

(19) 日本国特許庁(JP)

(12) 特 許 公 報(B2)

(11) 特許番号

特許第6030476号
(P6030476)

(45) 発行日 平成28年11月24日(2016.11.24)

(24) 登録日 平成28年10月28日(2016.10.28)

(51) Int. Cl.		F I	
CO8L	15/00	(2006.01)	CO8L 15/00
CO8K	3/36	(2006.01)	CO8K 3/36
CO8K	5/54	(2006.01)	CO8K 5/54
CO8K	5/36	(2006.01)	CO8K 5/36
B60C	1/00	(2006.01)	B60C 1/00

A
請求項の数 8 (全 55 頁)

(21) 出願番号	特願2013-34665 (P2013-34665)	(73) 特許権者	000183233 住友ゴム工業株式会社
(22) 出願日	平成25年2月25日(2013.2.25)		兵庫県神戸市中央区脇浜町3丁目6番9号
(65) 公開番号	特開2014-162845 (P2014-162845A)	(74) 代理人	110000914 特許業務法人 安富国際特許事務所
(43) 公開日	平成26年9月8日(2014.9.8)	(72) 発明者	河地 貴浩 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
審査請求日	平成27年11月25日(2015.11.25)	(72) 発明者	時宗 隆一 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
		審査官	上前 明梨

最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 トレッド用ゴム組成物及び空気入りタイヤ

(57) 【特許請求の範囲】

【請求項1】

ゴム成分と、シリカと、下記式(Ⅰ)で表される化合物とを含有し、
前記ゴム成分100質量%中、共役ジエンに基づく単量体単位、下記式(1)で表される化合物に基づく単量体単位、及び、下記式(2)で表される化合物に基づく単量体単位を有する共重合体の一端に、アルコキシシラン化合物を反応させて得られる共役ジエン系重合体の含有量が5質量%以上であり、
前記ゴム成分100質量部に対して、前記シリカの含有量が5~150質量部、下記式(Ⅰ)で表される化合物の含有量が5~23質量部であるトレッド用ゴム組成物。

【化1】



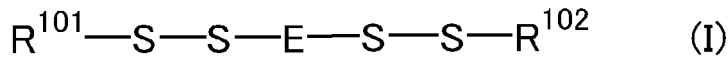
(式中、V¹は重合性炭素-炭素二重結合を有するヒドロカルビル基を表し、S¹は置換シリル基を表す。)

【化2】



(式中、V²は重合性炭素-炭素二重結合を有するヒドロカルビル基を表し、A²は置換アミノ基、又は、含窒素複素環基を表す。)

【化3】

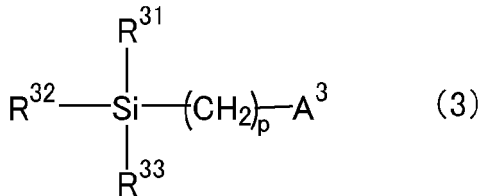


[式中、E は炭素数 2 ~ 10 のアルキレン基、 R^{101} 及び R^{102} は、同一若しくは異なって、窒素原子を含む 1 価の有機基を表す。]

【請求項2】

前記アルコキシシラン化合物が下記式(3)で表される化合物である請求項1記載のトレッド用ゴム組成物。

【化4】



10

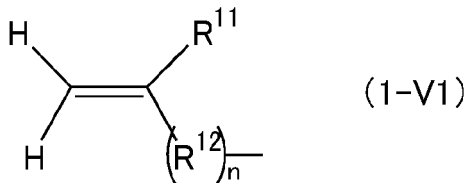
(式中、p は 1 ~ 10 の整数を表し、 R^{31} 、 R^{32} 及び R^{33} は、それぞれ独立にアルキル基又はアルコキシ基を表し、 R^{31} 、 R^{32} 及び R^{33} の少なくとも 1 つがアルコキシ基であり、 A^3 は置換アミノ基を表す。)

【請求項3】

式(1)中の V^1 で表される基が下記式(1-V1)で表される基であり、式(1)中の S^1 で表される基が下記式(1-S)で表される基である請求項1又は2記載のトレッド用ゴム組成物。

20

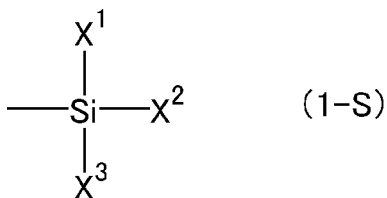
【化5】



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

30

【化6】



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

40

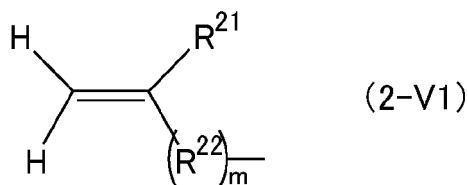
【請求項4】

式(1-V1)の R^{11} が水素原子であり、n が 0 である請求項3記載のトレッド用ゴム組成物。

【請求項5】

式(2)中の V^2 で表される基が、下記式(2-V1)で表される基である請求項1~4のいずれかに記載のトレッド用ゴム組成物。

【化 7】

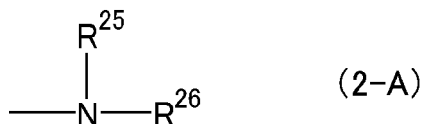


(式中、 R^{21} は水素原子又はヒドロカルビル基を表し、 m は 0 又は 1 であり、 R^{22} はヒドロカルビレン基を表す。)

【請求項 6】

式 (2) 中の A^2 の置換アミノ基が下記式 (2-A) で表される基である請求項 1 ~ 5 のいずれかに記載のトレッド用ゴム組成物。

【化 8】



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

【請求項 7】

前記共役ジエン系重合体のビニル結合量が、共役ジエンに基づく構成単位の含有量を 100 モル%として、20 モル%以上 70 モル%以下である請求項 1 ~ 6 のいずれかに記載のトレッド用ゴム組成物。

【請求項 8】

請求項 1 ~ 7 のいずれかに記載のゴム組成物を用いて作製した空気入りタイヤ。

【発明の詳細な説明】

【技術分野】

【0001】

本発明は、トレッド用ゴム組成物及びそれを用いて作製した空気入りタイヤに関するものである。

【背景技術】

【0002】

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

【0003】

低燃費性を改善する方法として、例えば、特許文献 1 では、アミノ基及びアルコキシ基を含有する有機ケイ素化合物で変性されたジエン系ゴム (変性ゴム) を用いる方法が提案されている。しかし、近年では、環境問題への関心の高まりにより、更なる低燃費性の改善が求められている。また、自動車タイヤ用のゴム組成物に要求される性能としては、ウェットグリップ性能や耐摩耗性も挙げられるが、これらの性能は一般的に低燃費性と相反する関係にあり、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】

10

20

30

40

50

【特許文献1】特開2000-344955号公報

【発明の概要】

【発明が解決しようとする課題】

【0005】

本発明は、前記課題を解決し、低燃費性、ウェットグリップ性能及び耐摩耗性をバランス良く改善できるトレッド用ゴム組成物、及びこれを用いた空気入りタイヤを提供することを目的とする。

【課題を解決するための手段】

【0006】

本発明は、ゴム成分と、シリカと、下記式(Ⅰ)で表される化合物とを含有し、上記ゴム成分100質量%中、共役ジエンに基づく単量体単位、下記式(1)で表される化合物に基づく単量体単位、及び、下記式(2)で表される化合物に基づく単量体単位を有する共重合体の一端に、アルコキシシラン化合物を反応させて得られる共役ジエン系重合体の含有量が5質量%以上であり、上記ゴム成分100質量部に対して、上記シリカの含有量が5～150質量部、下記式(Ⅰ)で表される化合物の含有量が5～23質量部であるトレッド用ゴム組成物に関する。

10

【化1】



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

20

【化2】

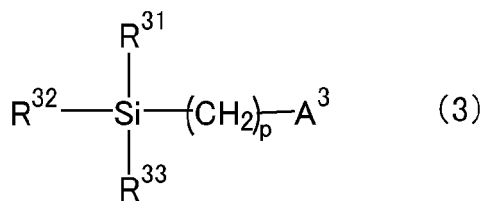


(式中、 V^2 は重合性炭素-炭素二重結合を有するヒドロカルビル基を表し、 A^2 は置換アミノ基、又は、含窒素複素環基を表す。)

【0007】

上記アルコキシシラン化合物が下記式(3)で表される化合物であることが好ましい。

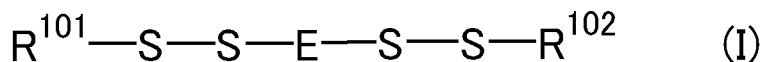
【化3】



30

(式中、 p は1～10の整数を表し、 R^{31} 、 R^{32} 及び R^{33} は、それぞれ独立にアルキル基又はアルコキシ基を表し、 R^{31} 、 R^{32} 及び R^{33} の少なくとも1つがアルコキシ基であり、 A^3 は置換アミノ基を表す。)

【化4】



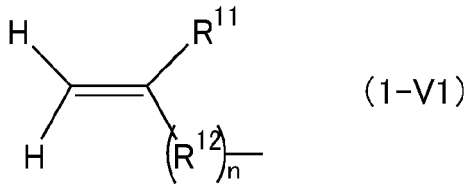
40

[式中、 E は炭素数2～10のアルキレン基、 R^{101} 及び R^{102} は、同一若しくは異なって、窒素原子を含む1価の有機基を表す。]

【0008】

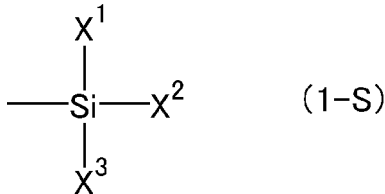
式(1)中の V^1 で表される基が下記式(1-V1)で表される基であり、式(1)中の S^1 で表される基が下記式(1-S)で表される基であることが好ましい。

【化5】



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

【化6】



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

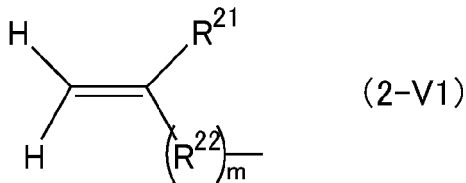
【0009】

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

【0010】

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

【化7】

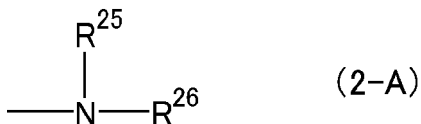


(式中、 R^{21} は水素原子又はヒドロカルビル基を表し、 m は0又は1であり、 R^{22} はヒドロカルビレン基を表す。)

【0011】

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

【化8】



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

【0012】

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

【0013】

本発明はまた、上記ゴム組成物を用いて作製した空気入りタイヤに関する。

10

20

30

40

50

【発明の効果】

【0014】

本発明によれば、特定の単量体単位を有し、かつ末端が特定の化合物で変性された共役ジエン系重合体と、シリカと、式(Ⅰ)で表される化合物とを配合したトレッド用ゴム組成物であるので、低燃費性、ウェットグリップ性能及び耐摩耗性がバランス良く改善された空気入りタイヤを提供できる。

【発明を実施するための形態】

【0015】

本発明に係る共役ジエン系重合体は、共役ジエンに基づく単量体単位、下記式(1)で表される化合物に基づく単量体単位、及び、下記式(2)で表される化合物に基づく単量体単位を有する共重合体の一端に、アルコキシシラン化合物を反応させて得られる。

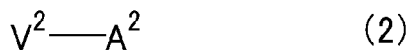
10

【化9】



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

【化10】



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

20

【0016】

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

【0017】

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

30

【0018】

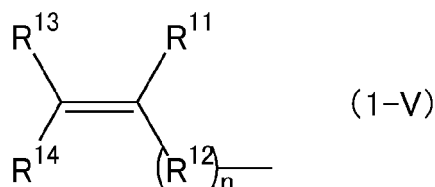
式(1)中の V^1 は、重合性炭素-炭素二重結合を有するヒドロカルビル基を表す。

