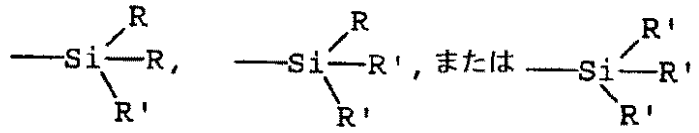
【公報種別】特許法第１７条の２の規定による補正の掲載
【部門区分】第２部門第５区分
【発行日】平成19年10月11日(2007.10.11)

【公表番号】特表2003-510208(P2003-510208A)
【公表日】平成15年3月18日(2003.3.18)
【出願番号】特願2001-525280(P2001-525280)
【国際特許分類】
Ｂ６０Ｃ　15/06　(2006.01)
Ｃ０８Ｋ　9/06　(2006.01)
Ｃ０９Ｃ　1/28　(2006.01)
Ｃ０９Ｃ　3/08　(2006.01)
Ｃ０９Ｃ　3/12　(2006.01)
【ＦＩ】
Ｂ６０Ｃ　15/06　Ｂ
Ｃ０８Ｋ　9/06
Ｃ０９Ｃ　1/28
Ｃ０９Ｃ　3/08
Ｃ０９Ｃ　3/12

【手続補正書】
【提出日】平成19年8月17日(2007.8.17)
【手続補正１】
【補正対象書類名】明細書
【補正対象項目名】特許請求の範囲
【補正方法】変更
【補正の内容】
【特許請求の範囲】
【請求項１】　沈降シリカ、コロイダルシリカまたはそれらの混合物から選択されるアモルファスまたは粒子状無機酸化物の酸性水性分散体とカップリング剤とを必要に応じて界面活性剤および／または水混和性溶剤の存在下に接触させて、化学変性フィラーの酸性水性分散剤を形成し、次いで該フィラーを回収することによる化学変性フィラーを製造する方法において、前記カップリング剤として(ａ)ビス(アルコキシシリルアルキル)ポリスルフィドおよび(ｂ)非イオウ性有機金属化合物との組合せを(ａ)：(ｂ)の重量比少なくとも０．０５：１でｐＨ２．５以下を有する無機酸化物の水性分散剤中で用い、化学変性フィラーの酸性水性分散剤を酸中和剤と処理して、分散剤ｐＨを３～１０の範囲に上昇することを特徴とする、化学変性フィラーの製造方法。
【請求項２】　ビス(アルコキシシリルアルキル)ポリスルフィドが式Ｉ：
【化１】

$$Z\text{-}alk\text{-}S_{n'}\text{-}alk\text{-}Z, \qquad I$$

（式中、alkは炭素数１～１８を有する二価の炭化水素基であり、ｎ'は２～１２の整数を示し、およびＺは：
【化２】



（式中、ＲはＣ$_1$－Ｃ$_4$アルキルまたはフェニル基であり、Ｒ'はＣ$_1$－Ｃ$_8$アルコキシ、Ｃ$_5$－Ｃ$_8$シクロアルコキシ、またはＣ$_1$－Ｃ$_8$アルキルメルカプト基を示す。）を示す。）
で表される請求項１記載の方法。
【請求項３】　ビス(アルコキシシリルアルキル)ポリスルフィドが３，３'－ビス(トリメトキシシリルプロピル)ジスルフィド、３，３'－ビス(トリエトキシシリルプロピル)テトラスルフィド、３，３'－ビス(トリメトキシシリルプロピル)テトラスルフィド、２，２'－ビス(トリエトキシシリルエチル)テトラスルフィド、３，３'－ビス(トリメトキシシリルプロピル)トリスルフィド、３，３'－ビス(トリエトキシシリルプロピル)トリスルフィド、３，３'－ビス(トリブトキシシリルプロピル)ジスルフィド、３，３'－ビス(トリメトキシシリルプロピル)ヘキサスルフィド、３，３'－ビス(トリオクトキシシリルプロピル)テトラスルフィドおよびそれらの混合物からなる群から選択される請求項２記載の方法。
【請求項４】　非イオウ有機金属化合物が、式ＩＩ：
【化３】

