｒ^{12}及びＲ^{13}の少なくとも１つがヒドロカルビルオキシ基であり、Ａ^{1}は窒素原子を有する官能基を表す。］

【００４１】

式（ＩＩ）のＲ^{11}、Ｒ^{12}及びＲ^{13}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^{11}、Ｒ^{12}及びＲ^{13}の少なくとも１つがヒドロカルビルオキシ基である。

【００４２】

Ｒ^{11}、Ｒ^{12}及びＲ^{13}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^{11}、Ｒ^{12}及びＲ^{13}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。

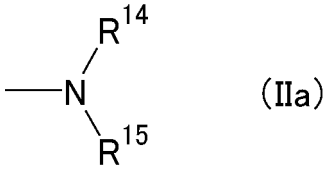
【００４３】

Ｒ^{11}、Ｒ^{12}及びＲ^{13}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、更に好ましくは、メチル基、エチル基である。また、Ｒ^{11}、Ｒ^{12}及びＲ^{13}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、更に好ましくは、メトキシ基、エトキシ基である。

【００４４】

Ｒ^{11}、Ｒ^{12}及びＲ^{13}としては、低燃費性、耐摩耗性及びゴム強度をバランス良く高める観点から、好ましくは、Ｒ^{11}、Ｒ^{12}及びＲ^{13}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^{11}、Ｒ^{12}及びＲ^{13}の３つがヒドロカルビルオキシ基である。

【００４５】
式（ＩＩ）のｎは１～１０の整数を表す。低燃費性、耐摩耗性及びゴム強度をバランス良く高める観点から、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。
【００４６】
式（ＩＩ）のＡ^{1}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、ピラジニル基、モルホリノ基などをあげることができる。
【００４７】
Ａ^{1}としては、下式（ＩＩａ）で表される基が好ましい。
【化１６】



［式中、Ｒ^{14}及びＲ^{15}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^{14}及びＲ^{15}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^{14}及びＲ^{15}は窒素に二重結合で結合する同一の基であってもよい。］
【００４８】
式（ＩＩａ）のＲ^{14}及びＲ^{15}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。
【００４９】
Ｒ^{14}及びＲ^{15}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。
【００５０】
Ｒ^{14}及びＲ^{15}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１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。
【００５１】
Ｒ^{14}及びＲ^{15}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。
【００５２】
Ｒ^{14}及びＲ^{15}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$_2$ＣＨ$_2$－ＮＨ－ＣＨ$_2$－で表される基、－ＣＨ$_2$ＣＨ$_2$－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。

【００５３】

Ｒ^{14}及びＲ^{15}が結合した基としては、含窒素基が好ましく、－ＣＨ$_2$ＣＨ$_2$－ＮＨ－ＣＨ$_2$－で表される基、－ＣＨ$_2$ＣＨ$_2$－Ｎ＝ＣＨ－で表される基がより好ましい。

【００５４】

Ｒ^{14}及びＲ^{15}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。

【００５５】

Ｒ^{14}及びＲ^{15}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^{14}及びＲ^{15}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^{14}及びＲ^{15}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。

【００５６】

Ｒ^{14}及びＲ^{15}としては、好ましくは、Ｒ^{14}及びＲ^{15}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。

【００５７】

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。

【００５８】

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。

【００５９】

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。

【００６０】

式（ＩＩａ）で表される基としては、低燃費性、耐摩耗性、ゴム強度、化合物の長期安定性及び入手容易性から、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。

【００６１】

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、トリアルキルシリル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。

【００６２】

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；

【００６３】

［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；

【００６４】

［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。

【００６５】

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；

【００６６】

｛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；

【００６７】

｛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。

【００６８】

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；

【００６９】

｛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。

【００７０】

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；

【００７１】

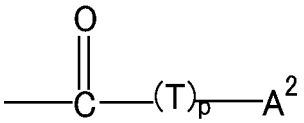
｛３－［ジ（テトラヒドロフルフリル）アミノ］プロピル｝トリメトキシシラン、
｛３－［ジ（テトラヒドロフルフリル）アミノ］プロピル｝トリエトキシシラン、
｛３－［ジ（テトラヒドロフルフリル）アミノ］プロピル｝メチルジメトキシシラン、
｛３－［ジ（テトラヒドロフルフリル）アミノ］プロピル｝エチルジメトキシシラン、
｛３－［ジ（テトラヒドロフルフリル）アミノ］プロピル｝メチルジエトキシシラン、
｛３－［ジ（テトラヒドロフルフリル）アミノ］プロピル｝エチルジエトキシシラン、
｛３－［ジ（テトラヒドロフルフリル）アミノ］プロピル｝ジメチルメトキシシラン、
｛３－［ジ（テトラヒドロフルフリル）アミノ］プロ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

【００７２】

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；
【００７３】
｛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；
【００７４】
｛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。
【００７５】
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。
【００７６】
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。
【００７７】
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。
【００７８】
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。

【００７９】
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。
【００８０】
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。
【００８１】
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。
【００８２】
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。
【００８３】
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。
【００８４】
以下、下式（ＩＩＩ）で表される基を有する化合物（変性剤２）について説明する。
【化１７】

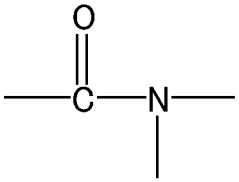


(III)

［式中、ｐは０又は１の整数を表し、Ｔは、炭素原子数が１～２０のヒドロカルビレン基又は炭素原子数が１～２０の置換ヒドロカルビレン基を表し、A^2は窒素原子を有する官能基を表す。］
【００８５】
ｐは０又は１の整数を表す。Ｔは、炭素原子数が１～２０のヒドロカルビレン基又は炭素原子数が１～２０の置換ヒドロカルビレン基を表す。A^2は窒素原子を有する官能基を表し、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、ピラジニル基、モルホリノ基などをあげることができる。
【００８６】
式（ＩＩＩ）で表される基を有する化合物としては、式（ＩＩＩ）のｐが０であり、A^2

がアミノ基である下式（ＩＩＩａ）で表される基を有する化合物をあげることができる。

【化１８】



(IIIa)

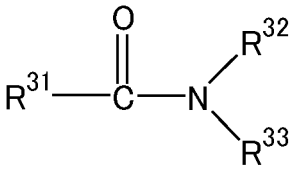
【００８７】

式（ＩＩＩａ）で表される基を有する化合物としては、ホルムアミド、アセトアミド、プロピオンアミドなどのカルボン酸アミド化合物をあげることができる。また、イミダゾリジノン及びその誘導体、ラクタム類などの環状化合物をあげることができる。

【００８８】

式（ＩＩＩａ）で表される基を有する化合物としては、下式（ＩＩＩａ－１）で表されるカルボン酸アミド化合物をあげることができる。

【化１９】



(IIIa-1)

［式中、R^{31}は、水素原子、炭素原子数が１～１０のヒドロカルビル基、炭素原子数が１～１０の置換ヒドロカルビル基、又は、窒素原子及び／若しくは酸素原子をヘテロ原子として有するヘテロ環基を表し、R^{32}及びR^{33}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１～１０の基を表し、R^{32}及びR^{33}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^{32}及びR^{33}は窒素に二重結合で結合する同一の基であってもよい。］

【００８９】

R^{31}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、ｔ－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、ナフチ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。

【００９０】

R^{31}の置換ヒドロカルビル基としては、窒素原子を有する基及び酸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る。

【００９１】

R^{31}の窒素原子及び／又は酸素原子をヘテロ原子として有するヘテロ環基とは、窒素原子及び／又は酸素原子を環内に含む複素環式化合物残基を表し、該基としては、２－ピリジル基、３－ピリジル基、４－ピリジル基、２－フリル基などをあげることができる。

【００９２】

R^{31}としては、好ましくは、炭素原子数が１～１０のヒドロカルビル基、炭素原子数が１～１０の置換ヒドロカルビル基であり、より好ましくは、炭素原子数が１～４のアルキル基であり、特に好ましくは、メチル基、エチル基、ｎ－プロピル基、ｎ－ブチル基である。

【００９３】

式（ＩＩＩａ－１）のＲ^{32}及びＲ^{33}としては、炭素原子数が１～１０のヒドロカルビル基、炭素原子数が１～１０の置換ヒドロカルビル基などをあげることができる。Ｒ^{32}及びＲ^{33}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、ｔ－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、ナフチ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。

【００９４】

Ｒ^{32}及びＲ^{33}の置換ヒドロカルビル基としては、窒素原子を有する基及び酸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る。

【００９５】

Ｒ^{32}及びＲ^{33}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２～２０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$_2$ＣＨ$_2$－ＮＨ－ＣＨ$_2$－で表される基、－ＣＨ$_2$ＣＨ$_2$－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。

【００９６】

Ｒ^{32}及びＲ^{33}の窒素に二重結合で結合する同一の基としては、窒素原子及び酸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。

【００９７】

Ｒ^{32}及びＲ^{33}としては、好ましくは、ヒドロカルビル基であり、より好ましくは、アルキル基であり、更に好ましくは、炭素原子数が１～４のアルキル基であり、特に好ましくは、メチル基、エチル基、ｎ－プロピル基、ｎ－ブチル基である。

【００９８】

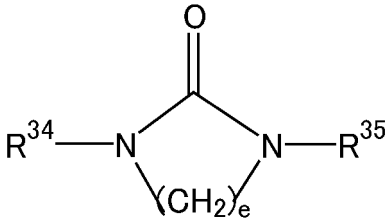
式（ＩＩＩａ－１）で表されるカルボン酸アミド化合物としては、ホルムアミド、Ｎ，Ｎ－ジメチルホルムアミド、Ｎ，Ｎ－ジエチルホルムアミドなどのホルムアミド化合物；
アセトアミド、Ｎ，Ｎ－ジメチルアセトアミド、Ｎ，Ｎ－ジエチルアセトアミド、アミノアセトアミド、Ｎ，Ｎ－ジメチル－Ｎ’，Ｎ’－ジメチルアミノアセトアミド、Ｎ，Ｎ－ジメチルアミノアセトアミド、Ｎ－エチルアミノアセトアミド、Ｎ，Ｎ－ジメチル－Ｎ’－エチルアミノアセトアミド、Ｎ，Ｎ－ジメチルアミノアセトアミド、Ｎ－フェニルジアセトアミドなどのアセトアミド化合物；
プロピオンアミド、Ｎ，Ｎ－ジメチルプロピオンアミドなどのプロピオンアミド化合物；
４－ピリジルアミド、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；
ベンズアミド、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－ジメチルアクリルアミド、Ｎ，Ｎ－ジエチルアクリルアミドなどのアクリルアミド化合物；
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などのメタクリルアミド化合物；

Ｎ，Ｎ－ジメチルニコチンアミド、Ｎ，Ｎ－ジエチルニコチンアミドなどのニコチンアミド化合物；
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；
Ｎ－メチルフタルイミド、Ｎ－エチルフタルイミドなどのフタルイミド化合物などをあげることができる。

【００９９】

また、式（ＩＩＩａ）で表される基を有する環状化合物としては、下式（ＩＩＩａ－２）又は下式（ＩＩＩａ－３）で表される化合物をあげることができる。

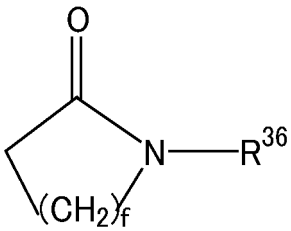
【化２０】



(IIIa-2)

［式中、ｅは０～１０の整数を表し、Ｒ^{34}及びＲ^{35}は、それぞれ独立に、炭素原子数が１～２０のヒドロカルビル基又は炭素原子数が１～２０の置換ヒドロカルビル基を表す。］

【化２１】



(IIIa-3)

［式中、ｆは０～１０の整数を表し、Ｒ^{36}は、炭素原子数が１～２０のヒドロカルビル基又は炭素原子数が１～２０の置換ヒドロカルビル基を表す。］

【０１００】

式（ＩＩＩａ－２）及び式（ＩＩＩａ－３）のＲ^{34}、Ｒ^{35}及びＲ^{36}は、それぞれ独立に、炭素原子数が１～２０のヒドロカルビル基又は炭素原子数が１～２０の置換ヒドロカルビル基を表す。Ｒ^{34}、Ｒ^{35}及びＲ^{36}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、ｔ－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、ナフチ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。

【０１０１】

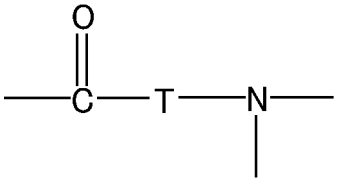
Ｒ^{34}、Ｒ^{35}及びＲ^{36}の置換ヒドロカルビル基としては、窒素原子を有する基、酸素原子を有する基及びケイ素原子を有する基からなる基群から選ばれる少なくとも１種の基を置換基として有する置換ヒドロカルビル基をあげることができる。窒素原子を有する基を置換基として有する基としては、ジメチルアミノエチル基、ジエチルアミノエチル基などのジアルキルアミノアルキル基をあげることができ、酸素原子を有する基を置換基として有する基としては、メトキシメチル基、メトキシエチル基、エトキシメチル基、エトキシエチル基などのアルコキシアルキル基；メトキシフェニル基、エトキシフェニル基などのアルコキシアリール基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、ｔ－ブチルジメチルシリロキシメチル基、トリメトキシシリルプロピル基などをあげることができる。

【０１０２】

式（ＩＩＩａ－２）のＲ^{34}及びＲ^{35}としては、好ましくはヒドロカルビル基であり、より好ましくはアルキル基であり、更に好ましくはメチル基である。

【０１０３】
式（ＩＩＩａ－３）のＲ^{36}としては、好ましくはヒドロカルビル基であり、より好ましくはアルキル基、アリール基であり、更に好ましくはメチル基、フェニル基である。
【０１０４】
式（ＩＩＩａ－２）及び式（ＩＩＩａ－３）のｅ及びｆは、それぞれ０～１０の整数を表す。低燃費性、耐摩耗性及びゴム強度をバランス良く高める観点から、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。
【０１０５】
式（ＩＩＩａ－２）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。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。
【０１０６】
式（ＩＩＩａ－３）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。
【０１０７】
式（ＩＩＩａ－３）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。
【０１０８】
式（ＩＩＩ）で表される基を有する化合物としては、式（ＩＩＩ）のｐが１であり、Ａ^{2}がアミノ基である下式（ＩＩＩｂ）で表される基を有する化合物をあげることができる。