【0019】

V^1 としては、好ましくは下記式(1-V)で表される基である。

【0020】

【化11】



40

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

【0021】

式(1-V)において、 n は0又は1を表す。

【0022】

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

50

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

【0023】

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

【0024】

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

10

【0025】

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

【0026】

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

20

また、アリレン基とアルキレン基とが結合した基としては、式(1-V)の R^{11} が結合している炭素原子に、当該基のアリレン基の炭素原子が結合していることが好ましい。

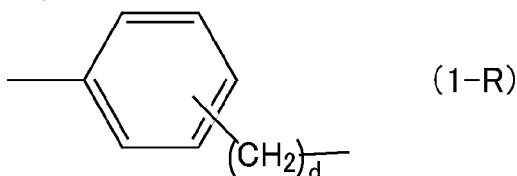
【0027】

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

30

【0028】

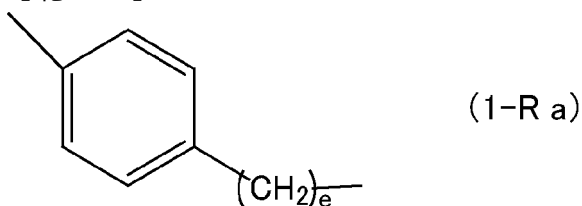
【化12】



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

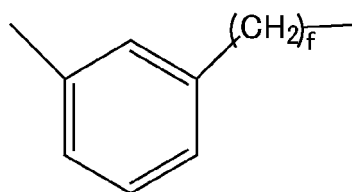
【0029】

【化13】



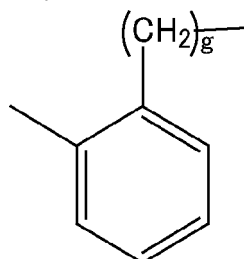
40

【化14】



(1-R b)

【化15】



(1-R c)

(式中、e、f、gは、それぞれ、1～10の整数を表す。)

【0030】

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

【0031】

式(1-V)で表される基としては、次に示す基をあげることができる。

【0032】

R¹¹、R¹³及びR¹⁴が水素原子である基として、ビニル基、ビニルメチル基、ビニルエチル基、4-ビニルフェニル基、3-ビニルフェニル基、(4-ビニルフェニル)メチル基、2-(4-ビニルフェニル)エチル基、(3-ビニルフェニル)メチル基、2-(3-ビニルフェニル)エチル基などをあげることができる。

【0033】

R¹¹がメチル基であり、R¹³及びR¹⁴が水素原子である基として、イソプロペニル基、メタリル基、4-イソプロペニルフェニル基、3-イソプロペニルフェニル基、(4-イソプロペニルフェニル)メチル基、2-(4-イソプロペニルフェニル)エチル基、(3-イソプロペニルフェニル)メチル基、2-(3-イソプロペニルフェニル)エチル基などをあげることができる。

【0034】

R¹¹がビニル基であり、R¹³及びR¹⁴が水素原子である基として、1-メチレン-2-プロペニル基、2-メチレン-3-ブテニル基をあげることができる。

【0035】

R¹¹がフェニル基であり、R¹³及びR¹⁴が水素原子である基として、4-(1-フェニルビニル)フェニル基、3-(1-フェニルビニル)フェニル基、2-(1-フェニルビニル)フェニル基などをあげることができる。

【0036】

R¹¹が水素原子であり、R¹³がメチル基であり、R¹⁴が水素原子である基として、1-プロペニル基、クロチル基、4-(1-プロペニル)フェニル基、4-(1-プロペニル)フェニルメチル基、2-{4-(1-プロペニル)フェニル}エチル基、3-(1-プロペニル)フェニル基、3-(1-プロペニル)フェニルメチル基、2-{3-(1-プロペニル)フェニル}エチル基などをあげることができる。

10

20

30

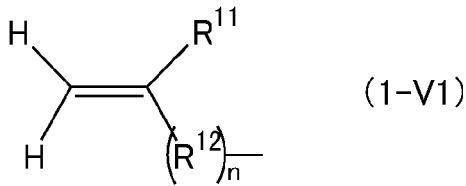
40

50

【0037】

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

【化16】



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

【0038】

式(1-V1)で表される基として好ましくは、 R^{11} が水素原子である基として、ビニル基、4-ビニルフェニル基、3-ビニルフェニル基、(4-ビニルフェニル)メチル基、2-(4-ビニルフェニル)エチル基、(3-ビニルフェニル)メチル基、2-(3-ビニルフェニル)エチル基； R^{11} がメチル基である基として、4-イソプロペニルフェニル基、3-イソプロペニルフェニル基、(4-イソプロペニルフェニル)メチル基、2-(4-イソプロペニルフェニル)エチル基、(3-イソプロペニルフェニル)メチル基、2-(3-イソプロペニルフェニル)エチル基； R^{11} がビニル基である基として、1-メチレン-2-プロペニル基、2-メチレン-3-ブテニル基； R^{11} がフェニル基である基として、4-(1-フェニルビニル)フェニル基である。

【0039】

式(1-V1)で表される基として更に好ましくはビニル基である。

【0040】

式(1)中の S^1 は、置換シリル基を表す。

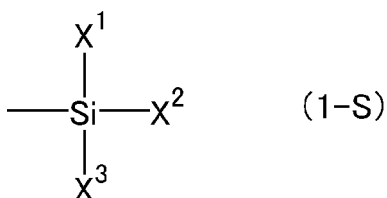
【0041】

S^1 の表す置換シリル基としては、置換基を有していてもよいヒドロカルビル基、ヒドロカルビルオキシ基、置換アミノ基などの置換基で、ケイ素原子に結合した水素原子が置換されたシリル基をあげることができる。ケイ素原子に結合している置換基は同一でも異なっているてもよい。

【0042】

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

【化17】



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

【0043】

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

【0044】

X^1 、 X^2 及び X^3 のヒドロカルビル基としては、アルキル基、アルケニル基、アルキニル基、アリール基、アラルキル基をあげることができる。アルキル基としては、メチル基

10

20

30

40

50

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

【0045】

X¹、X² 及び X³ の酸素原子を有するヒドロカルビル基としては、メトキシメチル基、メトキシエチル基、エトキシメチル基、エトキシエチル基などのアルコキシアルキル基をあげることができる。

10

【0046】

X¹、X² 及び X³ の窒素原子を有するヒドロカルビル基としては、ジメチルアミノメチル基、ジメチルアミノエチル基、ジエチルアミノメチル基、ジエチルアミノエチル基などのジアルキルアミノアルキル基をあげることができる。

【0047】

X¹、X² 及び X³ のケイ素原子を有するヒドロカルビル基としては、トリメチルシリルメチル基、トリメチルシリルエチル基、トリエチルシリルメチル基、トリエチルシリルエチル基などのトリアルキルシリルアルキル基をあげることができる。

【0048】

X¹、X² 及び X³ の置換基を有していてもよいヒドロカルビル基の炭素原子数は、好ましくは1~10であり、より好ましくは1~4である。

20

【0049】

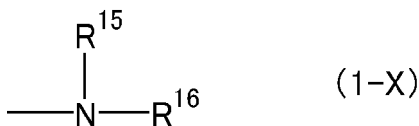
X¹、X² 及び X³ の置換基を有していてもよいヒドロカルビル基としては、好ましくは、アルキル基又はアルコキシアルキル基である。アルキル基としては、好ましくは炭素原子数が1~4のアルキル基であり、より好ましくはメチル基又はエチル基である。アルコキシアルキル基としては、好ましくは、炭素原子数2~4のアルコキシアルキル基である。

【0050】

X¹、X² 及び X³ の置換アミノ基として、好ましくは下記式(1-X)で表される基である。

30

【化18】



(式中、R¹⁵ 及び R¹⁶ は、それぞれ、ヒドロカルビル基、又は、トリヒドロカルビルシリル基、あるいは、R¹⁵ と R¹⁶ とが結合して、窒素原子及び/又は酸素原子をヘテロ原子として有していてもよいヒドロカルビレン基、又は、R¹⁵ と R¹⁶ は1つの基であって、窒素原子に二重結合で結合する基を表す。)

【0051】

40

R¹⁵ 及び R¹⁶ のヒドロカルビル基としては、アルキル基、アルケニル基、アルキニル基、アリール基、アラルキル基をあげることができる。アルキル基としては、メチル基、エチル基、*n*-プロピル基、イソプロピル基、*n*-ブチル基、*sec*-ブチル基、*tert*-ブチル基をあげることができる。アルケニル基としては、ビニル基、アリル基、1-プロペニル基、1-メチルエテニル基をあげることができる。アルキニル基としては、エチニル基、プロパギル基をあげることができる。アリール基としては、フェニル基、トリル基、キシリル基をあげることができる。アラルキル基としては、ベンジル基をあげることができる。

【0052】

R¹⁵ 及び R¹⁶ のヒドロカルビル基の炭素原子数は、好ましくは1~10であり、より

50

好ましくは 1 ~ 4 であり、更に好ましくは 1 ~ 2 である。

【 0 0 5 3 】

R¹⁵ 及び R¹⁶ のヒドロカルビル基としては、好ましくはアルキル基であり、より好ましくは直鎖アルキル基である。

【 0 0 5 4 】

R¹⁵ 及び R¹⁶ のトリヒドロカルビルシリル基としては、トリメチルシリル基、トリエチルシリル基、トリイソプロピルシリル基、tert-ブチルジメチルシリル基などのトリアルキルシリル基をあげることができる。

【 0 0 5 5 】

R¹⁵ 及び R¹⁶ のトリヒドロカルビルシリル基としては、好ましくは、炭素原子数が 3 ~ 9 のトリアルキルシリル基であり、より好ましくは、ケイ素原子に結合したアルキル基が炭素原子数 1 ~ 3 のアルキル基であるトリアルキルシリル基であり、更に好ましくは、トリメチルシリル基である。

10

【 0 0 5 6 】

R¹⁵ 及び R¹⁶ が結合した窒素原子及び/又は酸素原子をヘテロ原子として有していてもよいヒドロカルビレン基としては、ヒドロカルビレン基、窒素原子を有するヒドロカルビレン基、酸素原子を有するヒドロカルビレン基などをあげることができる。ヒドロカルビレン基としては、エチレン基、トリメチレン基、テトラメチレン基、ペンタメチレン基、ヘキサメチレン基などのアルキレン基をあげることができる。窒素原子を有するヒドロカルビレン基としては、 $-CH_2CH_2-NH-CH_2-$ で表される基、 $-CH_2CH_2-N=CH-$ で表される基、 $-CH=CH-N=CH-$ で表される基、 $-CH_2CH_2-NH-CH_2CH_2-$ で表される基をあげることができる。酸素原子を有するヒドロカルビレン基としては、 $-CH_2CH_2-O-CH_2CH_2-$ で表される基をあげることができる。

20

【 0 0 5 7 】

R¹⁵ 及び R¹⁶ が結合した窒素原子及び/又は酸素原子をヘテロ原子として有していてもよいヒドロカルビレン基の炭素原子数は、好ましくは 2 ~ 20 であり、より好ましくは 2 ~ 7 であり、更に好ましくは 4 ~ 6 である。

【 0 0 5 8 】

R¹⁵ 及び R¹⁶ が結合した窒素原子及び/又は酸素原子をヘテロ原子として有していてもよいヒドロカルビレン基としては、好ましくはヒドロカルビレン基であり、より好ましくはアルキレン基であり、更に好ましくはポリメチレン基である。

30

【 0 0 5 9 】

R¹⁵ 及び R¹⁶ が窒素原子に二重結合で結合する 1 つの基としては、エチリデン基、プロピリデン基、ブチリデン基、1-メチルエチリデン基、1-メチルプロピリデン基、1,3-ジメチルブチリデン基などのヒドロカルビリデン基をあげることができる。

【 0 0 6 0 】

R¹⁵ 及び R¹⁶ が窒素原子に二重結合で結合する 1 つの基の炭素原子数は、好ましくは 2 ~ 20 であり、より好ましくは 2 ~ 6 である。

【 0 0 6 1 】

R¹⁵ 及び R¹⁶ としては、好ましくは、アルキル基、トリアルキルシリル基、R¹⁵ と R¹⁶ とが結合したアルキレン基であり、より好ましくはアルキル基である。