$$R^1{}_aMX_{(4-a)} \quad II$$

で表される有機金属化合物、式ＩＩＩ：
【化４】

$$R^2{}_{2c+2}Si_cO_{(c-1)} \quad III$$

で表される有機金属化合物、式ＩＶ：
【化５】

$$R^3{}_{2d}Si_dO_d \quad IV$$

で表される有機金属化合物、式Ｖ：
【化６】

$$(R^2{}_3Si)_kNR^4{}_{(3-k)} \quad V$$

で表される有機金属化合物およびそれらの有機金属化合物の混合物から成る群から選択され、式中、各々Ｍは独立してケイ素、チタンまたはジルコニウムであり、各々Ｒ^{1}は独立して炭素数１～１８の炭化水素基であり、またはＲ^{1}は炭素数１～１２の有機官能性炭化水素基であり、該官能性がアミノ、カルボキシル酸、カルビノールエステルまたはアミドであり、各々Ｘが独立してハロゲン、アミノ、炭素数１～１２のアルコキシ基および炭素数１～１２のアシロキシ基からなる群から選択され、ａが１、２または３の整数であり、

各々R^2が独立してハロ、ヒドロキシ、または炭素数１～１８を有する炭化水素基であり、ただし、少なくとも５０モル％のR^2置換基が炭素数１～１８の炭化水素基であり、ｃが２～１０,０００の整数であり、各々R^3が独立してハロ、ヒドロキシ、または炭素数１～１８を有する炭化水素基であり、ｄが３～２０の整数であり、各R^4が独立して水素または炭素数１～１８を有する炭化水素基であり、ｋが１または２であり、前記ハロおよびハロゲンがクロロ、フルオロ、ブロモまたはヨードから選択される請求項１記載の方法。

【請求項５】　非イオウ有機金属化合物が、ジエチルジクロロシラン、アリルメチルジクロロシラン、メチルフェニルジクロロシラン、フェニルエチルジエトキシシラン、３,３,３－トリフルオロプロピルメチルジクロロシラン、トリメチルブトキシシラン、シム（ｓｙｍ）－ジフェニルテトラメチルジシロキサン、トリビニルトリメチルシクロトリシロキサン、オクタメチルシクロテトラシロキサン、ヘキサエチルジシロキサン、ペンチルメチルジクロロシラン、ジビニルジプロポキシシラン、ビニルジメチルクロロシラン、ビニルメチルジクロロシラン、ビニルジメチルメトキシシラン、トリメチルクロロシラン、トリメチルメトキシシラン、トリメチルエトキシシラン、メチルトリクロロシラン、メチルトリメトキシシラン、メチルトリエトキシシラン、ヘキサメチルジシロキサン、ヘキサメチルジクロロシラン、ヘキセニルジメチルクロロシラン、ジメチルクロロシラン、ジメチルジクロロシラン、ジメチルジメトキシシラン、ジメチルジエトキシシラン、ヘキサメチルジシラザン、トリビニルトリメチルシクロトリシラザン、３～約２０のジメチルシロキサンユニットを有するポリジメチルシクロシロキサン、テトラ(C_1－C_{18})アルコキシチタネート、メチルトリエトキシチタン(iv)、メチルチタン(iv)トリイソプロポキシド、メチルチタン(iv)トリブトキシド、メチルチタン(iv)トリ－ｔ－ブトキシド、イソプロピルチタン(iv)トリブトキシド、ブチルチタン(iv)トリエトキシド、ブチルチタン(iv)トリブトキシド、フェニルチタン(iv)トリイソプロポキシド、フェニルチタン(iv)トリブトキシド、フェニルチタン(iv)トリイソブトキシド、［$Ti(CH_2Ph)_3(NC_5H_{10})$］、［$Ti(CH_2SiMe_3)_2(NEt_2)_2$］、テトラ($C_1$－$C_{18}$)アルコキシジルコネート、フェニルジルコニウム(iv)トリクロリド、メチルジルコニウム(iv)トリクロリド、エチルジルコニウム(iv)トリクロリド、プロピルジルコニウム(iv)トリクロリド、メチルジルコニウム(iv)トリブロミド、エチルジルコニウム(iv)トリブロミド、プロピルジルコニウム(iv)トリブロミド、クロロトリペンチルジルコニウム(iv)およびそのような有機金属化合物の混合体からなる群からなる選択される請求項１記載の方法。