【化２２】



(IIIb)

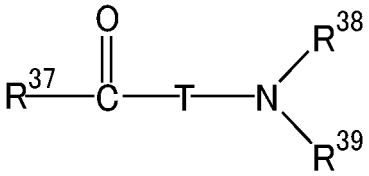
［式中、Ｔは、炭素原子数が１～２０のヒドロカルビレン基又は炭素原子数が１～２０の置換ヒドロカルビレン基を表す。］

式（ＩＩＩｂ）で表される基を有する化合物としては、ベンズアルデヒド化合物、アセトフェノン化合物、ベンゾフェノン化合物をあげることができる。

【０１０９】

式（ＩＩＩｂ）で表される基を有する化合物としては、下式（ＩＩＩｂ－１）で表される化合物をあげることができる。

【化２３】



(IIIb-1)

［式中、R^{37}は、水素原子、炭素原子数が１～１０のヒドロカルビル基、炭素原子数が１～１０の置換ヒドロカルビル基、又は、窒素原子及び／若しくは酸素原子をヘテロ原子として有するヘテロ環基を表し、R^{38}及びR^{39}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１～１０の基を表し、R^{38}及びR^{39}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^{38}及びR^{39}は窒素に二重結合で結合する同一の基であってもよく、Ｔは、炭素原子数が１～２０のヒドロカルビレン基又は炭素原子数が１～２０の置換ヒドロカルビレン基を表す。］

【０１１０】

R^{37}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、ｔ－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、ナフチ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。

【０１１１】

R^{37}の置換ヒドロカルビル基としては、窒素原子を有する基及び酸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る。

【０１１２】

R^{37}の窒素原子及び／又は酸素原子をヘテロ原子として有するヘテロ環基とは、窒素原子及び／又は酸素原子を環内に含む複素環式化合物残基を表し、該基としては、２－ピリジル基、３－ピリジル基、４－ピリジル基、２－フリル基などをあげることができる。

【０１１３】

R^{37}としては、好ましくは、水素原子、炭素原子数が１～１０のヒドロカルビル基、炭素原子数が１～１０の置換ヒドロカルビル基である。炭素原子数が１～１０のヒドロカルビル基としては、好ましくは、炭素原子数が１～４のアルキル基及びフェニル基であり、より好ましくは、メチル基、エチル基、ｎ－プロピル基、ｎ－ブチル基、フェニル基である。また、炭素原子数が１～１０の置換ヒドロカルビル基としては、好ましくは、窒素原

子を有する基を置換基として有するアリール基であり、より好ましくは、ジアルキルアミノフェニル基、４－モルホリノフェニル基である。

【０１１４】

式（ＩＩＩｂ－１）のＲ^{38}及びＲ^{39}としては、炭素原子数が１～１０のヒドロカルビル基、炭素原子数が１～１０の置換ヒドロカルビル基などをあげることができる。

【０１１５】

Ｒ^{38}及びＲ^{39}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、ｔ－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、ナフチ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。

【０１１６】

Ｒ^{38}及びＲ^{39}の置換ヒドロカルビル基としては、窒素原子を有する基及び酸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る。

【０１１７】

Ｒ^{38}及びＲ^{39}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２～２０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$_2$ＣＨ$_2$－ＮＨ－ＣＨ$_2$－で表される基、－ＣＨ$_2$ＣＨ$_2$－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。

【０１１８】

Ｒ^{38}及びＲ^{39}の窒素に二重結合で結合する同一の基としては、窒素原子及び酸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。

【０１１９】

Ｒ^{38}及びＲ^{39}としては、好ましくは、ヒドロカルビル基であり、より好ましくは、アルキル基であり、更に好ましくは、炭素原子数が１～４のアルキル基であり、特に好ましくは、メチル基、エチル基、ｎ－プロピル基、ｎ－ブチル基である。

【０１２０】

Ｔ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、メチルフェニレン基、エチルフェニルレン基、ナフチレン基などのアリレーン基をあげることができる。

【０１２１】

Ｔの置換ヒドロカルビレン基としては、窒素原子を有する基及び酸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レン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レン基、ジエチルアミノエチレン基などのジアルキルアミノアルキレン基；ジメチルアミノフェニレン基、ジエチルアミノフェニレン基などのジアルキルアミノアリレーン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、メトキシメチレン基、メトキシエチレン基、エトキシメチレン基、エトキシエチレン基などのアルコキシアルキレン基をあげることができる。

【０１２２】

Ｔ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、アリレーン基であり、更に好ましくは、フェニレン基である。

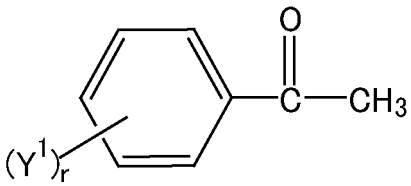
【０１２３】

式（ＩＩＩｂ－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、３，５－ビス（ジヘキシルアミノ）－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－モルホリノアセトフェノン、４’－イミダゾール－１－イル－アセトフェノン、４－ピラゾリル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；４，４’－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、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、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などのジアルキルアミノ置換ベンゾフェノン化合物；４－モルホリノベンゾフェノン、４’－（イミダゾール－１－イル）－ベンゾフェノン、４－ピラゾリル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をあげることができる。

【０１２４】

式（ＩＩＩｂ－１）で表される化合物としては、好ましくは、置換アセトフェノン化合物、置換ベンゾフェノン化合物であり、下式（ＩＩＩｂ－１－１）又は下式（ＩＩＩｂ－１－２）で表される化合物をあげることができる。

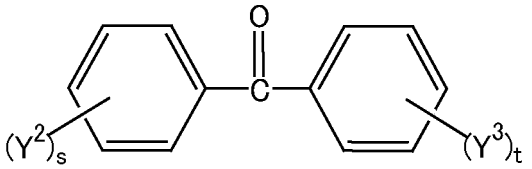
【化２４】



(IIIb-1-1)

［式中、ｒは１又は２の整数を表し、Ｙ^{1}はベンゼン環上の置換基であって、窒素原子を有する官能基を表し、Ｙ^{1}が複数ある場合、複数あるＹ^{1}は、同一でも異なっていてもよい。］

【化２５】



(IIIb-1-2)

［式中、ｓは１又は２の整数を表し、ｔは０～２の整数を表し、Ｙ^{2}及びＹ^{3}は、ベンゼン環上の置換基であって、窒素原子を有する官能基を表し、Ｙ^{2}が複数ある場合、複数あるＹ^{2}は、同一でも異なっていてもよく、Ｙ^{3}が複数ある場合、複数あるＹ^{3}は、同一でも異なっていてもよい。］

【０１２５】

式（ＩＩＩｂ－１－１）及び式（ＩＩＩｂ－１－２）のＹ^{1}、Ｙ^{2}及びＹ^{3}は、窒素原子を有する官能基を表し、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、ピラジニル基、ピリミジニル基、ピロリル基、イミダゾリル基、ピラゾリル基、モルホリノ基などをあげることができる。好ましくは、ジアルキルアミノ基、イミダゾリル基、モルホリノ基である。また、ジアルキルアミノ基のアルキル基としては、炭素原子数１～１０のアルキル基が好ましい。

【０１２６】

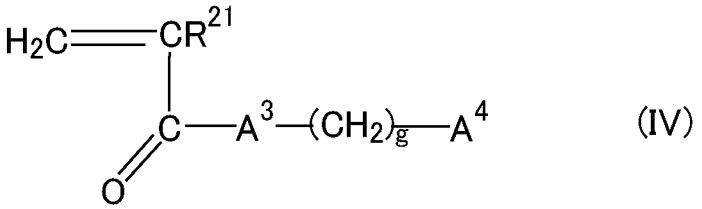
式（ＩＩＩｂ－１）で表される化合物としては、より好ましくは、ヘテロ環基置換アセトフェノン化合物、ジアルキルアミノ置換ベンゾフェノン化合物、ヘテロ環基置換ベンゾフェノン化合物であり、特に好ましくは、４’－イミダゾール－１－イル－アセトフェノン、４－モルホリノアセトフェノン、４－ジメチルアミノベンゾフェノン、４－ジエチルア

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、４－モルホリノベンゾフェノンである。

【０１２７】

以下、下式（ＩＶ）で表される化合物（変性剤３）について説明する。

【化２６】



(IV)

［式中、ｇは、１～１０の整数を表し、R^{21}は、水素原子、炭素原子数が１～６のヒドロカルビル基又は炭素原子数が１～６の置換ヒドロカルビル基を表し、A^3は、酸素原子又は－NR^{22}－基（R^{22}は、水素原子又は炭素原子数が１～１０のヒドロカルビル基を表す。）を表し、A^4は、窒素原子及び／又は酸素原子を有する官能基を表す。］

【０１２８】

ｇは、１～１０の整数を表す。低燃費性、耐摩耗性及びゴム強度をバランス良く高める観点から、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４以下である。特に好ましくは３である。

【０１２９】

式（ＩＶ）のR^{21}は、水素原子、炭素原子数が１～６のヒドロカルビル基又は炭素原子数が１～６の置換ヒドロカルビル基を表す。

【０１３０】

R^{21}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、ｔ－ブチル基などのアルキル基をあげることができる。

【０１３１】

R^{21}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；ｔ－ブチルジメチルシリロキシメチル基などのトリアルキルシリロキシアルキル基；トリメトキシシリルプロピル基などのトリアルコキシシリルアルキル基などをあげることができる。

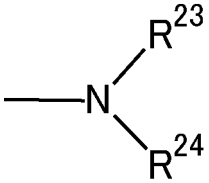
【０１３２】

R^{21}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、エチル基であり、より更に好ましくは、メチル基である。また、R^{21}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であり、より好ましくは、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、メトキシメチル基、エトキシエチル基であり、より更に好ましくは、メトキシメチル基である。

【０１３３】

R^{21}としては、低燃費性、耐摩耗性及びゴム強度をバランス良く高める観点及び経済性から、好ましくは、水素原子、アルキル基、アルコキシアルキル基であり、より好ましくは、水素原子、炭素原子数が１～４のアルキル基、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、水素原子、メチル基、メトキシメチル基であり、より更に好ましくは水素原子、メチル基である。

【０１３４】
式（ＩＶ）のＡ^{3}は、酸素原子又は－ＮＲ^{22}－基を表し、Ｒ^{22}は、水素原子又は炭素原子数が１～１０のヒドロカルビル基を表す。
【０１３５】
Ｒ^{22}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、ｔ－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、ナフチ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。
【０１３６】
Ｒ^{22}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、エチル基である。
【０１３７】
Ｒ^{22}としては、好ましくは、水素原子、アルキル基であり、より好ましくは、水素原子、炭素原子数が１～４のアルキル基であり、更に好ましくは、水素原子、メチル基、エチル基であり、より更に好ましくは、水素原子、メチル基である。
【０１３８】
式（ＩＶ）のＡ^{4}は、窒素原子及び／又は酸素原子を有する官能基を表す。窒素原子を有する官能基としては、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、ピペラジニル基、モルホリノ基などをあげることができる。
【０１３９】
酸素原子を有する官能基としては、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－ブドキシ基、ｔ－ブトキシ基などのアルコキシ基；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；メトキシフェニル基、エトキシフェニル基などのアルコキシアリール基；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をあげることができる。また、トリメチルシリロキシ基、トリエチルシリロキシ基、ｔ－ブチルジメチルシリロキシ基などのトリアルキルシリロキシ基をあげることができる。また、水酸基をあげることができる。
【０１４０】
Ａ^{4}としては、下式（ＩＶａ）で表される基又は水酸基が好ましく、下式（ＩＶａ）で表される基がより好ましい。
【化２７】



(IVa)

［式中、Ｒ^{23}及びＲ^{24}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^{23}及びＲ^{24}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^{23}及びＲ^{24}は窒素に二重結合で結合する同一の基であってもよい。］
【０１４１】
式（ＩＶａ）のＲ^{23}及びＲ^{24}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。
【０１４２】
Ｒ^{23}及びＲ^{24}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。
【０１４３】

R^{23}及びR^{24}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１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。

【０１４４】

R^{23}及びR^{24}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。

【０１４５】

R^{23}及びR^{24}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。

【０１４６】

R^{23}及びR^{24}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。

【０１４７】

R^{23}及びR^{24}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。

【０１４８】

R^{23}及びR^{24}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^{23}及びR^{24}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^{23}及びR^{24}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。

【０１４９】

R^{23}及びR^{24}としては、好ましくは、R^{23}及びR^{24}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。

【０１５０】

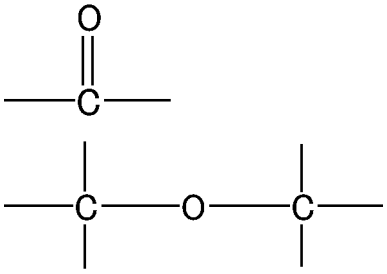
式（ＩＶａ）で表される基としては、非環状アミノ基、環状アミノ基をあげることができる。