40

【 0 0 6 2 】

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

【 0 0 6 3 】

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

50

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

【0064】

また、非環状アミノ基としては、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をあげることできる。

【0065】

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

10

【0066】

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

【0067】

式(1-S)中、 X^1 、 X^2 及び X^3 の少なくとも1つが置換アミノ基であり、好ましくは、 X^1 、 X^2 及び X^3 の2つ以上が、置換アミノ基であり、より好ましくは、 X^1 、 X^2 及び X^3 のうち2つが、置換アミノ基である。

20

【0068】

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

【0069】

式(1-V1)中のnが0である化合物：

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

30

【0070】

式(1-V1)中のnが1である化合物：

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

40

50

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

【0071】

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

10

【0072】

式(1-V1)中のnが0である化合物：

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

20

【0073】

式(1-V1)中のnが1である化合物：

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

30

【0074】

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

40

【0075】

式(1-V1)中のnが1である化合物：

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

50

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

10

【0076】

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

【0077】

式(1-V1)中のnが0である化合物：

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

20

【0078】

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

30

【0079】

式(1-V1)中のnが1である化合物：

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

40

【0080】

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

【0081】

式(1-V1)中のnが0である化合物：

トリス(ジメチルアミノ)ビニルシラン、

50

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

【0082】

式(1-V1)中のnが1である化合物：

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

10

【0083】

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

【0084】

式(1-V1)中のnが1である化合物：

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

20

【0085】

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

30

【0086】

式(1-V1)中のnが0である化合物：

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

【0087】

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

40

【0088】

式(1-V1)中のnが1である化合物：

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

50

【0089】

式(1)で表される化合物としては、好ましくは、 V^1 が式(1-V1)で表される基であり、 S^1 が式(1-S)で表される基である化合物であり、より好ましくは、式(1-S)中の X^1 、 X^2 及び X^3 のうち2つがジアルキルアミノ基である化合物であり、更に好ましくは、式(1-V1)中の R^{11} が水素原子であり、式(1-V1)中の n が0である化合物である。特に好ましくは、 X^1 、 X^2 及び X^3 のうち残りの1つがアルキル基又はアルコキシアルキル基である化合物である。最も好ましくは、

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

10

【0090】

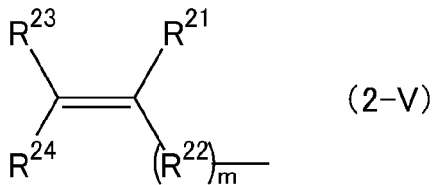
式(2)中の V^2 は、重合性炭素-炭素二重結合を有するヒドロカルビル基を表す。

【0091】

V^2 としては、好ましくは下記式(2-V)で表される基である。

【0092】

【化19】



20

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

【0093】

式(2-V)において、 m は0又は1を表す。

30

【0094】

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

【0095】

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

40

【0096】

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

【0097】

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

50

【 0 0 9 8 】

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

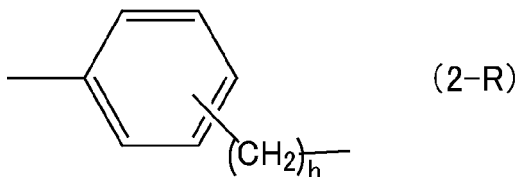
また、アリレン基とアルキレン基とが結合した基としては、式(2-V)の R^{21} が結合している炭素原子に、当該基のアリレン基の炭素原子が結合していることが好ましい。

【 0 0 9 9 】

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

【 0 1 0 0 】

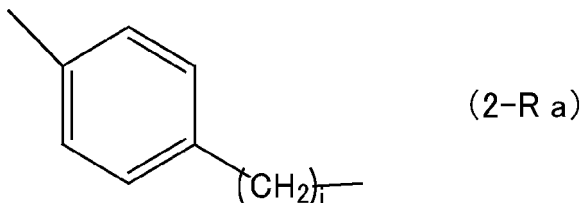
【 化 2 0 】



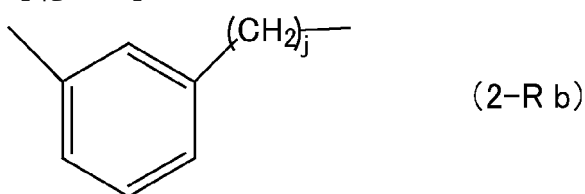
(式中、hは1~10の整数を表し、 $(CH_2)_h$ はベンゼン環上の置換基である。)

【 0 1 0 1 】

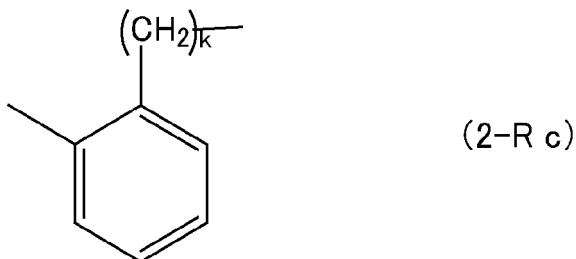
【 化 2 1 】



【 化 2 2 】



【 化 2 3 】



(式中、i、j、kは、それぞれ、1~10の整数を表す。)

【 0 1 0 2 】

式(2-R)のh、式(2-Ra)のi、式(2-Rb)のj、式(2-Rc)のkは、好ましくは1~5であり、より好ましくは1~2であり、更に好ましくは1である。

【 0 1 0 3 】

10

20

30

40

50

アリレン基とアルキレン基とが結合した基としては、好ましくは、フェニレン基とアルキレン基とが結合した基であり、より好ましくは、上式(2-Ra)で表される基、上式(2-Rb)で表される基であり、更に好ましくは、パラ-フェニレン-メチレン基(i=1である式(2-Ra)で表される基)、メタ-フェニレン-メチレン基(j=1である式(2-Rb)で表される基)、パラ-フェニレン-エチレン基(i=2である式(2-Ra)で表される基)、メタ-フェニレン-エチレン基(j=2である式(2-Rb)で表される基)であり、特に好ましくは、パラ-フェニレン-メチレン基(i=1である式(2-Ra)で表される基)、メタ-フェニレン-メチレン基(j=1である式(2-Rb)で表される基)である。

【0104】

10

式(2-V)で表される基としては、次に示す基をあげることができる。

【0105】

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

【0106】

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

20

【0107】

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

【0108】

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

【0109】

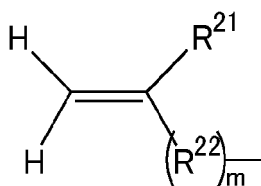
30

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

【0110】

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

【化24】



40

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

【0111】

式(2-V1)で表される基として好ましくは、 R^{21} が水素原子である基として、ビニル基、4-ビニルフェニル基、3-ビニルフェニル基、(4-ビニルフェニル)メチル基

50

、2 - (4 - ビニルフェニル) エチル基、(3 - ビニルフェニル) メチル基、2 - (3 - ビニルフェニル) エチル基； R^{21} がメチル基である基として、4 - イソプロペニルフェニル基、3 - イソプロペニルフェニル基、(4 - イソプロペニルフェニル) メチル基、2 - (4 - イソプロペニルフェニル) エチル基、(3 - イソプロペニルフェニル) メチル基、2 - (3 - イソプロペニルフェニル) エチル基； R^{21} がビニル基である基として、1 - メチレン - 2 - プロペニル基、2 - メチレン - 3 - ブテニル基； R^{21} がフェニル基である基として、4 - (1 - フェニルビニル) フェニル基である。

【0112】

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

10

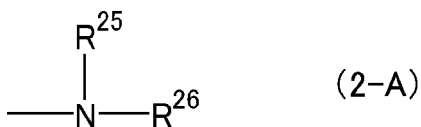
【0113】

式(2) 中、 A^2 は、置換アミノ基、又は、含窒素複素環基を表す。

【0114】

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

【化25】



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

20

【0115】

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

30

【0116】

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

【0117】

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

【0118】

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

40

【0119】

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

【0120】

R^{25} 及び R^{26} が結合した窒素原子及び/又は酸素原子をヘテロ原子として有していてもよいヒドロカルビレン基としては、ヒドロカルビレン基、窒素原子を有するヒドロカル

50

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

【0121】

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

10

【0122】

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

【0123】

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

20

【0124】

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

【0125】

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

【0126】

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

【0127】

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

30

【0128】

該非環状アミノ基としては、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をあげることができる。

40

【0129】

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

【0130】

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

50

鎖アルキル基である基、 R^{25} 及び R^{26} がトリアルキルシリル基である基、 R^{25} 及び R^{26} が結合したポリメチレン基である基である。

【0131】

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

【0132】

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

10

【0133】

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

20

【0134】

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

【0135】

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

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

30

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

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

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

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

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

40

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

【0136】

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

【0137】

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

50

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

【0138】

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

【0139】

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

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

【0140】

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

【0141】

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

【0142】

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

【0143】

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

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

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

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

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

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

ピラジン環を有する基としては、2 - ピラジル基をあげることができる。

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

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

シンノリン環を有する基としては、3 - シンノリニル基、4 - シンノリニル基、5 - シン

10

20

30

40

50

ノリニル基、6 - シンノリニル基、7 - シンノリニル基、8 - シンノリニル基をあげることができる。

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

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

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

10

【0144】

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

【0145】

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

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

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

20

【0146】

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

【0147】

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

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

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

30

【0148】

A²の含窒素芳香族複素環基としては、好ましくは、環を構成するヘテロ原子として窒素原子のみを有する含窒素芳香族複素環基であり、より好ましくは、イミダゾール環を有する基、ピリジン環を有する基、キノリン環を有する基であり、更に好ましくはピリジン環を有する基である。

【0149】

式(2)で表される化合物としては、V²が式(2-V1)で表される基であり、式(2-V1)中のR²⁻¹が水素原子であり、mが0であり、A²が置換アミノ基である化合物として、次の化合物をあげることができる。

【0150】

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

40

【0151】

式(2)で表される化合物としては、V²が式(2-V1)で表される基であり、式(2

50

- V 1) 中の $R^{2\ 1}$ が水素原子であり、 m が 1 であり、 $R^{2\ 2}$ がフェニレン基であり、 A^2 が置換アミノ基である化合物として、次の化合物をあげることができる。

【 0 1 5 2 】

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

【 0 1 5 3 】

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

【 0 1 5 4 】

式 (2 - R a) の i が 1 である化合物 :

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

【 0 1 5 5 】

式 (2 - R a) の i が 2 である化合物 :

- 4 - N , N - ジメチルアミノエチルスチレン、
- 4 - N , N - ジエチルアミノエチルスチレン、
- 4 - N , N - ジ - n - プロピルアミノエチルスチレン、
- 4 - N , N - ジ - n - ブチルアミノエチルスチレン、
- 4 - N , N - ジアリルアミノエチルスチレン、

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

【0156】

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

10

【0157】

式(2 - Rb)のjが1である化合物：

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

20

【0158】

式(2 - Rb)のjが2である化合物：

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

30

【0159】

式(2)で表される化合物としては、 V^2 が式(2 - V1)で表される基であり、式(2 - V1)中の R^{2-1} がメチル基であり、mが0であり、 A^2 が置換アミノ基である化合物として、次の化合物をあげることができる。