【請求項６】　前記非イオウ有機金属化合物が式ＩＩ、ＩＩＩ、ＩＶ、Ｖまたはそれらの有機金属化合物の混合物で表され、各Ｍがケイ素である請求項４記載の方法。

【請求項７】　前記非イオウ有機金属化合物が式ＩＩで表され、式中R^1がC_1－C_6アルキル、Ｘがクロロであり、ａが２であり、無機酸化物が沈降シリカである請求項４記載の方法。

【請求項８】　前記(ａ)：(ｂ)の重量比が０.０５：１～１０：１である請求項１記載の方法。

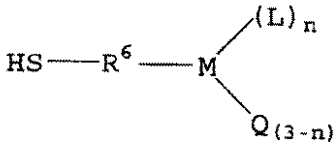
【請求項９】　前記(ａ)：(ｂ)の重量比が０.２：１～２：１である請求項７記載の方法。

【請求項１０】　（ａ）ビス(アルコキシシリルアルキル)ポリスルフィドがビス(アルコキシシリルアルキル)ポリスルフィドとメルカプト有機金属物質とのビス(アルコキシシリルアルキル)ポリスルフィド：メルカプト有機金属物質の重量比が少なくとも１：１より大きい組合せで置き換えられる請求項１記載の方法。

【請求項１１】　前記ビス(アルコキシシリルアルキル)ポリスルフィド：メルカプト有機金属物質の重量比が５：１～５０：１であり、無機酸化物が沈降シリカである請求項１０記載の方法。

【請求項１２】　メルカプト有機金属物質が式ＶＩＩ：

【化７】



VII

（式中、Ｍはケイ素であり、Ｌはハロゲンまたは－ＯＲ^{7}であり、Ｑは水素、Ｃ$_{1}$－Ｃ$_{12}$アルキルまたはハロ置換Ｃ$_{1}$－Ｃ$_{12}$アルキルであり、Ｒ^{6}はＣ$_{1}$－Ｃ$_{12}$アルキレンであり、Ｒ^{7}はＣ$_{1}$－Ｃ$_{12}$アルキルまたは炭素数２～１２のアルコキシアルキルであり、前記ハロゲンまたは(ハロ)基はクロロ、ブロモ、ヨードまたはフルオロであり、ｎは１、２または３である。）
で表される請求項１０記載の方法。

【請求項１３】　Ｌが－ＯＲ^{7}であり、Ｒ^{6}がＣ$_{1}$－Ｃ$_{3}$アルキレンであり、Ｒ^{7}がＣ$_{1}$－Ｃ$_{4}$アルキルであり、ｎが３である請求項１２記載の方法。

【請求項１４】　メルカプト有機金属物質のメルカプト基がブロックされて請求項１２記載の方法。

【請求項１５】　前記メルカプト有機金属物質が、メルカプトメチルトリメトキシシラン、メルカプトエチルトリメトキシシラン、メルカプトプロピルトリメトキシシラン、メルカプトメチルトリエトキシシラン、メルカプトエチルトリプロポキシシラン、メルカプトプロピルトリエトキシシラン、(メルカプトメチル)ジメチルエトキシシラン、(メルカプトメチル)メチルジエトキシシラン、３－メルカプトプロピルメチルジメトキシシランおよびそれらの混合物から選択される請求項１１記載の方法。

【請求項１６】　請求項１記載の方法により得られた製品。

【請求項１７】　請求項１０記載の方法により得られた製品。

【請求項１８】　請求項１４記載の方法により得られた製品。