【０１５１】
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。
【０１５２】
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。
【０１５３】
式（ＩＶａ）で表される基としては、低燃費性、耐摩耗性、ゴム強度、化合物の長期安定性及び入手容易性から、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。
【０１５４】
式（ＩＶ）で表される化合物としては、A^3が二級アミノ基である化合物として、アクリルアミド化合物、メタクリルアミド化合物などをあげることができる。
【０１５５】
A^4が窒素原子含有の基であるアクリルアミド化合物としては、
Ｎ－（２－ジメチルアミノエチル）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－（４－ジメチルアミノブチル）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－モルホリノプロピル）アクリルアミド、
Ｎ－（３－シアノプロピル）アクリルアミドなどがあげられる。
【０１５６】
A^4が窒素原子含有の基であるメタクリルアミド化合物としては、
Ｎ－（２－ジメチルアミノエチル）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、
Ｎ－（４－ジメチルアミノブチル）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－モルホリノプロピル）メタクリルアミド、
Ｎ－（３－シアノプロピル）メタクリルアミドなどがあげられる。
【０１５７】
$Ａ^{4}$が酸素原子含有の基であるアクリルアミド化合物としては、
Ｎ－（３－メトキシプロピル）アクリルアミド、
Ｎ－（３－エトキシプロピル）アクリルアミド、
Ｎ－（プロポキシメチル）アクリルアミド、
Ｎ－（ブトキシメチル）アクリルアミド、
Ｎ－グリシジルアクリルアミド、
Ｎ－テトラヒドロフルフリルアクリルアミドなどがあげられる。
【０１５８】
$Ａ^{4}$が酸素原子含有の基であるメタクリルアミド化合物としては、
Ｎ－（３－メトキシプロピル）メタクリルアミド、
Ｎ－（３－エトキシプロピル）メタクリルアミド、
Ｎ－（プロポキシメチル）メタクリルアミド、
Ｎ－（ブトキシメチル）メタクリルアミド、
Ｎ－グリシジルメタクリルアミド、
Ｎ－テトラヒドロフルフリルメタクリルアミドなどがあげられる。
【０１５９】
$Ａ^{4}$が窒素原子及び酸素原子含有の基であるアクリルアミド化合物としては、
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（テトラヒヒドロフルフリル）アミノプロピル）アクリルアミドなどがあげられる。
【０１６０】
$Ａ^{4}$が窒素原子及び酸素原子含有の基であるメタクリルアミド化合物としては、
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（テトラヒヒドロフルフリル）アミノプロピル）メタクリルアミドなどがあげられる。
【０１６１】
また、式（ＩＶ）で表される化合物としては、$Ａ^{3}$が酸素原子である化合物として、アクリレート化合物、メタクリレート化合物などをあげることができる。
【０１６２】
$Ａ^{4}$が窒素原子含有の基であるアクリレート化合物としては、
２－ジメチルアミノエチルアクリレート、
２－ジエチルアミノエチルアクリレート、
３－ジメチルアミノプロピルアクリレート、
３－ジエチルアミノプロピルアクリレート、
４－ジメチルアミノブチルアクリレート、
４－ジエチルアミノブチルアクリレートなどがあげられる。
【０１６３】
$Ａ^{4}$が窒素原子含有の基であるメタクリレート化合物としては、
２－ジメチルアミノエ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－ジメチルアミノプロピルメタクリレート、
３－ジエチルアミノプロピルメタクリレート、
４－ジメチルアミノブチルメタクリレート、
４－ジエチルアミノブチルメタクリレートなどがあげられる。
【０１６４】
$Ａ^{4}$が酸素原子含有の基であるアクリレート化合物としては、

２－エトキシエチルアクリレート、
２－プロポキシエチルアクリレート、
２－ブトキシエチルアクリレート、
３－メトキシプロピルアクリレート、
３－エトキシプロピルアクリレート、
グリシジルアクリレート、
テトラヒドロフルフリルアクリレートなどがあげられる。
【０１６５】
A^4が酸素原子含有の基であるメタクリレート化合物としては、
２－エトキシエチルメタクリレート、
２－プロポキシエチルメタクリレート、
２－ブトキシエチルメタクリレート、
３－メトキシプロピルメタクリレート、
３－エトキシプロピルメタクリレート、
グリシジルメタクリレート、
テトラヒドロフルフリルメタクリレートなどがあげられる。
【０１６６】
A^4が窒素原子及び酸素原子含有の基であるアクリレート化合物としては、
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などがあげられる。
A^4が窒素原子及び酸素原子含有の基であるメタクリレート化合物としては、
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などがあげられる。
【０１６７】
式（ＩＶ）で表される化合物としては、低燃費性、耐摩耗性及びゴム強度をバランス良く高める観点から、
好ましくは、A^4が式（ＩＶａ）で表される基である化合物であり、
より好ましくは、A^3がアミノ基であり、A^4が式（ＩＶａ）で表される基である化合物であり、
更に好ましくは、A^3が二級アミノ基（－ＮＨ－）であり、A^4が式（ＩＶａ）で表される基である化合物である。
【０１６８】
A^3が二級アミノ基であり、A^4が式（ＩＶａ）で表される基である化合物としては、
好ましくは、
Ｎ－（３－ジアルキルアミノプロピル）アクリルアミド、Ｎ－（３－ジアルキルアミノプロピル）メタクリルアミドであり、
より好ましくは、
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。
【０１６９】
以下、下式（Ｖ）で表される基及び／又は下式（ＶＩ）で表される基を有するケイ素化合物（変性剤４）について説明する。

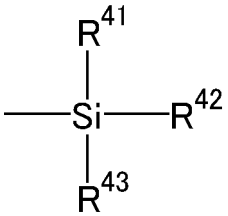
【化２８】



(V)

(VI)

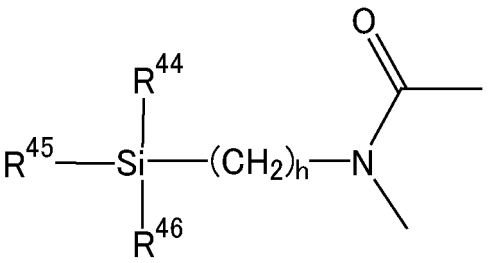
【０１７０】
式（Ｖ）で表される基を有する基としては、アミド基、カルボン酸エステル基、メタクリロイル基、アクリロイル基などがあげられる。また、式（ＶＩ）で表される基を有する基としては、オキシジメチレン基、オキシジエチレン基などのオキシジアルキレン基；エポキシ基、テトラヒドロフラニル基などのアルキレンオキシド基などがあげられる。
なお、本明細書において、アルキレンオキシド基は、環状エーテル化合物の環から水素原子を除いた１価の基を表す。
【０１７１】
ケイ素化合物としては、下式（ＶＩＩＩ）で表される基を有することが好ましい。
【化２９】



(VIII)

［式中、R^{41}、R^{42}及びR^{43}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^{41}、R^{42}及びR^{43}の少なくとも１つがヒドロカルビルオキシ基である。］
【０１７２】
式（ＶＩＩＩ）において、R^{41}、R^{42}及びR^{43}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^{41}、R^{42}及びR^{43}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。
【０１７３】
R^{41}、R^{42}及びR^{43}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、更に好ましくは、メチル基、エチル基である。また、R^{41}、R^{42}及びR^{43}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、更に好ましくは、メトキシ基、エトキシ基である。
【０１７４】
R^{41}、R^{42}及びR^{43}としては、低燃費性、耐摩耗性及びゴム強度をバランス良く高める観点から、好ましくは、R^{41}、R^{42}及びR^{43}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^{41}、R^{42}及びR^{43}の３つがヒドロカルビルオキシ基である。
【０１７５】
式（Ｖ）で表される基及び式（ＶＩＩＩ）で表される基を有するケイ素化合物としては、下式（Ｖａ）で表される基を有するケイ素化合物があげられる。

【化３０】



(Va)

［式中、ｈは１～１０の整数を表し、Ｒ４４、Ｒ４５及びＲ４６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、Ｒ４４、Ｒ４５及びＲ４６の少なくとも１つがヒドロカルビルオキシ基である。］

【０１７６】

ｈは、１～１０の整数を表す。低燃費性、耐摩耗性及びゴム強度をバランス良く高める観点から、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４以下である。特に好ましくは３である。

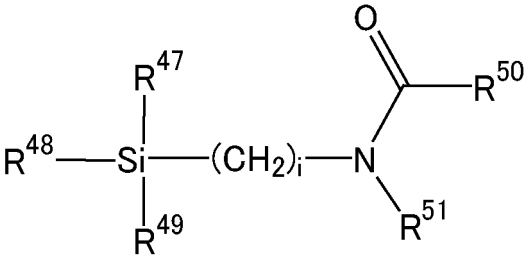
【０１７７】

Ｒ４４、Ｒ４５及びＲ４６について、例示される基及び好ましい基は、式（ＶＩＩＩ）のＲ４１、Ｒ４２及びＲ４３について上記した例示される基及び好ましい基と同じである。

【０１７８】

式（Ｖａ）で表される基を有するケイ素化合物としては、下式（Ｖａ－１）又は下式（Ｖａ－２）で表される化合物をあげることができる。

【化３１】

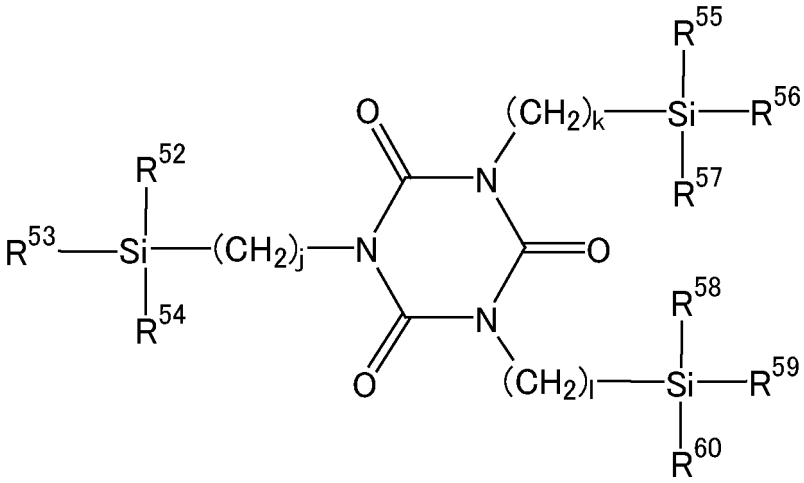


(Va-1)

［式中、ｉは１～１０の整数を表し、Ｒ４７、Ｒ４８及びＲ４９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、Ｒ４７、Ｒ４８及びＲ４９の少なくとも１つがヒドロカルビルオキシ基であり、Ｒ５０及びＲ５１は、それぞれ独立に、炭素原子数が１～１０のヒドロカルビル基、炭素原子数が１～１０の置換ヒドロカルビル基、炭素原子数が１～１０のヒドロカルビルオキシ基又は炭素原子数が１～１０の置換ヒドロカルビルオキシ基を表し、Ｒ５０及びＲ５１は結合していてもよい。］

【０１７９】

【化３２】



(Va-2)

［式中、ｊ、ｋ及びｌは、それぞれ独立に、１～１０の整数を表し、Ｒ５２～Ｒ６０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、Ｒ５２、Ｒ５３及びＲ５４の少なくとも１つがヒドロカルビルオキシ基であり、Ｒ５５、Ｒ５６及びＲ５７の少なくとも１つがヒドロカルビルオキシ基であり、Ｒ５８、Ｒ５９及びＲ６０の少なくとも１つがヒドロカルビルオキシ基である。］

【０１８０】

式（Ｖａ－１）のｉは、１～１０の整数を表す。低燃費性、耐摩耗性及びゴム強度をバランス良く高める観点から、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４以下である。特に好ましくは３である。

【０１８１】

式（Ｖａ－１）において、Ｒ４７、Ｒ４８及びＲ４９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、Ｒ４７、Ｒ４８及びＲ４９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。

【０１８２】

Ｒ４７、Ｒ４８及びＲ４９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、更に好ましくは、メチル基、エチル基である。また、Ｒ４７、Ｒ４８及びＲ４９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、更に好ましくは、メトキシ基、エトキシ基である。

【０１８３】

Ｒ４７、Ｒ４８及びＲ４９としては、低燃費性、耐摩耗性及びゴム強度をバランス良く高める観点から、好ましくは、Ｒ４７、Ｒ４８及びＲ４９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、Ｒ４７、Ｒ４８及びＲ４９の３つがヒドロカルビルオキシ基である。

【０１８４】

Ｒ５０及びＲ５１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。

【０１８５】

Ｒ５０及びＲ５１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、トリエ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。

【０１８６】

R^{50}及びR^{51}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。また、R^{50}及びR^{51}の置換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、エトキシメトキシ基、エトキシエトキシ基などのアルコキシアルコキシ基をあげることができる。

【０１８７】

R^{50}及びR^{51}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。

【０１８８】

R^{50}としては、好ましくは、アルキル基であり、より好ましくは、炭素数が１～４のアルキル基であり、更に好ましくは、メチル基及びエチル基である。

【０１８９】

R^{51}としては、好ましくは、アルキル基であり、より好ましくは、炭素数が１～４のアルキル基であり、更に好ましくは、メチル基及びエチル基である。

【０１９０】

式（Ｖａ－２）のｊ、ｋ及びｌは、それぞれ独立に、１～１０の整数を表す。低燃費性、耐摩耗性及びゴム強度をバランス良く高める観点から、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４以下である。特に好ましくは３である。

【０１９１】

式（Ｖａ－２）において、R^{52}～R^{60}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^{52}～R^{60}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。

【０１９２】

R^{52}～R^{60}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、更に好ましくは、メチル基、エチル基である。また、R^{52}～R^{60}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、更に好ましくは、メトキシ基、エトキシ基である。

【０１９３】

R^{52}、R^{53}及びR^{54}としては、低燃費性、耐摩耗性及びゴム強度をバランス良く高める観点から、好ましくは、R^{52}、R^{53}及びR^{54}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^{52}、R^{53}及びR^{54}の３つがヒドロカルビルオキシ基である。R^{55}、R^{56}及びR^{57}としては、低燃費性、耐摩耗性及びゴム強度をバランス良く高める観点から、好ましくは、R^{55}、R^{56}及びR^{57}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^{55}、R^{56}及びR^{57}の３つがヒドロカルビルオキシ基である。また、R^{58}、R^{59}及びR^{60}としては、低燃費性

、耐摩耗性及びゴム強度をバランス良く高める観点から、好ましくは、R^{58}、R^{59}及びR^{60}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^{58}、R^{59}及びR^{60}の３つがヒドロカルビルオキシ基である。

【０１９４】

式（Ｖａ－１）で表される化合物としては、
Ｎ－メチル－Ｎ－（トリメトキシシリルメチル）－アセトアミド、
Ｎ－メチル－Ｎ－（トリエトキシシリルメチル）－アセトアミド、
Ｎ－メチル－Ｎ－（２－トリメトキシシリルエチル）－アセトアミド、
Ｎ－メチル－Ｎ－（２－トリエトキシシリルエチル）－アセトアミド、
Ｎ－メチル－Ｎ－（３－トリメトキシシリルプロピル）－アセトアミド、
Ｎ－メチル－Ｎ－（３－トリエトキシシリルプロピル）－アセトアミド
などのＮ－アルキル－Ｎ－トリアルコキシシリルアルキル－アセトアミド；
Ｎ－メチル－Ｎ－（トリメトキシシリルメチル）－プロピオンアミド、
Ｎ－メチル－Ｎ－（トリエトキシシリルメチル）－プロピオンアミド、
Ｎ－メチル－Ｎ－（２－トリメトキシシリルエチル）－プロピオンアミド、
Ｎ－メチル－Ｎ－（２－トリエトキシシリルエチル）－プロピオンアミド、
Ｎ－メチル－Ｎ－（３－トリメトキシシリルプロピル）－プロピオンアミド、
Ｎ－メチル－Ｎ－（３－トリエトキシシリルプロピル）－プロピオンアミド
などのＮ－アルキル－Ｎ－トリアルコキシシリルアルキル－プロピオンアミドなど、
Ｎ－アルキル－Ｎ－トリアルコキシシリルアルキル置換カルボン酸アミドをあげることができる。