40

【0160】

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

50

【 0 1 6 1 】

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

【 0 1 6 2 】

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

【 0 1 6 3 】

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

【 0 1 6 4 】

式(2-Ra)の*i*が1である化合物：

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

【 0 1 6 5 】

式(2-Ra)の*i*が2である化合物：

- 4 - N, N - ジメチルアミノエチルイソプロペニルベンゼン、
- 4 - N, N - ジエチルアミノエチルイソプロペニルベンゼン、

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

10

【 0 1 6 6 】

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

【 0 1 6 7 】

式 (2 - R b) の j が 1 である化合物：

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

20

【 0 1 6 8 】

式 (2 - R b) の j が 2 である化合物：

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

40

【 0 1 6 9 】

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

【 0 1 7 0 】

- 2 - N , N - ジメチルアミノ - 1 , 3 - ブタジエン、
 2 - N , N - ジエチルアミノ - 1 , 3 - ブタジエン、

50

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

10

【0171】

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

【0172】

R^{2-2} がメチレン基である化合物：

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

20

30

【0173】

R^{2-2} がエチレン基である化合物：

- 5 - N, N - ジメチルアミノ - 3 - メチレン - 1 - ペンテン、
- 5 - N, N - ジエチルアミノ - 3 - メチレン - 1 - ペンテン、
- 5 - N, N - ジ - n - プロピルアミノ - 3 - メチレン - 1 - ペンテン、
- 5 - N, N - ジ - n - ブチルアミノ - 3 - メチレン - 1 - ペンテン、
- 5 - N, N - ジアリルアミノ - 3 - メチレン - 1 - ペンテン、
- 5 - N, N - ビス(トリメチルシリル)アミノ - 3 - メチレン - 1 - ペンテン、
- 5 - N, N - ビス(tert - ブチルジメチルシリル)アミノ - 3 - メチレン - 1 - ペンテン、
- 5 - (1 - アジリジニル) - 3 - メチレン - 1 - ペンテン、
- 5 - (1 - ピロリジニル) - 3 - メチレン - 1 - ペンテン、
- 5 - (1 - ピペリジニル) - 3 - メチレン - 1 - ペンテン、
- 5 - (1 - ヘキサメチレンイミノ) - 3 - メチレン - 1 - ペンテン、
- 1 - (3 - メチレン - 4 - ペンテニル)ピロール、
- 1 - (3 - メチレン - 4 - ペンテニル)イミダゾール、
- 1 - (3 - メチレン - 4 - ペンテニル)ピラゾール。

40

50

【0174】

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

【0175】

- 1 - (4 - N, N - ジメチルアミノフェニル) - 1 - フェニルエチレン、
- 1 - (4 - N, N - ジエチルアミノフェニル) - 1 - フェニルエチレン、
- 1 - (4 - N, N - ジプロピルアミノフェニル) - 1 - フェニルエチレン、
- 1 - (4 - N, N - ジイソプロピルアミノフェニル) - 1 - フェニルエチレン、
- 1 - (4 - N, N - ジブチルアミノフェニル) - 1 - フェニルエチレン、
- 1 - (4 - N, N - ジイソブチルアミノフェニル) - 1 - フェニルエチレン、
- 1 - (4 - N, N - ジ(tert - ブチル)アミノフェニル) - 1 - フェニルエチレン、
- 1 - (4 - N, N - ジフェニルアミノフェニル) - 1 - フェニルエチレン、
- 1 - (4 - (1 - アジリジニル)フェニル) - 1 - フェニルエチレン、
- 1 - (4 - (1 - ピロリジニル)フェニル) - 1 - フェニルエチレン、
- 1 - (4 - (1 - ペペリジニル)フェニル) - 1 - フェニルエチレン、
- 1 - (4 - ヘキサメチレンイミノフェニル) - 1 - フェニルエチレン、
- 1 - (4 - モルホリノフェニル) - 1 - フェニルエチレン、
- 1 - (4 - (N, N - ビス(トリメチルシリル)アミノ)フェニル) - 1 - フェニルエチレン、
- 1 - (4 - (N, N - ビス(tert - ブチルジメチルシリル)アミノ)フェニル) - 1 - フェニルエチレン、
- 1 - (4 - (N, N - ビス(トリイソプロピルシリル)アミノ)フェニル) - 1 - フェニルエチレン、
- 1 - (3 - N, N - ジメチルアミノフェニル) - 1 - フェニルエチレン、
- 1 - (3 - N, N - ジエチルアミノフェニル) - 1 - フェニルエチレン、
- 1 - (3 - N, N - ジプロピルアミノフェニル) - 1 - フェニルエチレン、
- 1 - (3 - N, N - ジイソプロピルアミノフェニル) - 1 - フェニルエチレン、
- 1 - (3 - N, N - ジブチルアミノフェニル) - 1 - フェニルエチレン、
- 1 - (3 - N, N - ジイソブチルアミノフェニル) - 1 - フェニルエチレン、
- 1 - (3 - N, N - ジ(tert - ブチル)アミノフェニル) - 1 - フェニルエチレン、
- 1 - (3 - N, N - ジフェニルアミノフェニル) - 1 - フェニルエチレン、
- 1 - (3 - (1 - アジリジニル)フェニル) - 1 - フェニルエチレン、
- 1 - (3 - (1 - ピロリジニル)フェニル) - 1 - フェニルエチレン、
- 1 - (3 - (1 - ペペリジニル)フェニル) - 1 - フェニルエチレン、
- 1 - (3 - ヘキサメチレンイミノフェニル) - 1 - フェニルエチレン、
- 1 - (3 - モルホリノフェニル) - 1 - フェニルエチレン、
- 1 - (3 - (N, N - ビス(トリメチルシリル)アミノ)フェニル) - 1 - フェニルエチレン、
- 1 - (3 - (N, N - ビス(tert - ブチルジメチルシリル)アミノ)フェニル) - 1 - フェニルエチレン、
- 1 - (3 - (N, N - ビス(トリイソプロピルシリル)アミノ)フェニル) - 1 - フェニルエチレン。

【0176】

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

【0177】

式(2-Ra)の*i*が1である化合物：

- 1 - (4 - N , N - ジメチルアミノメチルフェニル) - 1 - フェニルエチレン、
 1 - (4 - N , N - ジエチルアミノメチルフェニル) - 1 - フェニルエチレン、
 1 - (4 - N , N - ジプロピルアミノメチルフェニル) - 1 - フェニルエチレン、
 1 - (4 - N , N - ジイソプロピルアミノメチルフェニル) - 1 - フェニルエチレン、
 1 - (4 - N , N - ジブチルアミノメチルフェニル) - 1 - フェニルエチレン、
 1 - (4 - N , N - ジイソブチルアミノメチルフェニル) - 1 - フェニルエチレン、
 1 - (4 - N , N - ジ (t e r t - ブチル) アミノメチルフェニル) - 1 - フェニルエチレン、
 1 - (4 - N , N - ジフェニルアミノメチルフェニル) - 1 - フェニルエチレン、
 1 - (4 - (1 - アジリジニルメチル) フェニル) - 1 - フェニルエチレン、 10
 1 - (4 - (1 - ピロリジニルメチル) フェニル) - 1 - フェニルエチレン、
 1 - (4 - (1 - ピペリジニルメチル) フェニル) - 1 - フェニルエチレン、
 1 - (4 - ヘキサメチレンイミノメチルフェニル) - 1 - フェニルエチレン、
 1 - (4 - モルホリノメチルフェニル) - 1 - フェニルエチレン、
 1 - (4 - (N , N - ビス (トリメチルシリル) アミノメチル) フェニル) - 1 - フェニルエチレン、
 1 - (4 - (N , N - ビス (t e r t - ブチルジメチルシリル) アミノ) メチルフェニル) - 1 - フェニルエチレン、
 1 - (4 - (N , N - ビス (トリイソプロピルシリル) アミノ) メチルフェニル) - 1 - フェニルエチレン。 20

【 0 1 7 8 】

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

【 0 1 7 9 】

式 (2 - R b) の j が 1 である化合物：

- 1 - (3 - N , N - ジメチルアミノメチルフェニル) - 1 - フェニルエチレン、
 1 - (3 - N , N - ジエチルアミノメチルフェニル) - 1 - フェニルエチレン、
 1 - (3 - N , N - ジプロピルアミノメチルフェニル) - 1 - フェニルエチレン、 30
 1 - (3 - N , N - ジイソプロピルアミノメチルフェニル) - 1 - フェニルエチレン、
 1 - (3 - N , N - ジブチルアミノメチルフェニル) - 1 - フェニルエチレン、
 1 - (3 - N , N - ジイソブチルアミノメチルフェニル) - 1 - フェニルエチレン、
 1 - (3 - N , N - ジ (t e r t - ブチル) アミノメチルフェニル) - 1 - フェニルエチレン、
 1 - (3 - N , N - ジフェニルアミノメチルフェニル) - 1 - フェニルエチレン、
 1 - (3 - (1 - アジリジニルメチル) フェニル) - 1 - フェニルエチレン、
 1 - (3 - (1 - ピロリジニルメチル) フェニル) - 1 - フェニルエチレン、
 1 - (3 - (1 - ピペリジニルメチル) フェニル) - 1 - フェニルエチレン、
 1 - (3 - ヘキサメチレンイミノメチルフェニル) - 1 - フェニルエチレン、 40
 1 - (3 - モルホリノメチルフェニル) - 1 - フェニルエチレン、
 1 - (3 - (N , N - ビス (トリメチルシリル) アミノメチル) フェニル) - 1 - フェニルエチレン、
 1 - (3 - (N , N - ビス (t e r t - ブチルジメチルシリル) アミノメチル) フェニル) - 1 - フェニルエチレン、
 1 - (3 - (N , N - ビス (トリイソプロピルシリル) アミノ) メチルフェニル) - 1 - フェニルエチレン。

【 0 1 8 0 】

式 (2) で表される化合物としては、 V^2 が式 (2 - V 1) で表される基であり、式 (2 - V 1) 中の $R^{2\ 1}$ が水素原子であり、 m が 0 であり、 A^2 が含窒素脂肪族複素環基であ 50

る化合物として、次の化合物をあげることができる。

【0181】

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

【0182】

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

10

【0183】

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

【0184】

20

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

【0185】

式(2-Ra)の*i*が1である化合物：

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

30

【0186】

式(2-Ra)の*i*が2である化合物：

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

【0187】

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

40

【0188】

式(2-Rb)の*j*が1である化合物：

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

【0189】

式(2-Rb)の*j*が2である化合物：

N - メチル - 3 - (3 - ビニルフェニルエチル)ピロリジン、

50

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

【 0 1 9 0 】

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

【 0 1 9 1 】

N - メチル - 3 - イソプロペニルピロリジン、
 N - メチル - 4 - イソプロペニルピペリジン、
 N - メチル - 3 - イソプロペニルヘキサメチレンイミン、
 N - メチル - 4 - イソプロペニルヘキサメチレンイミン。

10

【 0 1 9 2 】

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

【 0 1 9 3 】

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

20

【 0 1 9 4 】

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

【 0 1 9 5 】

式 (2 - R a) の i が 1 である化合物：

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

30

【 0 1 9 6 】

式 (2 - R a) の i が 2 である化合物：

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

【 0 1 9 7 】

式 (2) で表される化合物としては、 V^2 が式 (2 - V 1) で表される基であり、式 (2 - V 1) 中の $R^{2\ 1}$ がビニル基であり、 m が 0 であり、 A^2 が含窒素脂肪族複素環基である化合物として、次の化合物をあげることができる。

40

【 0 1 9 8 】

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

【 0 1 9 9 】

式 (2) で表される化合物としては、 V^2 が式 (2 - V 1) で表される基であり、式 (2 - V 1) 中の $R^{2\ 1}$ がビニル基であり、 m が 1 であり、 $R^{2\ 2}$ がアルキレン基であり、 A

50

² が含窒素脂肪族複素環基である化合物として、次の化合物をあげることができる。

【0200】

R^{2 2} がメチレン基である化合物：

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

【0201】

R^{2 2} がエチレン基である化合物：

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

10

【0202】

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

【0203】

- 1 - (4 - N - メチル - 3 - ピロリジノフェニル) - 1 - フェニルエチレン、
- 1 - (4 - N - メチル - 3 - ピペリジノフェニル) - 1 - フェニルエチレン、
- 1 - (4 - N - メチル - 4 - ピペリジノフェニル) - 1 - フェニルエチレン、
- 1 - (4 - N - メチル - 3 - ヘキサメチレンイミノフェニル) - 1 - フェニルエチレン、
- 1 - (4 - N - メチル - 4 - ヘキサメチレンイミノフェニル) - 1 - フェニルエチレン、
- 1 - (3 - N - メチル - 3 - ピロリジノフェニル) - 1 - フェニルエチレン、
- 1 - (3 - N - メチル - 3 - ピペリジノフェニル) - 1 - フェニルエチレン、
- 1 - (3 - N - メチル - 4 - ピペリジノフェニル) - 1 - フェニルエチレン、
- 1 - (3 - N - メチル - 3 - ヘキサメチレンイミノフェニル) - 1 - フェニルエチレン、
- 1 - (3 - N - メチル - 4 - ヘキサメチレンイミノフェニル) - 1 - フェニルエチレン。