【０１９５】

式（Ｖａ－１）で表される化合物として、好ましくは、
Ｎ－アルキル－Ｎ－トリアルコキシシリルアルキル置換カルボン酸アミドであり、
より好ましくは、
Ｎ－アルキル－Ｎ－トリアルコキシシリルアルキル－プロピオンアミドであり、
更に好ましくは、
Ｎ－メチル－Ｎ－（３－トリメトキシシリルプロピル）－プロピオンアミド、
Ｎ－メチル－Ｎ－（３－トリエトキシシリルプロピル）－プロピオンアミドである。

【０１９６】

式（Ｖａ－２）で表される化合物としては、
１，３，５－トリス（トリメトキシシリルメチル）イソシアヌレート、
１，３，５－トリス（トリエトキシシリルメチル）イソシアヌレート、
１，３，５－トリス（トリメトキシシリルエチル）イソシアヌレート、
１，３，５－トリス（トリエトキシシリルエチル）イソシアヌレート、
１，３，５－トリス（３－トリメトキシシリルプロピル）イソシアヌレート、
１，３，５－トリス（３－トリエトキシシリルプロピル）イソシアヌレート
などの１，３，５－トリス（トリアルコキシシリルアルキル）イソシアヌレートをあげることができる。

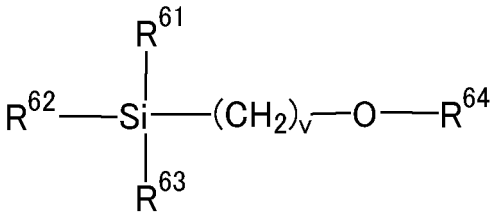
【０１９７】

式（Ｖａ－２）で表される化合物として、好ましくは、
１，３，５－トリス（３－トリメトキシシリルプロピル）イソシアヌレート、
１，３，５－トリス（３－トリエトキシシリルプロピル）イソシアヌレートである。

【０１９８】

式（ＶＩ）で表される基及び式（ＶＩＩＩ）で表される基を有するケイ素化合物としては、下式（ＶＩａ）で表されるケイ素化合物があげられる。

【化３３】



(VIa)

［式中、ｖは１～１０の整数を表し、Ｒ６１、Ｒ６２及びＲ６３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、Ｒ６１、Ｒ６２及びＲ６３の少なくとも１つがヒドロカルビルオキシ基であり、Ｒ６４は、炭素原子数が１～１０のヒドロカルビル基又は炭素原子数が１～１０の置換ヒドロカルビル基を表す。］

【０１９９】

式（ＶＩａ）のｖは、１～１０の整数を表す。低燃費性、耐摩耗性及びゴム強度をバランス良く高める観点から、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４以下である。特に好ましくは３である。

【０２００】

式（ＶＩａ）において、Ｒ６１、Ｒ６２及びＲ６３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、Ｒ６１、Ｒ６２及びＲ６３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。

【０２０１】

Ｒ６１、Ｒ６２及びＲ６３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、更に好ましくは、メチル基、エチル基である。また、Ｒ６１、Ｒ６２及びＲ６３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、更に好ましくは、メトキシ基、エトキシ基である。

【０２０２】

Ｒ６１、Ｒ６２及びＲ６３としては、低燃費性、耐摩耗性及びゴム強度をバランス良く高める観点から、好ましくは、Ｒ６１、Ｒ６２及びＲ６３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、Ｒ６１、Ｒ６２及びＲ６３の３つがヒドロカルビルオキシ基である。

【０２０３】

Ｒ６４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。

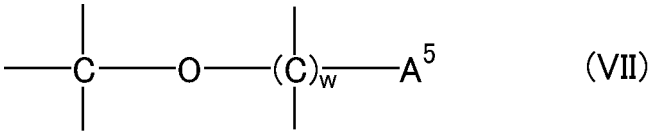
【０２０４】

Ｒ６４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；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

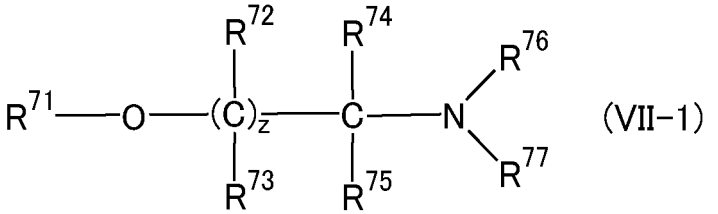
素原子がアルキレンオキシド基で置換されている基を表す。
【０２０５】
Ｒ^{64}としては、好ましくは、アルキレンオキシドアルキル基であり、より好ましくは、グリシジル基、テトラヒドロフルフリル基である。
【０２０６】
式（ＶＩａ）で表される化合物としては、
Ｒ^{64}がアルキル基である化合物として、
３－（メトキシ）プロピルトリメトキシシラン、
３－（エトキシ）プロピルトリメトキシシラン、
３－（ｎ－プロポキシ）プロピルトリメトキシシラン、
３－（イソプロポキシ）プロピルトリメトキシシラン、
３－（ｎ－ブトキシ）プロピルトリメトキシシラン、
３－（ｓｅｃ－ブトキシ）プロピルトリメトキシシラン、
３－（ｔ－ブトキシ）プロピルトリメトキシシラン
などの３－（アルコキシ）プロピルトリアルコキシシランをあげることができる。
【０２０７】
Ｒ^{64}がアルキレンオキシドアルキル基である化合物として、
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、
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
などのグリシドキシアルキルトリアルコキシシラン；
２－テトラヒドロフルフリロキシエチルトリメトキシシラン、
３－テトラヒドロフルフリロキシプロピルトリメトキシシラン、
２－テトラヒドロフルフリロキシエチルトリエトキシシラン、
３－テトラヒドロフルフリロキシプロピルトリエトキシシラン
などのテトラヒドロフルフリロキシアルキルトリアルコキシシランをあげることができる。
【０２０８】
Ｒ^{64}がアルコキシアルキル基である化合物として、
３－（メトキシメトキシ）プロピルトリメトキシシラン、
３－（メトキシエトキシ）プロピルトリメトキシシラン、
３－（エトキシメトキシ）プロピルトリメトキシシラン、
３－（エトキシエトキシ）プロピルトリメトキシシラン、
３－（メトキシメトキシ）プロピルトリエトキシシラン、
３－（メトキシエトキシ）プロピルトリエトキシシラン、
３－（エトキシメトキシ）プロピルトリエトキシシラン、
３－（エトキシエトキシ）プロピルトリエトキシシラン
などの３－（アルコキシアルコキシ）プロピルトリアルコキシシランをあげることができる。
【０２０９】
式（ＶＩａ）で表される化合物として、好ましくは、Ｒ^{64}がアルキレンオキシドアルキル基である化合物であり、より好ましくは、
３－グリシドキシプロピルトリメトキシシラン、
３－グリシドキシプロピルトリエトキシシラン、
３－テトラヒドロフルフリロキシプロピルトリメトキシシラン、
３－テトラヒドロフルフリロキシプロピルトリエトキシシランである。
【０２１０】
式（Ｖ）で表される基、式（ＶＩ）で表される基及び式（ＶＩＩＩ）で表される基を有するケイ素化合物としては、アクリロキシアルキルトリアルコキシシラン、メタクリロキシ

アルキルトリアルコキシシランをあげることができる。
【０２１１】
アクリロキシアルキルトリアルコキシシランとしては、３－アクリロキシプロピルトリメトキシシラン、３－アクリロキシプロピルトリエトキシシランなどの３－アクリロキシプロピルトリアルコキシシランをあげることができる。
メタクリロキシアルキルトリアルコキシシランとしては、３－メタクリロキシプロピルトリメトキシシラン、３－メタクリロキシプロピルトリエトキシシランなどの３－メタクリロキシプロピルトリアルコキシシランをあげることができる。
【０２１２】
また、式（Ｖ）で表される基、式（ＶＩ）で表される基及び式（ＶＩＩＩ）で表される基を有するケイ素化合物としては、トリアルコキシシリルアルキル無水コハク酸、トリアルコキシシリルアルキル無水マレイン酸をあげることができる。
【０２１３】
トリアルコキシシリルアルキル無水コハク酸としては、３－トリメトキシシリルプロピル無水コハク酸、３－トリエトキシシリルプロピル無水コハク酸などの３－トリアルコキシシリルプロピル無水コハク酸をあげることができる。
トリアルコキシシリルアルキル無水マレイン酸としては、３－トリメトキシシリルプロピル無水マレイン酸、３－トリエトキシシリルプロピル無水マレイン酸などの３－トリアルコキシシリルプロピル無水マレイン酸をあげることができる。
【０２１４】
以下、下式（ＶＩＩ）で表される基を有する化合物（変性剤５）について説明する。
【化３４】



(VII)

［式中、ｗは１～１１の整数を表し、A^5は窒素原子を有する官能基を表す。］
【０２１５】
ｗは、１～１１の整数を表す。低燃費性、耐摩耗性及びゴム強度をバランス良く高める観点から、好ましくは１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４以下である。A^5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、ピラジニル基、モルホリノ基などをあげることができる。
【０２１６】
式（ＶＩＩ）で表される基を有する化合物としては、下式（ＶＩＩ－１）で表される化合物をあげることができる。
【化３５】



(VII-1)

［式中、ｚは０～１０の整数を表し、R^{71}は炭素原子数が１～５のヒドロカルビル基を表し、R^{72}、R^{73}、R^{74}及びR^{75}は、それぞれ独立に、水素原子、炭素原子数が１～５のヒドロカルビル基、炭素原子数が１～５の置換ヒドロカルビル基又は炭素原子数が１～５のヒドロカルビルオキシ基を表し、R^{72}及びR^{73}が複数ある場合は、複数あるR^{72}及び複数あるR^{73}はそれぞれ同じであっても異なっていてもよく、R^{76}及びR^{77}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^{76}及びR^{77}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^{76}及びR^{77}は窒

素に二重結合で結合する同一の基であってもよい。］
【０２１７】
式（ＶＩＩ－１）のｚは、０～１０の整数を表す。経済性を高める観点から、好ましくは３以下であり、より好ましくは０である。
【０２１８】
式（ＶＩＩ－１）のＲ^{71}は炭素原子数が１～５のヒドロカルビル基を表す。Ｒ^{71}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、ｔ－ブチル基などのアルキル基をあげることができる。
【０２１９】
Ｒ^{71}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、エチル基である。
【０２２０】
式（ＶＩＩ－１）のＲ^{72}～Ｒ^{75}は、それぞれ独立に、水素原子、炭素原子数が１～５のヒドロカルビル基、炭素原子数が１～５の置換ヒドロカルビル基又は炭素原子数が１～５のヒドロカルビルオキシ基を表し、Ｒ^{72}及びＲ^{73}が複数ある場合は、複数あるＲ^{72}及び複数あるＲ^{73}はそれぞれ同じであっても異なっていてもよい。
【０２２１】
Ｒ^{72}～Ｒ^{75}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、ｔ－ブチル基などのアルキル基をあげることができる。
【０２２２】
Ｒ^{72}～Ｒ^{75}の置換ヒドロカルビル基としては、窒素原子を有する基及び酸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などをあげることができる。
【０２２３】
Ｒ^{72}～Ｒ^{75}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。
【０２２４】
Ｒ^{72}～Ｒ^{75}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、エチル基である。
【０２２５】
Ｒ^{72}～Ｒ^{75}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であり、より好ましくは炭素原子数が１～４のアルコキシアルキル基であり、更に好ましくは、メトキシメチル基、エトキシエチル基である。
【０２２６】
Ｒ^{72}～Ｒ^{75}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。
【０２２７】
低燃費性、耐摩耗性及びゴム強度をバランス良く高める観点及び経済性から、Ｒ^{74}及びＲ^{75}の一方が水素原子であることが好ましい。より好ましくは、Ｒ^{74}及びＲ^{75}の一方が水素原子であり、もう一方がアルキル基又はアルコキシ基である。更に好ましくは、Ｒ^{74}及びＲ^{75}の一方が水素原子であり、もう一方がアルコキシ基である。特に好ましくは、メトキシ基、エトキシ基である。

【０２２８】
式（ＶＩＩ－１）のＲ^{76}及びＲ^{77}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^{76}及びＲ^{77}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^{76}及びＲ^{77}は窒素に二重結合で結合する同一の基であってもよい。
【０２２９】
式（ＶＩＩ－１）のＲ^{76}及びＲ^{77}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。
【０２３０】
Ｒ^{76}及びＲ^{77}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。
【０２３１】
Ｒ^{76}及びＲ^{77}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１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。
【０２３２】
Ｒ^{76}及びＲ^{77}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。
【０２３３】
Ｒ^{76}及びＲ^{77}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$_2$ＣＨ$_2$－ＮＨ－ＣＨ$_2$－で表される基、－ＣＨ$_2$ＣＨ$_2$－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。
【０２３４】
Ｒ^{76}及びＲ^{77}が結合した基としては、含窒素基が好ましく、－ＣＨ$_2$ＣＨ$_2$－ＮＨ－ＣＨ$_2$－で表される基、－ＣＨ$_2$ＣＨ$_2$－Ｎ＝ＣＨ－で表される基がより好ましい。
【０２３５】
Ｒ^{76}及びＲ^{77}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。
【０２３６】
Ｒ^{76}及びＲ^{77}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^{76}及びＲ^{77}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^{76}及びＲ^{77}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。

【０２３７】

Ｒ^{76}及びＲ^{77}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^{76}及びＲ^{77}が結合した含窒素基であり、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。

【０２３８】

Ｒ^{76}及びＲ^{77}が窒素原子に結合したアミノ基としては、非環状アミノ基、環状アミノ基をあげることができる。

【０２３９】

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。

【０２４０】

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。

【０２４１】

Ｒ^{76}及びＲ^{77}が窒素原子に結合したアミノ基としては、低燃費性、耐摩耗性、ゴム強度、化合物の長期安定性及び入手容易性から、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、ジメチルアミノ基、ジエチルアミノ基である。