20

【0204】

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

30

【0205】

式(2-Ra)のiが1である化合物：

- 1 - (4 - N - メチル - 3 - ピロリジノメチルフェニル) - 1 - フェニルエチレン、
- 1 - (4 - N - メチル - 3 - ピペリジノメチルフェニル) - 1 - フェニルエチレン、
- 1 - (4 - N - メチル - 4 - ピペリジノメチルフェニル) - 1 - フェニルエチレン、
- 1 - (4 - N - メチル - 3 - ヘキサメチレンイミノメチルフェニル) - 1 - フェニルエチレン。

40

【0206】

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

【0207】

式(2-Rb)のjが1である化合物：

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

50

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

【 0 2 0 8 】

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

【 0 2 0 9 】

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

10

【 0 2 1 0 】

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

【 0 2 1 1 】

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

20

【 0 2 1 2 】

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

【 0 2 1 3 】

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

30

40

【 0 2 1 4 】

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

【 0 2 1 5 】

$R^{2\ 2}$ がメチレン基である化合物：

N - メチル - 2 - (2 - メチレン - 3 - ブテニル) イミダゾール、

50

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

【 0 2 1 6 】

R^{2 2} がエチレン基である化合物：

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

【 0 2 1 7 】

式 (2) で表される化合物としては、好ましくは、V² で表される基が式 (2 - V 1) で表され、式 (2 - V 1) 中の R^{2 1} が水素原子である化合物である。

より好ましくは、R^{2 1} が水素原子であり、m が 1 であり、R^{2 2} がフェニレン基であり、A² が式 (2 - A) で表される置換アミノ基である化合物；R^{2 1} が水素原子であり、m が 1 であり、R^{2 2} が式 (2 - R) で表される基であり、A² が式 (2 - A) で表される置換アミノ基である化合物；R^{2 1} が水素原子であり、m が 0 であり、A² が含窒素芳香族複素環基である化合物である。

更に好ましくは、R^{2 1} が水素原子であり、m が 1 であり、R^{2 2} がパラ - フェニレン基又はメタ - フェニレン基であり、A² が式 (2 - A) 中の R^{2 5} 及び R^{2 6} が結合したポリメチレン基である化合物；R^{2 1} が水素原子であり、m が 1 であり、R^{2 2} が式 (2 - R a) 又は (2 - R b) で表される基であり、A² が式 (2 - A) 中の R^{2 5} 及び R^{2 6} が結合したポリメチレン基である化合物；R^{2 1} が水素原子であり、m が 0 であり、A² がピリジル基である化合物である。

【 0 2 1 8 】

式 (2) で表される化合物としては、特に好ましくは、

3 - (1 - ピロリジニル) エチルスチレン、
 4 - (1 - ピロリジニル) エチルスチレン、
 4 - ビニルピリジン、
 2 - ビニルピリジン

である。

【 0 2 1 9 】

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

【 0 2 2 0 】

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

10

20

30

40

50

【0221】

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

【0222】

ハロゲン原子を有するアルコキシシラン化合物としては、トリメトキシクロロシラン、トリエトキシクロロシラン、トリ - n - プロポキシクロロシラン、トリイソプロポキシクロロシラン、トリ - n - ブトキシクロロシラン、トリイソブトキシクロロシラン、トリ - tert - ブトキシクロロシラン、トリ - (2 - エチルヘキサノキシ) クロロシラン、ジメトキシジクロロシラン、ジエトキシジクロロシラン、ジ - n - プロポキシジクロロシラン、ジイソプロポキシジクロロシラン、ジ - n - ブトキシジクロロシラン、ジイソブトキシジクロロシラン、ジ - tert - ブトキシジクロロシラン、ジ - (2 - エチルヘキサノキシ) ジクロロシラン、メトキシトリクロロシラン、エトキシトリクロロシラン、トリメトキシプロモシラン、トリエトキシプロモシラン、トリ - n - プロポキシプロモシラン、トリイソプロポキシプロモシラン、トリ - n - ブトキシプロモシラン、ジメトキシジプロモシラン、ジエトキシジプロモシラン、ジ - n - プロポキシジプロモシラン、ジイソプロポキシジプロモシラン、ジ - n - ブトキシジプロモシラン、メトキシトリプロモシラン、エトキシトリプロモシラン、トリメトキシヨードシラン、トリエトキシヨードシラン、トリ - n - プロポキシヨードシラン、トリイソプロポキシヨードシラン、トリ - n - ブトキシヨードシラン、ジメトキシジヨードシラン、ジエトキシジヨードシラン、ジ - n - プロポキシジヨードシラン、ジイソプロポキシジヨードシラン、ジ - n - ブトキシジヨードシラン、メトキシトリヨードシラン、エトキシトリヨードシラン、などをあげることができる。

【0223】

エポキシ基を有するアルコキシシラン化合物としては、2 - グリシドキシエチルトリメトキシシラン、3 - グリシドキシプロピルトリメトキシシラン、4 - グリシドキシブチルトリメトキシシラン、2 - グリシドキシエチルトリエトキシシラン、3 - グリシドキシプロピルトリエトキシシラン、4 - グリシドキシブチルトリエトキシシラン、2 - グリシドキシエチルトリプロポキシシラン、3 - グリシドキシプロピルトリプロポキシシラン、4 - グリシドキシブチルトリプロポキシシラン、3 - グリシドキシプロピルメチルジメトキシシラン、3 - グリシドキシプロピルメチルジエトキシシラン、3 - グリシドキシプロピルエチルジメトキシシラン、3 - グリシドキシプロピルジメチルメトキシシラン、3 - グリシドキシプロピルジメチルエトキシシラン、3 - グリシドキシプロピルジエチルメトキシシラン、3 - グリシドキシプロピルジエチルエトキシシラン、ビス (3 - グリシドキシプロピル) ジメトキシシラン、ビス (3 - グリシドキシプロピル) ジエトキシシラン、ビス (3 - グリシドキシプロピル) ジプロポキシシラン、ビス (3 - グリシドキシプロピル) メチルメトキシシラン、ビス (3 - グリシドキシプロピル) メチルエトキシシラン、ビス (3 - グリシドキシプロピル) エチルメトキシシラン、ビス (3 - グリシドキシプロピル) エチルエトキシシラン、トリス (3 - グリシドキシプロピル) メトキシシラン、トリス (3 - グリシドキシプロピル) エトキシシラン、トリス (3 - グリシドキシプロピル) ジプロポキシシラン、 - (3 , 4 - エポキシシクロヘキシル) エチル - トリメトキシシラン、 - (3 , 4 - エポキシシクロヘキシル) エチル - トリエトキシシラン、 - (3 , 4 - エポキシシクロヘキシル) エチル - トリプロポキシシラン、 - (3 , 4 - エポキシシクロヘキシル) プロピル - トリメトキシシラン、 - (3 , 4 - エポキシシクロヘキシル) プロピル - トリエトキシシラン

10

20

30

40

50

、 - (3 , 4 - エポキシシクロヘキシル) プロピル - トリプロポキシシラン、 - (3 , 4 - エポキシシクロヘキシル) エチル - メチルジメトキシシラン、 - (3 , 4 - エポキシシクロヘキシル) エチル - メチルジエトキシシラン、 - (3 , 4 - エポキシシクロヘキシル) プロピル - メチルジメトキシシラン、 - (3 , 4 - エポキシシクロヘキシル) プロピル - メチルジエトキシシラン、 - (3 , 4 - エポキシシクロヘキシル) エチル - ジメチルメトキシシラン、 - (3 , 4 - エポキシシクロヘキシル) エチル - ジメチルエトキシシラン、 - (3 , 4 - エポキシシクロヘキシル) プロピル - ジメチルメトキシシラン、 - (3 , 4 - エポキシシクロヘキシル) プロピル - ジメチルエトキシシラン、などをあげることができる。

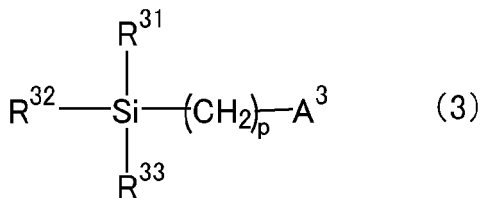
【 0 2 2 4 】

メルカプト基を有するアルコキシシラン化合物としては、2 - メルカプトエチルトリメトキシシラン、3 - メルカプトプロピルトリメトキシシラン、4 - メルカプトブ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 - メルカプトプロピルトリエトキシシラン、4 - メルカプトブチルトリエトキシシラン、2 - メルカプトエチルトリプロポキシシラン、3 - メルカプトプロピルトリプロポキシシラン、4 - メルカプトブチルトリプロポキシシラン、2 - メルカプトエチルメチルジメトキシシラン、3 - メルカプトプロピルメチルジメトキシシラン、4 - メルカプトブチルメチルジメトキシシラン、2 - メルカプトエ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エトキシシラン、4 - メルカプトブチルメチルジエトキシシラン、などをあげることができる。

【 0 2 2 5 】

置換アミノ基を有するアルコキシシラン化合物としては、下記式 (3) で表される化合物をあげることができる。

【 化 2 6 】



(式中、p は 1 ~ 10 の整数を表し、 R^{31} 、 R^{32} 及び R^{33} は、それぞれ独立にアルキル基又はアルコキシ基を表し、 R^{31} 、 R^{32} 及び R^{33} の少なくとも 1 つがアルコキシ基であり、 A^3 は置換アミノ基を表す。)

【 0 2 2 6 】

R^{31} 、 R^{32} 、及び R^{33} は、それぞれアルキル基、又は、アルコキシ基を表す。

【 0 2 2 7 】

R^{31} 、 R^{32} 、及び R^{33} のアルキル基としては、メチル基、エチル基、n - プロピル基、イソプロピル基、n - ブチル基、sec - ブチル基、tert - ブチル基などをあげることができる。アルキル基は、好ましくは炭素原子数が 1 ~ 10 のアルキル基であり、より好ましくは炭素原子数が 1 ~ 3 のアルキル基であり、更に好ましくはメチル基、エチル基である。

【 0 2 2 8 】

R^{31} 、 R^{32} 、及び R^{33} のアルコキシ基としては、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、tert - ブトキシ基、2 - エチルヘキサノキシなどをあげることができる。アルコキシ基は、好ましくは炭素原子数が 1 ~ 10 のアルコキシ基であり、より好ましくは炭素原子数が 1 ~ 3 のアルコキシ基であり、更に好ましくはメトキシ基、エトキシ基である。

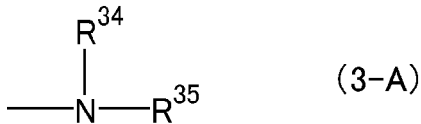
【 0 2 2 9 】

R^{31} 、 R^{32} 、及び R^{33} の少なくとも 1 つはアルコキシ基であり、低燃費性を高めるために、好ましくは、 R^{31} 、 R^{32} 、及び R^{33} の少なくとも 2 つがアルコキシ基であり、より好ましくは、 R^{31} 、 R^{32} 、及び R^{33} の 3 つがアルコキシ基である。

【0230】

式(3)中、 A^3 は、置換アミノ基を表す。 A^3 の置換アミノ基としては、好ましくは下記式(3-A)で表される基である。

【化27】



(式中、 R^{34} 及び R^{35} は、それぞれ、水素原子、窒素原子及び/又は酸素原子を有していてもよいヒドロカルビル基、あるいは、 R^{34} と R^{35} とが結合して、窒素原子及び/又は酸素原子をヘテロ原子として有していてもよいヒドロカルビレン基、又は、 R^{34} と R^{35} は1つの基であって、窒素原子に二重結合で結合する基を表す。)