【０２４２】

式（ＶＩＩ－１）で表される化合物としては、Ｎ，Ｎ－ジアルキル置換カルボン酸アミドジアルキルアセタール化合物をあげることができる。

【０２４３】

Ｎ，Ｎ－ジアルキル置換カルボン酸アミドジアルキルアセタール化合物としては、
Ｎ，Ｎ－ジメチルホルムアミドジメチルアセタール、Ｎ，Ｎ－ジエチルホルムアミドジメチルアセタール、Ｎ，Ｎ－ジ（ｎ－プロピル）ホルムアミドジメチルアセタール、
Ｎ，Ｎ－ジメチルホルムアミドジエチルアセタール、Ｎ，Ｎ－ジエチルホルムアミドジエチルアセタール、Ｎ，Ｎ－ジ（ｎ－プロピル）ホルムアミドジエチルアセタール、

Ｎ，Ｎ－ジメチルホルムアミドエチルメチルアセタール、Ｎ，Ｎ－ジエチルホルムアミドエチルメチルアセタール、Ｎ，Ｎ－ジ（ｎ－プロピル）ホルムアミドエチルメチルアセタールなどのＮ，Ｎ－ジアルキルホルムアミドジアルキルアセタール；

【０２４４】

Ｎ，Ｎ－ジメチルアセトアミドジメチルアセタール、Ｎ，Ｎ－ジエチルアセトアミドジメチルアセタール、Ｎ，Ｎ－ジ（ｎ－プロピル）アセトアミドジメチルアセタール、
Ｎ，Ｎ－ジメチルアセトアミドジエチルアセタール、Ｎ，Ｎ－ジエチルアセトアミドジエチルアセタール、Ｎ，Ｎ－ジ（ｎ－プロピル）アセトアミドジエチルアセタール、
Ｎ，Ｎ－ジメチルアセトアミドエチルメチルアセタール、Ｎ，Ｎ－ジエチルアセトアミドエチルメチルアセタール、Ｎ，Ｎ－ジ（ｎ－プロピル）アセトアミドエチルメチルアセタールなどのＮ，Ｎ－ジアルキルアセトアミドジアルキルアセタール；

【０２４５】

Ｎ，Ｎ－ジメチルプロピオンアミドジメチルアセタール、Ｎ，Ｎ－ジエチルプロピオンアミドジメチルアセタール、Ｎ，Ｎ－ジ（ｎ－プロピル）プロピオンアミドジメチルアセタール、
Ｎ，Ｎ－ジメチルプロピオンアミドジエチルアセタール、Ｎ，Ｎ－ジエチルプロピオンアミドジエチルアセタール、Ｎ，Ｎ－ジ（ｎ－プロピル）プロピオンアミドジエチルアセタール、
Ｎ，Ｎ－ジメチルプロピオンアミドエチルメチルアセタール、Ｎ，Ｎ－ジエチルプロピオンアミドエチルメチルアセタール、Ｎ，Ｎ－ジ（ｎ－プロピル）プロピオンアミドエチルメチルアセタールなどのＮ，Ｎ－ジアルキルプロピオンアミドジアルキルアセタールなどがあげられる。

【０２４６】

これらの中では、低燃費性、耐摩耗性及びゴム強度をバランス良く高める観点から、好ましくは、
Ｎ，Ｎ－ジアルキルホルムアミドジアルキルアセタールであり、
より好ましくは、
Ｎ，Ｎ－ジメチルホルムアミドジメチルアセタール、
Ｎ，Ｎ－ジエチルホルムアミドジメチルアセタール、
Ｎ，Ｎ－ジメチルホルムアミドジエチルアセタール、
Ｎ，Ｎ－ジエチルホルムアミドジエチルアセタールである。

【０２４７】

上記共役ジエン系重合体中の共役ジエンに基づく構成単位（共役ジエン単位）の含有量は、好ましくは９５質量％以上、より好ましくは９７質量％以上である。９５質量％未満であると、低燃費性、耐摩耗性及びゴム強度をバランス良く向上できないおそれがある。

【０２４８】

上記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、低燃費性、耐摩耗性及びゴム強度がバランス良く得られるという観点から、好ましくは８０モル％以下、より好ましくは７０モル％以下、更に好ましくは５０モル％以下であり、また、好ましくは１０モル％以上、より好ましくは１５モル％以上、更に好ましくは２０モル％以上、特に好ましくは３０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。

【０２４９】

上記共役ジエン系重合体の重量平均分子量（Ｍｗ）は、好ましくは１．０×１０^{5}以上、より好ましくは２．０×１０^{5}以上である。Ｍｗが１．０×１０^{5}未満では、充分な低燃費性が得られにくい傾向がある。該Ｍｗは好ましくは２．５×１０^{6}以下、より好ましくは１．０×１０^{6}以下である。Ｍｗが２．５×１０^{6}を超えると、加工性の悪化が懸念される。
なお、本明細書において、重量平均分子量（Ｍｗ）は、後述の実施例の方法で測定できる

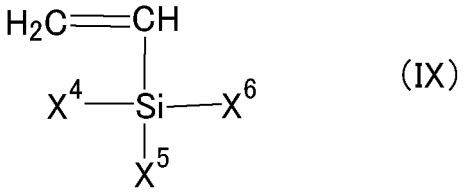
。

【０２５０】

上記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（ＩＸ）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（ＩＸ）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。

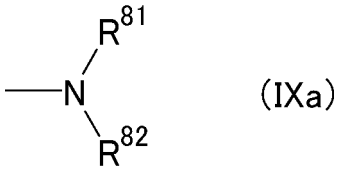
【化３６】



(IX)

［式中、X^4、X^5及びX^6は、それぞれ独立に、下式（ＩＸａ）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（ＩＸａ）で表される基である。］

【化３７】



(IXa)

［式中、R^{81}及びR^{82}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^{81}及びR^{82}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上記変性剤１～５の少なくとも１つとを反応させる工程。

【０２５１】

（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きる。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。

【０２５２】

（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。

【０２５３】

（工程Ａ）では、共役ジエンと式（ＩＸ）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。また、低燃費性、耐摩耗性及びゴム強度の観点から、１，３－ブタジエン、２，３－ジメチル－１，３－ブタジエンなどのブタジエン単位を有するモノマーが好ましく、１，３－ブタジエンがより好ましい。ブタジエン単位を有するモノマーを使用することにより、共役ジエンに基づく構成単位をブタジエン単位とすることができる。

【０２５４】

式（ＩＸ）のX^4、X^5及びX^6は、それぞれ独立に、式（ＩＸａ）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（ＩＸａ）で表される基である。

【０２５５】

式（ＩＸａ）のR^{81}及びR^{82}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^{81}及びR^{82}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。

【０２５６】

R^{81}及びR^{82}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。

【０２５７】

R^{81}及びR^{82}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。

【０２５８】

R^{81}及びR^{82}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。

【０２５９】

R^{81}及びR^{82}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$_2$ＣＨ$_2$－ＮＨ－ＣＨ$_2$－で表される基、－ＣＨ$_2$ＣＨ$_2$－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。

【０２６０】

Ｒ^{81}及びＲ^{82}が結合した基としては、含窒素基が好ましく、－ＣＨ$_2$ＣＨ$_2$－ＮＨ－ＣＨ$_2$－で表される基、－ＣＨ$_2$ＣＨ$_2$－Ｎ＝ＣＨ－で表される基がより好ましい。

【０２６１】

Ｒ^{81}及びＲ^{82}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^{81}及びＲ^{82}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^{81}及びＲ^{82}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。

【０２６２】

Ｒ^{81}及びＲ^{82}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^{81}及びＲ^{82}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。

【０２６３】

式（ＩＸａ）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。

【０２６４】

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。

【０２６５】

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。

【０２６６】

式（ＩＸａ）で表される基としては、経済性及び入手容易性から、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。

【０２６７】

式（ＩＸ）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。

【０２６８】

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。

【０２６９】

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。

【０２７０】

式（ＩＸ）のX^4、X^5及びX^6の少なくとも１つは、式（ＩＸａ）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（ＩＸａ）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（ＩＸａ）で表される基である。

【０２７１】

（工程Ａ）で用いられる式（ＩＸ）で表されるビニル化合物としては、X^4～X^6の１つが式（ＩＸａ）で表される非環状アミノ基であり、２つがヒドロカルビル基又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。

【０２７２】

（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。

【０２７３】

｛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。

【０２７４】

（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。

【０２７５】

X^4～X^6の２つが式（ＩＸａ）で表される非環状アミノ基であり、１つがヒドロカルビル基又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。

【０２７６】

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。

【０２７７】

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。

【０２７８】

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。

【０２７９】
Ｘ^{4}～Ｘ^{6}の３つが式（ＩＸａ）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。
【０２８０】
Ｘ^{4}～Ｘ^{6}の２つが式（ＩＸａ）で表される環状アミノ基であり、１つがヒドロカルビル基又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。
【０２８１】
Ｘ^{4}、Ｘ^{5}及びＸ^{6}の２つが式（ＩＸａ）で表される基である式（ＩＸ）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２つが非環状アミノ基であるビニル化合物であり、低燃費性、耐摩耗性及びゴム強度の観点から、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、化合物の入手容易性の観点からは、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。
【０２８２】
（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－ジオキサンなどの環状エーテル；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。
【０２８３】
（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。
【０２８４】
（工程Ａ）では、単量体として、共役ジエンと式（ＩＸ）で表されるビニル化合物のみを使用することが好ましい。これにより、共役ジエン単位と式（Ｉ）で表される構成単位からなる重合体が得られ、低燃費性、耐摩耗性及びゴム強度の改善効果を高めることができる。
【０２８５】
（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変性剤１～５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モルであり、更に好ま

しくは、１～１．５モルである。
【０２８６】
（工程Ｂ）において、工程Ａで調製された重合体と変性剤１～５の少なくとも一つ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。より好ましくは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。
【０２８７】
上記共役ジエン系重合体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（Ｘ）で表される化合物をあげることができる。
$R^{91}{}_{a}ML_{4-a}$（Ｘ）
［式中、R^{91}はアルキル基、アルケニル基、シクロアルケニル基又は芳香族残基を表し、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。］
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１価の基を表す。
【０２８８】
式（Ｘ）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。
【０２８９】
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、低燃費性、耐摩耗性及びゴム強度をバランス良く改善するという観点から、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。
【０２９０】
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。
【０２９１】
また、上記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うことが好ましい。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。加水分解する方法としては、例えば、スチームストリッピングによる方法などの公知の方法があげられる。上記処理により、式（Ｉ）のX^{1}～X^{3}を水酸基とすることができ、低燃費性、耐摩耗性及びゴム強度をよりバランス良く向上できる。
【０２９２】
上記共役ジエン系重合体は、ゴム成分として本発明のゴム組成物に用いることができる。ゴム成分１００質量％中の上記共役ジエン系重合体の含有量は、５質量％以上、好ましくは１０質量％以上、より好ましくは１５質量％以上、更に好ましくは２０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。上記共役ジエン系重合体の含有量は、好ましくは９０質量％以下、より好ましくは８０質量％以下、更に好ましくは７０質量％以下、特に好ましくは５０質量％以下である。９０質量％を超

えると、耐摩耗性、ゴム強度が低下するとともに、高コストになる傾向がある。

【０２９３】

上記共役ジエン系重合体以外に使用できるゴム成分としては、例えば、従来のスチレン－ブタジエン共重合体ゴム（ＳＢＲ）、ポリブタジエンゴム（ＢＲ）、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（ＮＲ）、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。これらのゴム成分は、２種以上組み合わせて用いてもよい。中でも、低燃費性を改善できるという点から、ＮＲ及び／又はＢＲを使用することが好ましく、ＮＲ及びＢＲの両成分を使用することがより好ましい。

【０２９４】

ＮＲとしては特に限定されず、例えば、ＳＩＲ２０、ＲＳＳ＃３、ＴＳＲ２０、脱タンパク質天然ゴム（ＤＰＮＲ）、高純度天然ゴム（ＨＰＮＲ）など、タイヤ工業において一般的なものを使用できる。

【０２９５】

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１０質量％以上、更に好ましくは１５質量％以上、特に好ましくは５０質量％以上である。５質量％未満であると、耐摩耗性、ゴム強度が低下する傾向がある。上記ＮＲの含有量は、好ましくは９０質量％以下、より好ましくは７０質量％以下、更に好ましくは６０質量％以下である。９０質量％を超えると、低燃費性が低下する傾向がある。

【０２９６】

ＢＲとしては特に限定されず、例えば、日本ゼオン（株）製のＢＲ１２２０、宇部興産（株）製のＢＲ１３０Ｂ、ＢＲ１５０Ｂなどの高シス含有量のＢＲ、宇部興産（株）製のＶＣＲ４１２、ＶＣＲ６１７などのシンジオタクチックポリブタジエン結晶を含有するＢＲなど、タイヤ工業において一般的なものを使用できる。

【０２９７】

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１０質量％以上、更に好ましくは１５質量％以上である。５質量％未満であると、低燃費性が低下する傾向がある。上記ＢＲの含有量は、好ましくは６０質量％以下、より好ましくは５０質量％以下、更に好ましくは２５質量％以下である。６０質量％を超えると、耐摩耗性が低下する傾向がある。

【０２９８】

本発明のゴム組成物は、シリカ数個が連結し、鎖状のストラクチャー構造を有するストラクチャーシリカ（直鎖シリカ）を含有する。該ストラクチャーシリカを上記共役ジエン系共重合体中と併用することで、低燃費性、耐摩耗性及びゴム強度を相乗的に改善し、これらの性能を高次元でバランス良く改善することができる。また、良好なウェットグリップ性能及びドライグリップ性能も得られる。

【０２９９】

本発明で使用するストラクチャーシリカは、１つの粒子に対して隣接する粒子が３つ以上の粒子（以下、分岐粒子Ｚとする）を有し、分岐粒子Ｚとそれに隣接する粒子により分岐構造が形成される。分岐粒子Ｚとは、分岐粒子の概略模式図である図１における粒子のうちの粒子Ｚであり、３個以上の他の粒子と隣接している。なお、ストラクチャーシリカとしては、分岐構造を有するもの（例えば図２）と有しないものが挙げられるが、分岐構造を有しないストラクチャーシリカは、すぐに凝集してしまうため、実質的に存在しない。