10

【0231】

R^{34} 及び R^{35} は、それぞれ、水素原子、窒素原子及び/又は酸素原子を有していてもよいヒドロカルビル基、あるいは、 R^{34} と R^{35} とが結合して、窒素原子及び/又は酸素原子を有していてもよいヒドロカルビレン基、又は、 R^{34} と R^{35} は1つの基であって、窒素原子に二重結合で結合する基を表す。

【0232】

R^{34} 及び R^{35} のヒドロカルビル基としては、メチル基、エチル基、*n*-プロピル基、イソプロピル基、*n*-ブチル基、*sec*-ブチル基、*tert*-ブチル基などのアルキル基；ビニル基、アリル基、1-プロペニル基、1-メチルエチニル基などのアルケニル基；エチニル基、プロパギル基などのアルキニル基；フェニル基、トリル基、キシリル基などのアリール基；ベンジル基などのアラルキル基をあげることができる。

20

【0233】

R^{34} 及び R^{35} の窒素原子を有するヒドロカルビル基としては、ジメチルアミノメチル基、ジメチルアミノエチル基、ジメチルアミノプロピル基、ジエチルアミノメチル基、ジエチルアミノエチル基、ジエチルアミノプロピル基などのジアルキルアミノアルキル基をあげることができる。

【0234】

R^{34} 及び R^{35} の酸素原子を有するヒドロカルビル基としては、メトキシメチル基、メトキシエチル基、メトキシプロピル基、エトキシメチル基、エトキシエチル基、エトキシプロピル基などのアルコキシアルキル基；2-オキシラニル基、2-オキセタニル基、2-テトラヒドロフランニル基などのモノオキサシクロアルキル基；2-ジオキサラニル基などのジオキサシクロアルキル基；グリシジル基、テトラヒドロフルフリル基などのモノオキサシクロアルキル基で置換されたアルキル基；3,4-エポキシシクロヘキシル基をあげることができる。

30

【0235】

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

40

【0236】

R^{34} 及び R^{35} の窒素原子及び/又は酸素原子を有していてもよいヒドロカルビル基の炭素原子数は、好ましくは1~10であり、より好ましくは1~6である。

【0237】

R^{34} 及び R^{35} が結合した基としては、ヒドロカルビレン基、窒素原子を有するヒドロカルビレン基、酸素原子を有するヒドロカルビレン基などをあげることができる。ヒドロカルビレン基としては、トリメチレン基、テトラメチレン基、ペンタメチレン基、ヘキサメチレン基などのアルキレン基をあげることができる。窒素原子を有するヒドロカルビレン基としては、 $-CH_2CH_2-NH-CH_2-$ で表される基、 $-CH_2CH_2-N=C$
 $H-$ で表される基、 $-CH=CH-N=C$
 $H-$ で表される基、 $-CH_2CH_2-NH-C$

50

H_2CH_2- で表される基をあげることができる。酸素原子を有するヒドロカルビレン基としては、 $-CH_2CH_2-O-CH_2CH_2-$ で表される基をあげることができる。

【0238】

R^{34} 及び R^{35} が結合した基の炭素原子数は、好ましくは 2 ~ 20 であり、より好ましくは 2 ~ 12 である。

【0239】

R^{34} 及び R^{35} が窒素原子に二重結合で結合する 1 つの基としては、エチリデン基、プロピリデン基、ブチリデン基、1 - メチルエチリデン基、1 - メチルプロピリデン基、1, 3 - ジメチルブチリデン基などのヒドロカルピリデン基；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。

10

【0240】

R^{34} 及び R^{35} が窒素原子に二重結合で結合する 1 つの基の炭素原子数は、好ましくは 2 ~ 20 であり、より好ましくは 2 ~ 12 である。

【0241】

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

【0242】

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

20

【0243】

式 (3) で表される化合物としては、 R^{34} 及び R^{35} がアルキル基である化合物として、

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

30

【0244】

[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；

40

【0245】

[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、

50

[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。

【 0 2 4 6 】

式 (3) で表される化合物としては、 $R^{3 4}$ 及び $R^{3 5}$ がアルコキシアルキル基である化合物として、

{ 3 - [ビス (メトキシメチル) アミノ] プロピル } トリメトキシシラン、
 { 3 - [ビス (エトキシメチル) アミノ] プロピル } トリメトキシシラン、
 { 3 - [ビス (メトキシエチル) アミノ] プロピル } トリメトキシシラン、
 { 3 - [ビス (エトキシエチル) アミノ] プロピル } トリメトキシシラン、
 { 3 - [ビス (メトキシメチル) アミノ] プロピル } トリエトキシシラン、
 { 3 - [ビス (エトキシメチル) アミノ] プロピル } トリエトキシシラン、
 { 3 - [ビス (メトキシエチル) アミノ] プロピル } トリエトキシシラン、
 { 3 - [ビス (エトキシエチル) アミノ] プロピル } トリエトキシシランなどの
 { 3 - [ビス (アルコキシアルキル) アミノ] プロピル } トリアルコキシシラン ;

【 0 2 4 7 】

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

【 0 2 4 8 】

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

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

【 0 2 4 9 】

式(3)で表される化合物としては、 $R^{3,4}$ 及び $R^{3,5}$ がオキシラニル基である化合物として、

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

10

【 0 2 5 0 】

式(3)で表される化合物としては、 $R^{3,4}$ 及び $R^{3,5}$ がテトラヒドロフラニル基である化合物として、

{ 3 - [ジ(テトラヒドロフラニル)アミノ]プロピル}トリメトキシシラン、
 { 3 - [ジ(テトラヒドロフラニル)アミノ]プロピル}トリエトキシシラン、
 { 3 - [ジ(テトラヒドロフラニル)アミノ]プロピル}メチルジメトキシシラン、
 { 3 - [ジ(テトラヒドロフラニル)アミノ]プロピル}エチルジメトキシシラン、
 { 3 - [ジ(テトラヒドロフラニル)アミノ]プロピル}メチルジエトキシシラン、
 { 3 - [ジ(テトラヒドロフラニル)アミノ]プロピル}エチルジエトキシシラン、
 { 3 - [ジ(テトラヒドロフラニル)アミノ]プロピル}ジメチルメトキシシラン、
 { 3 - [ジ(テトラヒドロフラニル)アミノ]プロピル}ジエチルメトキシシラン、
 { 3 - [ジ(テトラヒドロフラニル)アミノ]プロピル}ジメチルエトキシシラン、
 { 3 - [ジ(テトラヒドロフラニル)アミノ]プロピル}ジエチルエトキシシラン
 をあげることができる。

20

30

【 0 2 5 1 】

式(3)で表される化合物としては、 $R^{3,4}$ 及び $R^{3,5}$ がグリシジル基である化合物として、

{ 3 - [ジ(グリシジル)アミノ]プロピル}トリメトキシシラン、
 { 3 - [ジ(グリシジル)アミノ]プロピル}トリエトキシシラン、
 { 3 - [ジ(グリシジル)アミノ]プロピル}メチルジメトキシシラン、
 { 3 - [ジ(グリシジル)アミノ]プロピル}エチルジメトキシシラン、
 { 3 - [ジ(グリシジル)アミノ]プロピル}メチルジエトキシシラン、
 { 3 - [ジ(グリシジル)アミノ]プロピル}エチルジエトキシシラン、
 { 3 - [ジ(グリシジル)アミノ]プロピル}ジメチルメトキシシラン、
 { 3 - [ジ(グリシジル)アミノ]プロピル}ジエチルメトキシシラン、
 { 3 - [ジ(グリシジル)アミノ]プロピル}ジメチルエトキシシラン、
 { 3 - [ジ(グリシジル)アミノ]プロピル}ジエチルエトキシシラン
 をあげることができる。

40

【 0 2 5 2 】

式(3)で表される化合物としては、 $R^{3,4}$ 及び $R^{3,5}$ がテトラヒドロフルフリル基である化合物として、

50

{ 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

10

をあげることができる。

【0253】

式(3)で表される化合物としては、 R^{34} 及び R^{35} が結合した基である化合物として

、
 3 - (1 - ピペリジニル)プロピルトリメトキシシラン、
 3 - (1 - ピペリジニル)プロピルトリエトキシシラン、
 3 - (1 - ピペリジニル)プロピルメチルジメトキシシラン、
 3 - (1 - ピペリジニル)プロピルエチルジメトキシシラン、
 3 - (1 - ピペリジニル)プロピルメチルジエトキシシラン、
 3 - (1 - ピペリジニル)プロピルエ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、
 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

20

をあげることができる。

【0254】

式(3)で表される化合物としては、 R^{34} 及び R^{35} が窒素原子に二重結合で結合する1つの基である化合物として、

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

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

40

をあげることができる。

【0255】

式(3)で表される化合物としては、

好ましくは、

[3 - (ジアルキルアミノ)プロピル]トリアルコキシシランであり、

より好ましくは、

[3 - (ジメチルアミノ)プロピル]トリメトキシシラン、

[3 - (ジエチルアミノ)プロピル]トリメトキシシラン、

[3 - (ジメチルアミノ)プロピル]トリエトキシシラン、

[3 - (ジエチルアミノ)プロピル]トリエトキシシランであり、

50

更に好ましくは、

〔 3 - (ジエチルアミノ)プロピル〕トリメトキシシランである。

【 0 2 5 6 】

式 (1) で表される化合物に基づく単量体単位の含有量は、共役ジエン系重合体 1 0 0 質量%あたり、低燃費性を高めるために、好ましくは 0 . 0 1 質量%以上であり、より好ましくは 0 . 0 2 質量%以上であり、更に好ましくは 0 . 0 5 質量%以上である。経済性、耐摩耗性を高めるために、好ましくは 2 0 質量%以下であり、より好ましくは 2 質量%以下であり、更に好ましくは 1 質量%以下である。

【 0 2 5 7 】

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

10

【 0 2 5 8 】

式 (2) で表される化合物に基づく単量体単位の含有量は、共役ジエン系重合体 1 0 0 質量%あたり、低燃費性、耐摩耗性を高めるために、好ましくは 0 . 0 1 質量%以上であり、より好ましくは 0 . 0 2 質量%以上であり、更に好ましくは 0 . 0 5 質量%以上である。経済性、耐摩耗性を高めるために、好ましくは 2 0 質量%以下であり、より好ましくは 2 質量%以下であり、更に好ましくは 1 質量%以下である。

【 0 2 5 9 】

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

20

【 0 2 6 0 】

ビニル芳香族炭化水素単位の含有量としては、共役ジエン単位とビニル芳香族炭化水素単位との総量を 1 0 0 質量%として、0 質量%以上 (共役ジエン単位の含有量は 1 0 0 質量%以下) であり、好ましくは 1 0 質量%以上 (共役ジエン単位の含有量は 9 0 質量%以下) であり、より好ましくは 1 5 質量%以上 (共役ジエン単位の含有量は 8 5 質量%以下) である。また、低燃費性を高めるために、ビニル芳香族炭化水素単位の含有量は、好ましくは 5 0 質量%以下 (共役ジエン単位の含有量は 5 0 質量%以上) であり、より好ましくは 4 5 質量%以下 (共役ジエン単位の含有量は 5 5 質量%以上) である。

30

【 0 2 6 1 】

共役ジエン系重合体のムーニー粘度 (ML_{1+4}) は、耐摩耗性を高めるために、好ましくは 1 0 以上であり、より好ましくは 2 0 以上である。また、加工性を高めるために、好ましくは 2 0 0 以下であり、より好ましくは 1 5 0 以下である。該ムーニー粘度 (ML_{1+4}) は、J I S K 6 3 0 0 (1 9 9 4) に従って、1 0 0 にて測定される。

【 0 2 6 2 】

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 1 0 0 モル%として、低燃費性を高めるために、好ましくは 7 0 モル%以下であり、より好ましくは 6 0 モル%以下である。また、ウェットグリップ性を高めるために、好ましくは 2 0 モル%以上であり、より好ましくは 4 0 モル%以上であり、更に好ましくは 5 0 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 $9 1 0 \text{ cm}^{-1}$ 付近の吸収強度より求められる。

40

【 0 2 6 3 】

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

【 0 2 6 4 】

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 及び工程 B を有する製造方法

50

をあげることができる。

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

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

【0265】

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、ナトリウムピフェニリド、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、 $\text{---CH}_2\text{---CH}_2\text{---}$ メチルステンテトラマーのナトリウム塩をあげることができる。好ましくは、有機リチウム化合物又は有機ナトリウム化合物であり、より好ましくは、炭素原子数が2~20の有機リチウム化合物又は炭素原子数が2~20の有機ナトリウム化合物である。

【0266】

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

【0267】

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

【0268】

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

10

20

30

40

50

下であり、更に好ましくは1質量%以下であり、特に好ましくは0.5質量%以下である。

【0269】

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

【0270】

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

【0271】

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

【0272】

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

【0273】

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

【0274】

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

【0275】

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。

10

20

30

40

50

【0276】

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

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

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

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

10

【0277】

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

【0278】

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までに、共役ジエン系重合体の炭化水素溶液にカップリング剤を添加してもよい。カップリング剤としては、下記式(4)で表される化合物をあげることができる。

20

【0279】



(式中、 $R^{4,1}$ はアルキル基、アルケニル基、シクロアルケニル基又はアリール基を表し、Mはケイ素原子又はスズ原子を表し、Lはハロゲン原子又はヒドロカルビルオキシ基を表し、aは0~2の整数を表す。)

【0280】

上記式(4)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。

30

【0281】

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

40

【0282】

上記共役ジエン系重合体は、公知の回収方法、例えば、(1)共役ジエン系重合体の炭化水素溶液に凝固剤を添加する方法、(2)共役ジエン系重合体の炭化水素溶液にスチームを添加する方法によって、共役ジエン系重合体の炭化水素溶液から回収することができる。回収した共役ジエン系重合体は、バンドドライヤーや押出型ドライヤーなどの公知の乾燥機で乾燥してもよい。

【0283】

共役ジエン系重合体は、ゴム成分として使用することができ、他のゴム成分や、シリカなどの添加剤を配合して、本発明のゴム組成物を得ることができる。

【0284】

50

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 20 質量% 以上、より好ましくは 40 質量% 以上である。5 質量% 未満であると、低燃費性の改善効果が得られにくい傾向がある。また、上記共役ジエン系重合体の含有量は、好ましくは 90 質量% 以下、より好ましくは 80 質量% 以下である。90 質量% を超えると、耐摩耗性が低下するとともに、高コストになる傾向がある。

【0285】

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限定されないが、例えば、天然ゴム (NR)、イソプレンゴム (IR)、ブタジエンゴム (BR)、スチレンブタジエンゴム (SBR)、アクリロニトリルブタジエンゴム (NBR)、クロロプレンゴム (CR)、ブチルゴム (IIR) などが挙げられる。これらのゴム成分は単独で用いてもよく、2 種以上を組み合わせてもよい。なかでも、低燃費性、ウェットグリップ性能及び耐摩耗性をバランス良く示すことから、NR、BR が好ましい。

これらのゴム成分としては特に限定されず、タイヤ工業において一般的なものを使用できる。

【0286】

ゴム成分 100 質量% 中の NR の含有量は、好ましくは 5 質量% 以上、より好ましくは 15 質量% 以上である。5 質量% 未満であると、十分な低燃費性が得られない傾向がある。また、NR の含有量は、好ましくは 60 質量% 以下、より好ましくは 40 質量% 以下である。60 質量% を超えると、加工性が悪化する傾向がある。

【0287】

ゴム成分 100 質量% 中の BR の含有量は、好ましくは 5 質量% 以上、より好ましくは 15 質量% 以上である。5 質量% 未満であると、十分な耐摩耗性が得られない傾向がある。また、BR の含有量は、好ましくは 60 質量% 以下、より好ましくは 40 質量% 以下である。60 質量% を超えると、低燃費性が悪化する傾向がある。

【0288】

本発明のゴム組成物は、補強剤として、シリカを使用する。上記シリカとしては、乾式シリカ (無水ケイ酸)、湿式シリカ (含水ケイ酸)、コロイダルシリカ、沈降シリカ、ケイ酸カルシウム、ケイ酸アルミニウムなどをあげることができる。これらは 1 種以上用いることができる。シリカの BET 比表面積は、好ましくは、 $50 \sim 250 \text{ m}^2 / \text{g}$ である。該 BET 比表面積は、ASTM D1993-03 に従って測定される。シリカの市販品としては、デグッサ社製 商品名 ウルトラシル VN3-G、東ソー・シリカ社製 商品名 VN3、AQ、ER、RS-150、Rhodia 社製 商品名 Zeosil 1115MP、1165MP などを用いることができる。

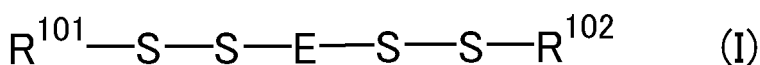
【0289】

シリカの含有量は、ゴム成分 100 質量部に対して、5 ~ 150 質量部である。該含有量は、低燃費性を高めるために、好ましくは 30 質量部以上、より好ましくは 50 質量部以上である。また、耐摩耗性及び強度を高めるために、好ましくは 120 質量部以下、より好ましくは 100 質量部以下である。

【0290】

本発明では、下記式 (I) で表される化合物を架橋剤として使用する。これにより、結合エネルギーが高く、熱安定性が高い CC 結合をゴム組成物に保有させることができる。

【化 28】



[式中、E は炭素数 2 ~ 10 のアルキレン基、 R^{101} 及び R^{102} は、同一若しくは異なって、窒素原子を含む 1 価の有機基を表す。]

【0291】

E のアルキレン基としては、特に限定されず、直鎖状、分岐状、環状のものがあげられるが、なかでも、直鎖状のアルキレン基が好ましい。

【0292】

10

20

30

40

50

Eのアルキレン基の炭素数は、2～10、好ましくは4～8である。アルキレン基の炭素数が1では、熱的な安定性が悪く、アルキレン基を有することによる効果が十分に得られない傾向があり、炭素数が11以上では、-S-S-E-S-S-で表される架橋鎖の形成が困難になる傾向がある。

【0293】

上記条件を満たすアルキレン基としては、エチレン基、トリメチレン基、テトラメチレン基、ペンタメチレン基、ヘキサメチレン基、ヘプタメチレン基、オクタメチレン基、デカメチレン基などがあげられる。なかでも、ポリマー間に-S-S-E-S-S-で表される架橋がスムーズに形成され、熱的にも安定であるという理由から、ヘキサメチレン基が好ましい。

10

【0294】

R¹⁰¹及びR¹⁰²としては、窒素原子を含む1価の有機基であれば特に限定されないが、芳香環を少なくとも1つ含むものが好ましく、炭素原子がジチオ基に結合したN-C(=S)-で表される結合基を含むものがより好ましい。R¹⁰¹及びR¹⁰²は、それぞれ同一でも異なってもよいが、製造の容易さなどの理由から同一であることが好ましい。

【0295】

式(I)で表される化合物としては、例えば、1,2-ビス(N,N'-ジベンジルチオカルバモイルジチオ)エタン、1,3-ビス(N,N'-ジベンジルチオカルバモイルジチオ)プロパン、1,4-ビス(N,N'-ジベンジルチオカルバモイルジチオ)ブタン、1,5-ビス(N,N'-ジベンジルチオカルバモイルジチオ)ペンタン、1,6-ビス(N,N'-ジベンジルチオカルバモイルジチオ)ヘキサン、1,7-ビス(N,N'-ジベンジルチオカルバモイルジチオ)ヘプタン、1,8-ビス(N,N'-ジベンジルチオカルバモイルジチオ)オクタン、1,9-ビス(N,N'-ジベンジルチオカルバモイルジチオ)ノナン、1,10-ビス(N,N'-ジベンジルチオカルバモイルジチオ)デカンなどがあげられる。なかでも、熱的に安定であり、分極性に優れるという理由から、1,6-ビス(N,N'-ジベンジルチオカルバモイルジチオ)ヘキサンが好ましい。

20

【0296】

式(I)で表される化合物の含有量は、ゴム成分100質量部に対して、5質量部以上、好ましくは7質量部以上、より好ましくは10質量部以上である。5質量部未満であると、低燃費性、耐摩耗性を十分に改善できないおそれがある。該含有量は、23質量部以下、好ましくは20質量部以下、より好ましくは18質量部以下、更に好ましくは15質量部以下である。23質量部を超えると、耐摩耗性が低下する傾向がある。

30

【0297】

本発明のゴム組成物は、上述の薬品以外の添加剤を含んでいてもよい。添加剤としては、公知のものを用いることができ、硫黄などの加硫剤；チアゾール系加硫促進剤、チウラム系加硫促進剤、スルフェンアミド系加硫促進剤、グアニジン系加硫促進剤などの加硫促進剤；ステアリン酸、酸化亜鉛などの加硫活性化剤；ジクミルパーオキシド、ジターシャリブチルパーオキシドなどの有機過酸化物；カーボンブラックなどの補強剤；炭酸カルシウム、タルク、アルミナ、クレー、水酸化アルミニウム、マイカなどの充填剤；シランカップリング剤；伸展油；加工助剤；老化防止剤；滑剤を例示することができる。

40

【0298】

上記硫黄としては、粉末硫黄、沈降硫黄、コロイド硫黄、不溶性硫黄、高分散性硫黄があげられる。硫黄の含有量は、ゴム成分100質量部に対して、好ましくは0.1質量部以上、より好ましくは0.3質量部以上、更に好ましくは0.5質量部以上であり、また、好ましくは10質量部以下、より好ましくは5質量部以下、更に好ましくは1質量部以下、特に好ましくは0.8質量部以下である。

【0299】

上記加硫促進剤としては、2-メルカプトベンゾチアゾール、ジベンゾチアジルジサルファイド、N-シクロヘキシル-2-ベンゾチアジルスルフェンアミドなどのチアゾール系

50

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 - オキシエチレン - 2 - ベンゾチアゾールスルフェンアミド、N , N ' - ジイソプロピル - 2 - ベンゾチアゾールスルフェンアミドなどのスルフェンアミド系加硫促進剤；ジフェニルグアニジン、ジオルトトリルグアニジン、オルトトリルビグアニジンなどのグアニジン系加硫促進剤をあげることができる。加硫促進剤の含有量は、ゴム成分100質量部に対して、好ましくは0.1~5質量部であり、より好ましくは0.2~3質量部である。

【0300】

上記カーボンブラックとしては、ファーネスブラック、アセチレンブラック、サーマルブラック、チャンネルブラック、グラファイトなどをあげることができる。カーボンブラックとしては、EPC、MPC及びCCのようなチャンネルカーボンブラック；SAF、ISAF、HAF、MAF、FEF、SRF、GPF、APF、FF、CF、SCF及びECFのようなファーネスカーボンブラック；FT及びMTのようなサーマルカーボンブラック；アセチレンカーボンブラックが例示される。これらは1種以上用いることができる。

【0301】

カーボンブラックの窒素吸着比表面積(N_2SA)は、好ましくは、 $5 \sim 200 \text{ m}^2 / \text{g}$ であり、また、カーボンブラックのジブチルフタレート(DBP)吸収量は、好ましくは、 $5 \sim 300 \text{ ml} / 100 \text{ g}$ である。該窒素吸着比表面積は、ASTM D4820-93に従って測定され、該DBP吸収量は、ASTM D2414-93に従って測定される。市販品としては、三菱化学社製 商品名 ダイアブラックN339、東海カーボン社製 商品名 シースト6、シースト7HM、シーストKH、デグッサ社製 商品名 CK3、Special Black 4Aなどを用いることができる。

【0302】

カーボンブラックの含有量は、ゴム成分100質量部に対して、好ましくは1~50質量部である。また、該含有量は、耐摩耗性及び強度を高めるために、より好ましくは3質量部以上であり、更に好ましくは4質量部以上である。また、低燃費性を高めるために、より好ましくは30質量部以下であり、更に好ましくは10質量部以下である。