【０３００】

ストラクチャーシリカの分岐粒子Ｚを含む分岐粒子間Ｚ－Ｚの平均長（図２におけるW^1）は、３０ｎｍ以上、好ましくは４０ｎｍ以上である。３０ｎｍ未満では、ドライグリップ性能を充分に改善できない傾向がある。また、W^1は、４００ｎｍ以下、好ましくは２００ｎｍ以下、より好ましくは１００ｎｍ以下である。４００ｎｍを超えると、ヒステリシスロスが増大し、低燃費性が悪化する傾向がある。

【０３０１】

ストラクチャーシリカの平均一次粒子径（Ｄ、分岐粒子を含むストラクチャーシリカの概略模式図である図２参照）は、好ましくは５ｎｍ以上、より好ましくは７ｎｍ以上である。５ｎｍ未満では、ヒステリシスロスが増大し、低燃費性が悪化する傾向がある。また、Ｄは、好ましくは１０００ｎｍ以下、より好ましくは８００ｎｍ以下、更に好ましくは１００ｎｍ以下、特に好ましくは２０ｎｍ以下である。１０００ｎｍを超えると、ドライグリップ性能を充分に改善できない傾向がある。

【０３０２】

ストラクチャーシリカの分岐粒子Ｚを含む分岐粒子間Ｚ－Ｚの平均アスペクト比（W^1／Ｄ）は、好ましくは３以上、より好ましくは４以上である。３未満では、ドライグリップ性能を充分に改善できない傾向がある。また、W^1／Ｄは、好ましくは１００以下、より好ましくは３０以下である。W^1／Ｄが１００を超えると、ヒステリシスロスが増大し、低燃費性が悪化する傾向がある。

【０３０３】

なお、本発明では、シリカのＤ、W^1及びW^1／Ｄは、加硫ゴム組成物中に分散したシリカを透過型電子顕微鏡観察により測定することができる。例えば、図２において、粒子を真球とした場合には、W^1／Ｄは５となる。

【０３０４】

ストラクチャーシリカの含有量は、ゴム成分１００質量部に対して、５質量部以上、好ましくは１０質量部以上、より好ましくは１５質量部以上である。５質量部未満では、ストラクチャーシリカを配合した効果が充分に得られない傾向がある。また、ストラクチャーシリカの含有量は、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、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、ゴム組成物の剛性が高くなり、加工性及びウェットグリップ性能が悪化する傾向がある。

【０３０５】

ストラクチャーシリカ及びカーボンブラックの合計１００質量％中のストラクチャーシリカの含有量は、好ましくは２０質量％以上、より好ましくは４０質量％以上であり、好ましくは８０質量％以下、より好ましくは６０質量％以下である。上記範囲内であれば、低燃費性、耐摩耗性及びゴム強度を高次元でバランス良く改善することができる。

【０３０６】

ストラクチャーシリカは、シランカップリング剤と併用することが好ましい。シランカップリング剤としては、例えば、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）ジスルフィド、ビス（２－トリエトキシシリルエチル）テトラスルフィド、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（２－トリメトキシシリルエチル）テトラスルフィド、３－メルカプトプロピルトリメトキシシラン、３－メルカプトプロピルトリエトキシシラン、２－メルカプトエチルトリメトキシシラン、２－メルカプトエチルトリエトキシシラン、３－トリメトキシシリルプロピル－Ｎ，Ｎ－ジメチルチオカルバモイルテトラスルフィド、３－トリエトキシシリルプロピル－Ｎ，Ｎ－ジメチルチオカルバモイルテトラスルフィド、２－トリエトキシシリルエチル－Ｎ，Ｎ－ジメチルチオカルバモイルテトラスルフィド、３－トリメトキシシリルプロピルベンゾチアゾールテトラスルフィド、３－トリエトキシシリルプロピルベンゾチアゾリルテトラスルフィド、３－トリエトキシシリルプロピルメタクリレートモノスルフィド、３－トリメトキシシリルプロピルメタクリレートモノスルフィド、ビス（３－ジエトキシメチルシリルプロピル）テトラスルフィド、３－メルカプトプロピルジメトキシメチルシラン、ジメトキシメチルシリルプロピル－Ｎ，Ｎ－ジメチルチオカルバモイルテトラスルフィド、ジメトキシメチルシリルプロピルベンゾチアゾールテトラスルフィドなどがあげられる。なかでも、補強性改善効果などの点から、ビス（３－トリエトキシシリルプロピル）テトラスルフィド及び３－トリメトキシシリルプロピルベンゾチアゾリルテトラスルフィドが好ましい。これらのシランカップリング剤は単独で用いてもよく、２種以上を組み合わせて用いてもよい。

【０３０７】
シランカップリング剤の含有量は、ストラクチャーシリカ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２質量部以上である。１質量部未満では、未加硫ゴム組成物の粘度が高く加工性が悪くなる傾向がある。シランカップリング剤の含有量は、好ましくは２０質量部以下、より好ましくは１５質量部以下である。２０質量部を超えると、コストの増加に見合った効果が得られない傾向がある。
【０３０８】
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；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、滑剤などの加工助剤；老化防止剤を例示することができる。
【０３０９】
カーボンブラックとしては、ＳＡＦ、ＩＳＡＦ、ＨＡＦ、ＭＡＦ、ＦＥＦ、ＳＲＦ、ＧＰＦ、ＡＰＦ、ＦＦ、ＣＦ、ＳＣＦ及びＥＣＦのようなファーネスブラック（ファーネスカーボンブラック）；アセチレンブラック（アセチレンカーボンブラック）；ＦＴ及びＭＴのようなサーマルブラック（サーマルカーボンブラック）；ＥＰＣ、ＭＰＣ及びＣＣのようなチャンネルブラック（チャンネルカーボンブラック）；グラファイトなどをあげることができる。これらは１種又は２種以上組み合わせて用いることができる。
【０３１０】
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、下限は好ましくは５０m^2／ｇ、上限は好ましくは１８０m^2／ｇである。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であり、下限は８０ｍｌ／１００ｇ、上限は１８０ｍｌ／１００ｇであることが好ましい。カーボンブラックのN_2SAやＤＢＰ吸収量が上記範囲の下限未満では、補強効果が小さく耐摩耗性、ゴム強度が低下する傾向があり、上記範囲の上限を超えると、分散性が悪く、ヒステリシスロスが増大し低燃費性が低下する傾向がある。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、デグッサ社製商品名ＣＫ３、ＳｐｅｃｉａｌＢｌａｃｋ４Ａなどを用いることができる。
【０３１１】
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５質量部以上、より好ましくは２０質量部以上であり、また、好ましくは１００質量部以下、より好ましくは５０質量部以下である。カーボンブラックの含有量が５質量部未満であると耐摩耗性、ゴム強度が充分でない傾向があり、一方、カーボンブラックの含有量が１００質量部を超えると、低燃費性、加工性が悪化する傾向がある。
【０３１２】
ストラクチャーシリカ及びカーボンブラックの合計含有量は、ゴム成分１００質量部に対して、好ましくは１０質量部以上、より好ましくは３０質量部以上であり、また、好ましくは１６０質量部以下、より好ましくは１００質量部以下である。該合計含有量が１０質量部未満であると耐摩耗性、ゴム強度が充分でない傾向があり、一方、該合計含有量が１６０質量部を超えると、低燃費性、加工性が悪化する傾向がある。
【０３１３】
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、２種以上組み合わされて用いられてもよい。

【０３１４】

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－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，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。なかでも、チアゾール系加硫促進剤が好ましく、Ｎ－シクロヘキシル－２－ベンゾチアジルスルフェンアミドがより好ましい。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、より好ましくは０．２～３質量部である。

【０３１５】

上記共役ジエン系重合体に、他のゴム成分や添加剤などを配合して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。

【０３１６】

特に、ストラクチャーシリカが形成された前述の本発明のゴム組成物を容易に製造できるという点から、シリカゾルを、上記共役ジエン系重合体を含むゴム成分などと共にゴム混練装置で混練することが好ましく、具体的には、

（Ｉ）上記共役ジエン系重合体を含むゴム成分と、シリカゾルと、必要に応じて、カーボンブラック、シランカップリング剤、酸化亜鉛、ステアリン酸、軟化剤、老化防止剤、ワックス等を８０～１８０℃（好ましくは９０～１７０℃）で３～１０分間混練するベース練り工程と、

（ＩＩ）ベース練り工程により得られた混練物と、加硫剤と、加硫促進剤とを３０～１００℃（好ましくは４０～８５℃）で３～１０分間混練する仕上げ練り工程と、

（ＩＩＩ）仕上げ練り工程により得られた未加硫ゴム組成物を１５０～１９０℃（好ましくは１６０～１８０℃）で５～３０分間加硫する加硫工程とを含む製造方法がより好ましい。

【０３１７】

シリカゾルの好ましい配合量（シリカ換算）は、上述のストラクチャーシリカと同様である。

【０３１８】

なお、ストラクチャーシリカを形成する混練工程（ベース練り工程など）では、ゴムの良溶媒であるトルエン中で各成分を混練りすると、ストラクチャーシリカのW^{1}が過度に長くなりやすい傾向があるため、トルエンを用いずに混練りすることが好ましい。

【０３１９】

本明細書において、シリカゾルとは、溶媒にシリカを分散させたコロイド溶液をいう。シリカゾルとしては、特に限定されないが、好適にストラクチャーシリカを形成できるという理由から、細長い形状のシリカが溶媒中に分散したコロイド溶液が好ましく、細長い形状のシリカが有機溶媒中に分散したコロイド溶液（オルガノシリカゾル）がより好ましい。ここで、細長い形状のシリカとは、球状や粒状などの一次粒子が複数個繋がった鎖のような形状のシリカ（二次粒子）を意味する。なお、線状であっても分岐したものであってもよい。

【０３２０】

また、シリカを分散させる溶媒としては、特に限定されないが、メタノール、イソプロパノールなどのアルコールが好ましく、イソプロパノールがより好ましい。

【０３２１】
シリカゾルに含まれるシリカ（二次粒子）を構成する一次粒子の平均粒子径は、好ましくは１～１００ｎｍ、より好ましくは５～８０ｎｍである。
一次粒子の平均粒子径は、日本電子製透過電子顕微鏡ＪＥＭ２１００ＦＸで撮影した写真において、目視で５０個の一次粒子の粒子径（平均直径）を測定し、それらを平均した値を平均粒子径とした。
【０３２２】
なお、一次粒子の平均直径は、シリカ（二次粒子）が細長形状である場合、電子顕微鏡写真における、シリカ（二次粒子）の任意の５０箇所で測定した太さ（直径）の平均値として求めることができ、シリカ（二次粒子）がくびれを有した数珠状である場合、電子顕微鏡写真における、５０個の各数珠の直径の平均値として求めることができる。各数珠に長径と短径がある場合、即ち各数珠が細長状である場合は、短径を測定する。
【０３２３】
シリカゾルに含まれるシリカ（二次粒子）の平均粒子径は、好ましくは２０～３００ｎｍ、より好ましくは３０～１５０ｎｍである。シリカ（二次粒子）の平均粒子径は動的光散乱法によって測定することができ、具体的には、以下の方法により測定することができる。
シリカ（二次粒子）の平均粒子径は、大塚電子株式会社のレーザー粒子解析システムＥＬＳ－８０００（キュムラント解析）で測定した。測定条件は、温度２５℃、入射光と検出器との角度９０°、積算回数１００回であり、分散溶媒の屈折率として水の屈折率（１．３３３）を入力する。測定濃度は、通常５×１０$^{-3}$質量％程度で行った。
【０３２４】
上記シリカ（二次粒子）は、例えば、国際公開第００／１５５５２号パンフレットの請求の範囲第２項、及びそれに関する明細書の開示部分に記載の方法、特許第２８０３１３４号公報、特許第２９２６９１５公報の請求項２及びそれに関する明細書の開示部分に記載の方法などに準じて製造することができる。
【０３２５】
本発明に使用することができる上記シリカ（二次粒子）の具体例としては、日産化学工業株式会社製の「スノーテックス－ＯＵＰ」（平均二次粒子径：４０～１００ｎｍ）、同「スノーテックス－ＵＰ」（平均二次粒子径：４０～１００ｎｍ）、同「スノーテックスＰＳ－Ｍ」（平均二次粒子径：８０～１５０ｎｍ）、同「スノーテックスＰＳ－ＭＯ」（平均二次粒子径：８０～１５０ｎｍ）、同「スノーテックスＰＳ－Ｓ」（平均二次粒子径：８０～１２０ｎｍ）、同「スノーテックスＰＳ－ＳＯ」（平均二次粒子径：８０～１２０ｎｍ）、「ＩＰＡ－ＳＴ－ＵＰ」（平均二次粒子径：４０～１００ｎｍ）、扶桑化学工業株式会社製の「クォートロンＰＬ－７」（平均二次粒子径：１３０ｎｍ）などが挙げられる。なかでも、好適にストラクチャーシリカを形成できるという理由から、ＩＰＡ－ＳＴ－ＵＰが好ましい。
【０３２６】
本発明のゴム組成物は、トラック・バスタイヤ（重荷重タイヤ）の各部材に使用することができ、特に、トレッドに好適に使用することができる。
【０３２７】
本発明のトラック・バスタイヤは、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、未加硫の段階で所望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、本発明のトラック・バスタイヤを製造できる。
【実施例】
【０３２８】
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。

【０３２９】
１．重量平均分子量（Ｍｗ）
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）を測定した。
（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
【０３３０】
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。
【０３３１】
３．シリカの平均１次粒子径、平均長及び平均アスペクト比
試験用タイヤのトレッドからサンプルを切り出し、該サンプル中に分散したシリカを透過型電子顕微鏡で観察し、シリカの平均１次粒子径（Ｄ）、分岐粒子Ｚを含む分岐粒子間Ｚ－Ｚの平均長（図２におけるＷ^{1}）、分岐粒子Ｚを含まない分岐粒子間Ｚ－Ｚの平均長（図２におけるＷ^{2}）、分岐粒子Ｚを含む分岐粒子間Ｚ－Ｚの平均アスペクト比（Ｗ^{1}／Ｄ）、分岐粒子Ｚを含まない分岐粒子間Ｚ－Ｚの平均アスペクト比（Ｗ^{2}／Ｄ）を算出した。数値は、３０箇所を測定した平均値とした。
【０３３２】
４．ｔａｎδ
シート状の加硫ゴム組成物から幅１ｍｍ又は２ｍｍ、長さ４０ｍｍ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１０Ｈｚ、温度５０℃でｔａｎδを測定した。ｔａｎδ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。
【０３３３】
５．耐摩耗性
試験用タイヤを国産２－Ｄ車に装着し、走行距離５万ｋｍ後のタイヤトレッド部の溝深さを測定し、タイヤ溝深さが１ｍｍ減るときの走行距離を算出し、下記の式により指数表示した。指数が大きいほど、耐摩耗性が良好である。
（耐摩耗性指数）＝（各配合の走行距離）／（比較例１の走行距離）×１００
【０３３４】
６．ゴム強度
試験用タイヤのトレッドから切り出したゴム試験片に対してＪＩＳ Ｋ６２５１に準じて引張試験を行い、破断伸び（破断強度）を測定した。測定結果を、比較例１を１００として指数表示した。指数が大きいほどゴム強度（破壊強度）が良好である。
【０３３５】
７．ウェットグリップ性能
作製した加硫ゴム組成物から、幅２０ｍｍ及び直径１００ｍｍの円筒形に成形したゴム試験片を作製し、（株）上島製作所製のフラットベルト式摩擦試験機（ＦＲ５０１０型）を使用して、速度２０ｋｍ／ｈ、荷重４ｋｇｆ、外気温度３０℃、水温２５℃の条件下で、湿潤路面に対するサンプルのスリップ率を０～７０％まで変化させ、その際に検出される摩擦係数の最大値を読み取り、下記計算式により、各配合のウェットグリップ性能を指数表示した。指数が大きいほど、ウェットグリップ性能に優れていることを示す。

（ウェットグリップ性能指数）＝（各配合の最大摩擦係数）／（比較例１の最大摩擦係数）×１００
【０３３６】
８．ドライグリップ性能
作製した加硫ゴム組成物から、幅２０ｍｍ及び直径１００ｍｍの円筒形に成形したゴム試験片を作製し、（株）上島製作所製のフラットベルト式摩擦試験機（ＦＲ５０１０型）を使用して、速度２０ｋｍ／ｈ、荷重４ｋｇｆ、外気温度３０℃の条件下で、乾燥路面に対するサンプルのスリップ率を０～５０％まで変化させ、その際に検出される摩擦係数の最大値を読み取り、下記計算式により、各配合のドライグリップ性能を指数表示した。指数が大きいほど、ドライグリップ性能に優れていることを示す。
（ドライグリップ性能指数）＝（各配合の最大摩擦係数）／（比較例１の最大摩擦係数）×１００
【０３３７】
製造例１（重合体１の合成）
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、ヘキサン（比重０．６８ｇ／ｃｍ^3）１０．２ｋｇ、１，３－ブタジエン５４７ｇ、テトラヒドロフラン３．０ｍｌ、エチレングリコールジエチルエーテル２．０ｍｌ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１１．１ｍｍｏｌ及びｎ－ブチルリチウム１３．１ｍｍｏｌを、それぞれ、シクロヘキサン溶液及び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、単量体を重合反応器内に連続的に供給しながら、１，３－ブタジエンの重合を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。
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、スチームストリッピングによって重合体溶液から重合体１を回収した。重合体１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重合体中の式（Ｉ）で表される構成単位の含有量は、重合体単位質量あたり０．００８ｍｍｏｌ／ｇ重合体であった。
【０３３８】
製造例２（重合体２の合成）
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、ヘキサン（比重０．６８ｇ／ｃｍ^3）１０．２ｋｇ、１，３－ブタジエン５４７ｇ、テトラヒドロフラン３．０ｍｌ、エチレングリコールジエチルエーテル２．０ｍｌ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１０．５ｍｍｏｌ及びｎ－ブチルリチウム１３．４ｍｍｏｌを、それぞれシクロヘキサン溶液及びｎ－ヘキサン溶液として投入し、１，３－ブタジエンの重合を１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、単量体を重合反応器内に連続的に供給した。該１時間の重合後、ビス（ジエチルアミノ）メチルビニルシラン１０．５ｍｍｏｌをシクロヘキサン溶液として、撹拌速度を１３０ｒｐｍ、重合反応器内温度を６５℃の条件下で、重合反応器内に投入した。
次に、重合反応器内に連続的に単量体を供給し、１，３－ブタジエンの重合を０．５時間行った。重合中、撹拌速度を１３０ｒｐｍ、重合反応器内温度を６５℃とした。
該０．５時間の重合後、ビス（ジエチルアミノ）メチルビニルシラン１０．５ｍｍｏｌをシクロヘキサン溶液として、撹拌速度を１３０ｒｐｍ、重合反応器内温度を６５℃の条件

下で、重合反応器内に投入した。
次に、重合反応器内に連続的に単量体を供給し、１，３－ブタジエンの重合を０．５時間行った。重合中、撹拌速度を１３０ｒｐｍ、重合反応器内温度を６５℃とした。全重合での１，３－ブタジエンの供給量は８２１ｇ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。
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、スチームストリッピングによって重合体溶液から重合体２を回収した。重合体２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重合体中の式（Ｉ）で表される構成単位の含有量は、重合体単位質量あたり０．０１７ｍｍｏｌ／ｇ重合体であった。

【０３３９】

製造例３（重合体３の合成）
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、ヘキサン（比重０．６８ｇ／ｃｍ^3）１０．２ｋｇ、１，３－ブタジエン５４７ｇ、テトラヒドロフラン３．０ｍｌ、エチレングリコールジエチルエーテル２．０ｍｌ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１１．１ｍｍｏｌ及びｎ－ブチルリチウム１３．１ｍｍｏｌを、それぞれ、シクロヘキサン溶液及び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、単量体を重合反応器内に連続的に供給しながら、１，３－ブタジエンの重合を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、１，３－ジメチル－２－イミダゾリジノン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。
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、スチームストリッピングによって重合体溶液から重合体３を回収した。重合体３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重合体中の式（Ｉ）で表される構成単位の含有量は、重合体単位質量あたり０．００８ｍｍｏｌ／ｇ重合体であった。

【０３４０】

製造例４（重合体４の合成）
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、ヘキサン（比重０．６８ｇ／ｃｍ^3）１０．２ｋｇ、１，３－ブタジエン５４７ｇ、テトラヒドロフラン３．０ｍｌ、エチレングリコールジエチルエーテル２．０ｍｌ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１０．５ｍｍｏｌ及びｎ－ブチルリチウム１３．４ｍｍｏｌを、それぞれシクロヘキサン溶液及びｎ－ヘキサン溶液として投入し、１，３－ブタジエンの重合を１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、単量体を重合反応器内に連続的に供給した。該１時間の重合後、ビス（ジエチルアミノ）メチルビニルシラン１０．５ｍｍｏｌをシクロヘキサン溶液として、撹拌速度を１３０ｒｐｍ、重合反応器内温度を６５℃の条件下で、重合反応器内に投入した。

次に、重合反応器内に連続的に単量体を供給し、１，３－ブタジエンの重合を０．５時間行った。重合中、撹拌速度を１３０ｒｐｍ、重合反応器内温度を６５℃とした。
該０．５時間の重合後、ビス（ジエチルアミノ）メチルビニルシラン１０．５ｍｍｏｌをシクロヘキサン溶液として、撹拌速度を１３０ｒｐｍ、重合反応器内温度を６５℃の条件下で、重合反応器内に投入した。
次に、重合反応器内に連続的に単量体を供給し、１，３－ブタジエンの重合を０．５時間行った。重合中、撹拌速度を１３０ｒｐｍ、重合反応器内温度を６５℃とした。全重合での１，３－ブタジエンの供給量は８２１ｇ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、１，３－ジメチル－２－イミダゾリジノン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。
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、スチームストリッピングによって重合体溶液から重合体４を回収した。重合体４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重合体中の式（Ｉ）で表される構成単位の含有量は、重合体単位質量あたり０．０１７ｍｍｏｌ／ｇ重合体であった。

【０３４１】

製造例５（重合体５の合成）

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、ヘキサン（比重０．６８ｇ／ｃｍ^3）１０．２ｋｇ、１，３－ブタジエン５４７ｇ、テトラヒドロフラン３．０ｍｌ、エチレングリコールジエチルエーテル２．０ｍｌ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１１．１ｍｍｏｌ及びｎ－ブチルリチウム１３．１ｍｍｏｌを、それぞれ、シクロヘキサン溶液及び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、単量体を重合反応器内に連続的に供給しながら、１，３－ブタジエンの重合を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、Ｎ－（３－ジメチルアミノプロピル）アクリルアミド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。
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、スチームストリッピングによって重合体溶液から重合体５を回収した。重合体５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重合体中の式（Ｉ）で表される構成単位の含有量は、重合体単位質量あたり０．００８ｍｍｏｌ／ｇ重合体であった。

【０３４２】

製造例６（重合体６の合成）

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、ヘキサン（比重０．６８ｇ／ｃｍ^3）１０．２ｋｇ、１，３－ブタジエン５４７ｇ、テトラヒドロフラン３．０ｍｌ、エチレングリコールジエチルエーテル２．０ｍｌ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１０．５ｍｍｏｌ及びｎ－ブチルリチウム１３．４ｍｍｏｌを、それぞれシクロヘキサン溶液及びｎ－ヘキサン溶液として投入し、１，３－ブタジエンの重合を１時間行った。重合中、撹拌速度を１３

０ｒｐｍ、重合反応器内温度を６５℃とし、単量体を重合反応器内に連続的に供給した。該１時間の重合後、ビス（ジエチルアミノ）メチルビニルシラン１０．５ｍｍｏｌをシクロヘキサン溶液として、撹拌速度を１３０ｒｐｍ、重合反応器内温度を６５℃の条件下で、重合反応器内に投入した。
次に、重合反応器内に連続的に単量体を供給し、１，３－ブタジエンの重合を０．５時間行った。重合中、撹拌速度を１３０ｒｐｍ、重合反応器内温度を６５℃とした。
該０．５時間の重合後、ビス（ジエチルアミノ）メチルビニルシラン１０．５ｍｍｏｌをシクロヘキサン溶液として、撹拌速度を１３０ｒｐｍ、重合反応器内温度を６５℃の条件下で、重合反応器内に投入した。
次に、重合反応器内に連続的に単量体を供給し、１，３－ブタジエンの重合を０．５時間行った。重合中、撹拌速度を１３０ｒｐｍ、重合反応器内温度を６５℃とした。全重合での１，３－ブタジエンの供給量は８２１ｇ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、Ｎ－（３－ジメチルアミノプロピル）アクリルアミド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。
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、スチームストリッピングによって重合体溶液から重合体６を回収した。重合体６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重合体中の式（Ｉ）で表される構成単位の含有量は、重合体単位質量あたり０．０１７ｍｍｏｌ／ｇ重合体であった。

【０３４３】

製造例７（重合体７の合成）

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、ヘキサン（比重０．６８ｇ／ｃｍ^3）１０．２ｋｇ、１，３－ブタジエン５４７ｇ、テトラヒドロフラン３．０ｍｌ、エチレングリコールジエチルエーテル２．０ｍｌ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１１．１ｍｍｏｌ及びｎ－ブチルリチウム１３．１ｍｍｏｌを、それぞれ、シクロヘキサン溶液及び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、単量体を重合反応器内に連続的に供給しながら、１，３－ブタジエンの重合を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、１，３，５－トリス（３－トリメトキシシリルプロピル）イソシアヌレート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。
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、スチームストリッピングによって重合体溶液から重合体７を回収した。重合体７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重合体中の式（Ｉ）で表される構成単位の含有量は、重合体単位質量あたり０．００８ｍｍｏｌ／ｇ重合体であった。

【０３４４】

製造例８（重合体８の合成）

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、ヘキサン（比重０．６８ｇ／ｃｍ^3）１０．２ｋｇ、１，３－ブタジエン５４７ｇ、テトラ

ヒドロフラン３．０ｍｌ、エチレングリコールジエチルエーテル２．０ｍｌ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１０．５ｍｍｏｌ及びｎ－ブチルリチウム１３．４ｍｍｏｌを、それぞれシクロヘキサン溶液及びｎ－ヘキサン溶液として投入し、１，３－ブタジエンの重合を１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、単量体を重合反応器内に連続的に供給した。該１時間の重合後、ビス（ジエチルアミノ）メチルビニルシラン１０．５ｍｍｏｌをシクロヘキサン溶液として、撹拌速度を１３０ｒｐｍ、重合反応器内温度を６５℃の条件下で、重合反応器内に投入した。

次に、重合反応器内に連続的に単量体を供給し、１，３－ブタジエンの重合を０．５時間行った。重合中、撹拌速度を１３０ｒｐｍ、重合反応器内温度を６５℃とした。

該０．５時間の重合後、ビス（ジエチルアミノ）メチルビニルシラン１０．５ｍｍｏｌをシクロヘキサン溶液として、撹拌速度を１３０ｒｐｍ、重合反応器内温度を６５℃の条件下で、重合反応器内に投入した。

次に、重合反応器内に連続的に単量体を供給し、１，３－ブタジエンの重合を０．５時間行った。重合中、撹拌速度を１３０ｒｐｍ、重合反応器内温度を６５℃とした。全重合での１，３－ブタジエンの供給量は８２１ｇ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、１，３，５－トリス（３－トリメトキシシリルプロピル）イソシアヌレート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。

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、スチームストリッピングによって重合体溶液から重合体８を回収した。重合体８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重合体中の式（Ｉ）で表される構成単位の含有量は、重合体単位質量あたり０．０１７ｍｍｏｌ／ｇ重合体であった。

【０３４５】

製造例９（重合体９の合成）

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、ヘキサン（比重０．６８ｇ／ｃｍ^3）１０．２ｋｇ、１，３－ブタジエン５４７ｇ、テトラヒドロフラン３．０ｍｌ、エチレングリコールジエチルエーテル２．０ｍｌ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１１．１ｍｍｏｌ及びｎ－ブチルリチウム１３．１ｍｍｏｌを、それぞれ、シクロヘキサン溶液及び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、単量体を重合反応器内に連続的に供給しながら、１，３－ブタジエンの重合を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、Ｎ，Ｎ－ジメチルホルムアミドジメチルアセタール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。

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、スチームストリッピングによって重合体溶液から重合体９を回収した。重合体９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重合体中の式（Ｉ）で表される構成単位の含有量は、重合体単位質量あたり０．００８ｍｍｏｌ／ｇ重合体であった。

【０３４６】
製造例１０（重合体１０の合成）
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、ヘキサン（比重０．６８ｇ／ｃｍ^3）１０．２ｋｇ、１，３－ブタジエン５４７ｇ、テトラヒドロフラン３．０ｍｌ、エチレングリコールジエチルエーテル２．０ｍｌ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１０．５ｍｍｏｌ及びｎ－ブチルリチウム１３．４ｍｍｏｌを、それぞれシクロヘキサン溶液及びｎ－ヘキサン溶液として投入し、１，３－ブタジエンの重合を１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、単量体を重合反応器内に連続的に供給した。該１時間の重合後、ビス（ジエチルアミノ）メチルビニルシラン１０．５ｍｍｏｌをシクロヘキサン溶液として、撹拌速度を１３０ｒｐｍ、重合反応器内温度を６５℃の条件下で、重合反応器内に投入した。
次に、重合反応器内に連続的に単量体を供給し、１，３－ブタジエンの重合を０．５時間行った。重合中、撹拌速度を１３０ｒｐｍ、重合反応器内温度を６５℃とした。
該０．５時間の重合後、ビス（ジエチルアミノ）メチルビニルシラン１０．５ｍｍｏｌをシクロヘキサン溶液として、撹拌速度を１３０ｒｐｍ、重合反応器内温度を６５℃の条件下で、重合反応器内に投入した。
次に、重合反応器内に連続的に単量体を供給し、１，３－ブタジエンの重合を０．５時間行った。重合中、撹拌速度を１３０ｒｐｍ、重合反応器内温度を６５℃とした。全重合での１，３－ブタジエンの供給量は８２１ｇ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、Ｎ，Ｎ－ジメチルホルムアミドジメチルアセタール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。
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、スチームストリッピングによって重合体溶液から重合体１０を回収した。重合体１０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重合体中の式（Ｉ）で表される構成単位の含有量は、重合体単位質量あたり０．０１７ｍｍｏｌ／ｇ重合体であった。
【０３４７】
製造例１１（重合体１１の合成）
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、ヘキサン（比重０．６８ｇ／ｃｍ^3）１０．２ｋｇ、１，３－ブタジエン５４７ｇ、テトラヒドロフラン３．０ｍｌ、エチレングリコールジエチルエーテル２．０ｍｌを重合反応器内に投入した。次に、ｎ－ブチルリチウム１３．１ｍｍｏｌを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、単量体を重合反応器内に連続的に供給しながら、１，３－ブタジエンの重合を３時間行った。全重合での１，３－ブタジエンの供給量は８２１ｇであった。
次に、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。
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、スチームストリッピングによって重合体溶液から重合体１１を回収した。重合体１１の評価結果を表１に示す。なお、重合体１１は合成時に式（ＩＸ）で表される化合物を使用しなかったため、式（Ｉ）で表される構成単位を含有していなかった。

【０３４８】
【表１】

	重合体										
	1	2	3	4	5	6	7	8	9	10	11
重量平均分子量(×10^4)	42	40	42	41	42	42	40	41	43	41	39
ビニル結合量(モル%)	28	29	28	27	28	29	27	29	27	29	30

【０３４９】
ＮＲ：ＲＳＳ＃３
ＢＲ：宇部興産（株）製のウベポールＢＲ１５０Ｂ
重合体１～１０（変性ＢＲ）：上記製造例１～１０
重合体１１（非変性ＢＲ）：上記製造例１１
カーボンブラック：キャボットジャパン（株）製のショウブラックＮ２２０（N_2SA：１２０m^2／ｇ、ＤＢＰ吸収量：１１５ｍｌ／１００ｇ）
シリカ１：日産化学工業（株）製のオルガノシリカゾルＩＰＡ－ＳＴ－ＵＰ（細長い形状のイソプロパノール分散シリカゾル（動的光散乱法によって測定されたシリカ（二次粒子）の平均粒子径：４０～１００ｎｍ）、シリカ含有率：１５質量％）（表２～６に記載の量は、オルガノシリカゾル中のシリカ量を示す。）
シリカ２：デグッサ社製のウルトラシルＶＮ３－Ｇ（N_2SA：１７５m^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：大内新興化学工業（株）製のノクラック６Ｃ（Ｎ－（１，３－ジメチルブチル）－Ｎ’－フェニル－ｐ－フェニレンジアミン）
ワックス：大内新興化学工業（株）製のサンノックＮ
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ＣＺ：住友化学（株）製のソクシノールＣＺ（Ｎ－シクロヘキシル－２－ベンゾチアジルスルフェンアミド）
【０３５０】
（実施例及び比較例）
表２～６に示す配合内容に従い、（株）神戸製鋼所製の１．７Ｌ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、５０℃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１５０℃で３０分間、０．５ｍｍ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：１１Ｒ２２．５）を製造した。
【０３５１】
得られた加硫ゴム組成物及び試験用タイヤを使用して、上記試験方法により評価を行った。それぞれの試験結果を表２～６に示す。
【０３５２】

【表２】

		実施例		比較例			
		1	2	1	2	3	4
配合（質量部）	NR	60	60	60	60	60	60
	BR	20	20	20	20	20	20
	重合体1	―	20	―	―	―	20
	重合体2	20	―	―	―	20	―
	重合体11(非変性)	―	―	20	20	―	―
	カーボンブラック	30	30	30	30	30	30
	シリカ1	25	25	―	25	―	―
	シリカ2	―	―	25	―	25	25
	シランカップリング剤	2	2	2	2	2	2
	老化防止剤	1.5	1.5	1.5	1.5	1.5	1.5
	ワックス	1	1	1	1	1	1
	ステアリン酸	2	2	2	2	2	2
	酸化亜鉛	2.5	2.5	2.5	2.5	2.5	2.5
	硫黄	1.5	1.5	1.5	1.5	1.5	1.5
	加硫促進剤CZ	2	2	2	2	2	2
シリカ形状	シリカの平均一次粒子径（D、nm）	13	13	20	13	20	20
	分岐粒子を含まない分岐粒子間の平均長（W^2、nm）	42	42	24	42	24	24
	分岐粒子を含む分岐粒子間の平均長（W^1、nm）	55	55	24	55	24	24
	分岐粒子を含まない分岐粒子間の平均アスペクト比（W^2/D）	3.2	3.2	1.2	3.2	1.2	1.2
	分岐粒子を含む分岐粒子間の平均アスペクト比（W^1/D）	4.2	4.2	1.2	4.2	1.2	1.2
評価	tan δ 指数	140	130	100	95	123	118
	耐摩耗性指数	135	128	100	96	121	115
	ゴム強度指数	138	128	100	92	118	112
	ウェットグリップ性能指数	130	119	100	94	105	104
	ドライグリップ性能指数	120	110	100	90	94	96

【０３５３】

【表３】

		実施例		比較例			
		3	4	1	2	5	6
配合（質量部）	NR	60	60	60	60	60	60
	BR	20	20	20	20	20	20
	重合体3	―	20	―	―	―	20
	重合体4	20	―	―	―	20	―
	重合体11(非変性)	―	―	20	20	―	―
	カーボンブラック	30	30	30	30	30	30
	シリカ1	25	25	―	25	―	―
	シリカ2	―	―	25	―	25	25
	シランカップリング剤	2	2	2	2	2	2
	老化防止剤	1.5	1.5	1.5	1.5	1.5	1.5
	ワックス	1	1	1	1	1	1
	ステアリン酸	2	2	2	2	2	2
	酸化亜鉛	2.5	2.5	2.5	2.5	2.5	2.5
	硫黄	1.5	1.5	1.5	1.5	1.5	1.5
	加硫促進剤CZ	2	2	2	2	2	2
シリカ形状	シリカの平均一次粒子径（D、nm）	13	13	20	13	20	20
	分岐粒子を含まない分岐粒子間の平均長（W^2、nm）	42	42	24	42	24	24
	分岐粒子を含む分岐粒子間の平均長（W^1、nm）	55	55	24	55	24	24
	分岐粒子を含まない分岐粒子間の平均アスペクト比（W^2/D）	3.2	3.2	1.2	3.2	1.2	1.2
	分岐粒子を含む分岐粒子間の平均アスペクト比（W^1/D）	4.2	4.2	1.2	4.2	1.2	1.2
評価	tan δ 指数	130	124	100	95	118	114
	耐摩耗性指数	125	123	100	96	116	110
	ゴム強度指数	129	122	100	92	112	108
	ウェットグリップ性能指数	120	115	100	94	103	102
	ドライグリップ性能指数	115	107	100	90	91	94

【０３５４】

【表４】

		実施例		比較例			
		5	6	1	2	7	8
配合（質量部）	NR	60	60	60	60	60	60
	BR	20	20	20	20	20	20
	重合体5	―	20	―	―	―	20
	重合体6	20	―	―	―	20	―
	重合体11(非変性)	―	―	20	20	―	―
	カーボンブラック	30	30	30	30	30	30
	シリカ1	25	25	―	25	―	―
	シリカ2	―	―	25	―	25	25
	シランカップリング剤	2	2	2	2	2	2
	老化防止剤	1.5	1.5	1.5	1.5	1.5	1.5
	ワックス	1	1	1	1	1	1
	ステアリン酸	2	2	2	2	2	2
	酸化亜鉛	2.5	2.5	2.5	2.5	2.5	2.5
	硫黄	1.5	1.5	1.5	1.5	1.5	1.5
	加硫促進剤CZ	2	2	2	2	2	2
シリカ形状	シリカの平均一次粒子径（D、nm）	13	13	20	13	20	20
	分岐粒子を含まない分岐粒子間の平均長（W^2、nm）	42	42	24	42	24	24
	分岐粒子を含む分岐粒子間の平均長（W^1、nm）	55	55	24	55	24	24
	分岐粒子を含まない分岐粒子間の平均アスペクト比（W^2/D）	3.2	3.2	1.2	3.2	1.2	1.2
	分岐粒子を含む分岐粒子間の平均アスペクト比（W^1/D）	4.2	4.2	1.2	4.2	1.2	1.2
評価	tan δ 指数	145	135	100	95	125	119
	耐摩耗性指数	139	134	100	96	123	116
	ゴム強度指数	143	135	100	92	120	111
	ウェットグリップ性能指数	132	123	100	94	107	105
	ドライグリップ性能指数	124	118	100	90	94	95

【０３５５】

【表５】

		実施例		比較例			
		7	8	1	2	9	10
配合（質量部）	NR	60	60	60	60	60	60
	BR	20	20	20	20	20	20
	重合体7	―	20	―	―	―	20
	重合体8	20	―	―	―	20	―
	重合体11(非変性)	―	―	20	20	―	―
	カーボンブラック	30	30	30	30	30	30
	シリカ1	25	25	―	25	―	―
	シリカ2	―	―	25	―	25	25
	シランカップリング剤	2	2	2	2	2	2
	老化防止剤	1.5	1.5	1.5	1.5	1.5	1.5
	ワックス	1	1	1	1	1	1
	ステアリン酸	2	2	2	2	2	2
	酸化亜鉛	2.5	2.5	2.5	2.5	2.5	2.5
	硫黄	1.5	1.5	1.5	1.5	1.5	1.5
	加硫促進剤CZ	2	2	2	2	2	2
シリカ形状	シリカの平均一次粒子径（D、nm）	13	13	20	13	20	20
	分岐粒子を含まない分岐粒子間の平均長（W^2、nm）	42	42	24	42	24	24
	分岐粒子を含む分岐粒子間の平均長（W^1、nm）	55	55	24	55	24	24
	分岐粒子を含まない分岐粒子間の平均アスペクト比（W^2/D）	3.2	3.2	1.2	3.2	1.2	1.2
	分岐粒子を含む分岐粒子間の平均アスペクト比（W^1/D）	4.2	4.2	1.2	4.2	1.2	1.2
評価	tan δ 指数	128	122	100	95	120	114
	耐摩耗性指数	124	117	100	96	115	107
	ゴム強度指数	128	120	100	92	110	104
	ウェットグリップ性能指数	122	114	100	94	102	102
	ドライグリップ性能指数	110	105	100	90	90	91

【０３５６】

【表６】

		実施例		比較例			
		9	10	1	2	11	12
配合（質量部）	NR	60	60	60	60	60	60
	BR	20	20	20	20	20	20
	重合体9	―	20	―	―	―	20
	重合体10	20	―	―	―	20	―
	重合体11(非変性)	―	―	20	20	―	―
	カーボンブラック	30	30	30	30	30	30
	シリカ1	25	25	―	25	―	―
	シリカ2	―	―	25	―	25	25
	シランカップリング剤	2	2	2	2	2	2
	老化防止剤	1.5	1.5	1.5	1.5	1.5	1.5
	ワックス	1	1	1	1	1	1
	ステアリン酸	2	2	2	2	2	2
	酸化亜鉛	2.5	2.5	2.5	2.5	2.5	2.5
	硫黄	1.5	1.5	1.5	1.5	1.5	1.5
	加硫促進剤CZ	2	2	2	2	2	2
シリカ形状	シリカの平均一次粒子径（D、nm）	13	13	20	13	20	20
	分岐粒子を含まない分岐粒子間の平均長（W^2、nm）	42	42	24	42	24	24
	分岐粒子を含む分岐粒子間の平均長（W^1、nm）	55	55	24	55	24	24
	分岐粒子を含まない分岐粒子間の平均アスペクト比（W^2/D）	3.2	3.2	1.2	3.2	1.2	1.2
	分岐粒子を含む分岐粒子間の平均アスペクト比（W^1/D）	4.2	4.2	1.2	4.2	1.2	1.2
評価	tanδ指数	125	120	100	95	117	111
	耐摩耗性指数	127	118	100	96	115	106
	ゴム強度指数	124	114	100	92	110	110
	ウェットグリップ性能指数	118	109	100	94	101	104
	ドライグリップ性能指数	108	107	100	90	90	93

【０３５７】

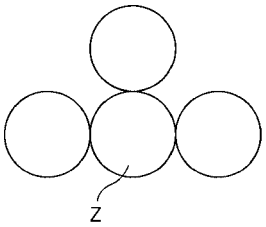
表２～６に示すように、共役ジエンに基づく構成単位と上記式（Ｉ）で表される構成単位とを有し、かつ特定の化合物によって末端が変性された重合体（重合体１～１０）と、W^1が特定の範囲内のストラクチャーシリカ（シリカ１を混練りして得られたもの）とを配合した実施例のゴム組成物は、比較例のゴム組成物に比べて、低燃費性、耐摩耗性及びゴム強度が相乗的に改善し、これらの性能が高次元でバランス良く得られた。また、ウェットグリップ性能及びドライグリップ性能も良好であった。

【符号の説明】

【０３５８】

Ｚ　分岐粒子

【図１】



【図２】