【0303】

補強剤の含有量は、ゴム成分100質量部に対して、好ましくは10~150質量部である。また、該含有量は、耐摩耗性及び強度を高めるために、より好ましくは20質量部以上であり、更に好ましくは30質量部以上である。また、低燃費性を高めるために、より好ましくは120質量部以下であり、更に好ましくは100質量部以下である。

【0304】

また、補強剤として用いるシリカの含有量とカーボンブラックの含有量との質量比(シリカの含有量：カーボンブラックの含有量)としては、2：1~50：1であることが好ましい。該質量比は、低燃費性を高めるため、及び、補強性を高めるために、5：1~20：1であることがより好ましい。

【0305】

上記シランカップリング剤としては、ビニルトリクロロシラン、ビニルトリエトキシシラン、ビニルトリス(- メトキシエトキシ)シラン、 - (3,4-エポキシシクロヘキシル)エチルトリメトキシシラン、 - グリシドキシプロピルトリメトキシシラン、 - メタクリロキシプロピルトリメトキシシラン、N - (- アミノエチル) - - アミノプロピルトリメトキシシラン、N - (- アミノエチル) - - アミノプロピルメチルジメトキシシラン、N - フェニル - - アミノプロピルトリメトキシシラン、 - クロロプロピ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、 - アミノプロピルトリエトキシシラン、ビス(3 - (トリエトキシシリル)プロピル)ジスルフィド、 - トリメトキシシリ

10

20

30

40

50

ルプロピルジメチルチオカルバミルテトラスルフィド、 α -トリメトキシシリルプロピルベンゾチアジルトテトラスルフィドなどをあげることができる。これらは1種以上用いられる。市販品としては、デグッサ社製 商品名 Si 69、Si 75などを用いることができる。

【0306】

シランカップリング剤の含有量は、シリカ100質量部に対して、好ましくは1~20質量部であり、より好ましくは2~15質量部であり、更に好ましくは5~10質量部である。

【0307】

上記伸展油としては、アロマチック系鉱物油（粘度比重恒数（V.G.C.値）0.900~1.049）、ナフテン系鉱物油（V.G.C.値0.850~0.899）、パラフィン系鉱物油（V.G.C.値0.790~0.849）などをあげることができる。伸展油の多環芳香族含有量は、好ましくは3質量%未満であり、より好ましくは1質量%未満である。該多環芳香族含有量は、英国石油学会346/92法に従って測定される。また、伸展油の芳香族化合物含有量（CA）は、好ましくは20質量%以上である。これらの伸展油は、1種以上用いられる。

【0308】

本発明の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パ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。

【0309】

混練条件としては、加硫剤及び加硫促進剤以外の添加剤を配合する場合、混練温度は、通常50~200℃であり、好ましくは80~190℃であり、混練時間は、通常30秒~30分であり、好ましくは1分~30分である。加硫剤、加硫促進剤を配合する場合、混練温度は、通常100℃以下であり、好ましくは室温~80℃である。また、加硫剤、加硫促進剤を配合した組成物は、通常、プレス加硫などの加硫処理を行って用いられる。加硫温度としては、通常120~200℃、好ましくは140~180℃である。

【0310】

本発明のゴム組成物は、低燃費性、ウェットグリップ性能及び耐摩耗性が高次元でバランス良く得られる。

【0311】

本発明のゴム組成物は、タイヤのトレッド（キャップトレッド）に使用される。

【0312】

本発明の空気入りタイヤは、上記ゴム組成物を用いて通常の方法によって製造される。すなわち、必要に応じて各種添加剤を配合したゴム組成物を、未加硫の段階でタイヤのトレッドの形状に合わせて押し出し加工し、タイヤ成型機上にて通常の方法にて成形し、他のタイヤ部材とともに貼り合わせ、未加硫タイヤを形成する。この未加硫タイヤを加硫機中で加熱加圧して、本発明の空気入りタイヤを製造できる。

【0313】

本発明の空気入りタイヤは、乗用車用タイヤとして好適に用いることができる。

【実施例】

【0314】

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限定されるものではない。

【0315】

<共重合体1の作成>

内容積20リットルの攪拌装置付きステンレス製重合反応器を、洗浄、乾燥し、乾燥窒素で置換した。次に、工業用ヘキサン（密度680kg/m³）10.2kg、1,3-ブタジエン608g、スチレン192g、3-(1-ピロリジニル)エチルスチレンと4-(1-ピロリジニル)エチルスチレンの混合物2.58g、テトラヒドロフラン6.1ml、エチレングリコールジエチルエーテル4.1mlを重合反応器内に投入した。次に、

10

20

30

40

50

ビス(ジエチルアミノ)メチルビニルシラン 2.74 g、及び、n-ブチルリチウムのn-ヘキサン溶液(n-ブチルリチウム含量15.04 mmol)を重合反応器内に投入し、重合反応を開始した。

攪拌速度を130 rpm、重合反応器内温度を65 とし、1,3-ブタジエンとスチレンとを重合反応器内に連続的に供給しながら、1,3-ブタジエン、スチレン、3-(1-ピロリジニル)エチルスチレン、4-(1-ピロリジニル)エチルスチレン、及びビス(ジエチルアミノ)メチルビニルシランの共重合反応を3時間行った。1,3-ブタジエンの供給量は912 g、スチレンの供給量は288 gであった。重合反応器に投入・供給した単量体総量中、3-(1-ピロリジニル)エチルスチレンと4-(1-ピロリジニル)エチルスチレンの混合物の投入量は0.13質量%であり、ビス(ジエチルアミノ)メチルビニルシランの投入量は0.14質量%であった。

10

次に、得られた重合反応溶液を130 rpmの攪拌速度で攪拌し、[3-(ジエチルアミノ)プロピル]トリメトキシシラン12.8 mmolを重合体溶液に添加し、更に15分間攪拌した。次に、メタノール0.8 mlを含むヘキサン溶液20 mlを重合体溶液に加えて、更に重合体溶液を5分間攪拌した。

重合体溶液に2-tert-ブチル-6-(3-tert-ブチル-2-ヒドロキシ-5-メチルベンジル)-4-メチルフェニルアクリレート(住友化学社製、商品名:スミライザーGM)8.0 g、ペンタエリスリチルテトラキス(3-ラウリルチオプロピオネート)(住友化学社製、商品名:スミライザーTP-D)4.0 gを加え、次に、重合体溶液を、常温、24時間で蒸発させ、更に55 で12時間減圧乾燥し、共重合体1を得た。

20

【0316】

<共重合体2の作成>

内容積20リットルの攪拌装置付きステンレス製重合反応器を、洗浄、乾燥し、乾燥窒素で置換した。次に、工業用ヘキサン(密度680 kg/m³)10.2 kg、1,3-ブタジエン608 g、スチレン192 g、4-ビニルピリジン1.41 g、テトラヒドロフラン6.1 ml、エチレングリコールジエチルエーテル4.0 mlを重合反応器内に投入した。次に、ビス(ジエチルアミノ)メチルビニルシラン2.88 g、及び、n-ブチルリチウムのn-ヘキサン溶液(n-ブチルリチウム含量17.84 mmol)を重合反応器内に投入し、重合反応を開始した。

30

攪拌速度を130 rpm、重合反応器内温度を65 とし、1,3-ブタジエンとスチレンとを重合反応器内に連続的に供給しながら、1,3-ブタジエン、スチレン、4-ビニルピリジン、及びビス(ジエチルアミノ)メチルビニルシランの共重合反応を3時間行った。1,3-ブタジエンの供給量は912 g、スチレンの供給量は288 gであった。重合反応器に投入・供給した単量体総量中、4-ビニルピリジンの投入量は0.07質量%であり、ビス(ジエチルアミノ)メチルビニルシランの投入量は0.14質量%であった。

次に、得られた重合反応溶液を130 rpmの攪拌速度で攪拌し、[3-(ジエチルアミノ)プロピル]トリメトキシシラン13.4 mmolを重合体溶液に添加し、更に15分間攪拌した。次に、メタノール0.8 mlを含むヘキサン溶液20 mlを重合体溶液に加えて、更に重合体溶液を5分間攪拌した。

40

重合体溶液に2-tert-ブチル-6-(3-tert-ブチル-2-ヒドロキシ-5-メチルベンジル)-4-メチルフェニルアクリレート(住友化学社製、商品名:スミライザーGM)8.0 g、ペンタエリスリチルテトラキス(3-ラウリルチオプロピオネート)(住友化学社製、商品名:スミライザーTP-D)4.0 gを加え、次に、重合体溶液を、常温、24時間で蒸発させ、更に55 で12時間減圧乾燥し、共重合体2を得た。

【0317】

<共重合体3の作成>

内容積20リットルの攪拌装置付きステンレス製重合反応器を、洗浄、乾燥し、乾燥窒素

50

で置換した。次に、工業用ヘキサン（密度 680 kg/m^3 ） 10.2 kg 、1,3-ブタジエン 608 g 、スチレン 192 g 、テトラヒドロフラン 6.1 mL 、エチレングリコールジエチルエーテル 4.4 mL を重合反応器内に投入した。次に、ビス（ジエチルアミノ）メチルビニルシラン 2.63 g 、及び、*n*-ブチルリチウムの *n*-ヘキサン溶液（*n*-ブチルリチウム含量 14.68 mmol ）を重合反応器内に投入し、重合反応を開始した。

攪拌速度を 130 rpm 、重合反応器内温度を 65 とし、1,3-ブタジエンとスチレンとを重合反応器内に連続的に供給しながら、1,3-ブタジエン、スチレン、及び、ビス（ジエチルアミノ）メチルビニルシランの共重合反応を3時間行った。1,3-ブタジエンの供給量は 912 g 、スチレンの供給量は 288 g であった。重合反応器に投入・供給した単量体総量中、ビス（ジエチルアミノ）メチルビニルシランの投入量は 0.13 質量% であった。

10

重合体溶液にメタノール 0.8 mL を含むヘキサン溶液 20 mL を加え、重合体溶液を5分間攪拌した。次に、重合体溶液に2-tert-ブチル-6-(3-tert-ブチル-2-ヒドロキシ-5-メチルベンジル)-4-メチルフェニルアクリレート（住友化学社製、商品名：スミライザーGM） 8.0 g 、ペンタエリスリチルテトラキス（3-ラウリルチオプロピオネート）（住友化学社製、商品名：スミライザーTP-D） 4.0 g を加え、次に、重合体溶液を、常温、24時間で蒸発させ、更に 55 で12時間減圧乾燥し、共重合体3を得た。

【0318】

20

得られた共重合体1~3について、以下の方法により分析した。結果を表1に示す。

【0319】

<ムニー粘度 ($M L_{1+4}$) >

JIS K 6300 (1994) に従って、 100 にて共重合体のムニー粘度を測定した。

【0320】

<ビニル量 (単位：モル%) >

赤外分光分析法により、ビニル基の吸収ピークである 910 cm^{-1} 付近の吸収強度より共重合体のビニル量を求めた。

【0321】

30

<スチレン量 (単位：質量%) >

JIS K 6383 (1995) に従って、屈折率から共重合体のスチレン量を求めた。

【0322】

<分子量分布 (M_w / M_n) >

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

(1) 装置：東ソー社製 HLC-8220

(2) 分離カラム：東ソー社製 HM-H (2本直列)

(3) 測定温度： 40

40

(4) キャリア：テトラヒドロフラン

(5) 流量： 0.6 mL/分

(6) 注入量： $5 \mu\text{L}$

(7) 検出器：示差屈折

(8) 分子量標準：標準ポリスチレン

【0323】

【表 1】

	共重合体		
	1	2	3
ムーニー粘度	52	47	41
ビニル量(モル%)	57	57	57
スチレン量(質量%)	25	25	24
Mw/Mn	1.2	1.2	1.1

【 0 3 2 4 】

以下に、実施例及び比較例で用いた各種薬品について説明する。

10

NR : RSS # 3

BR : 宇部興産(株)製のウベボールBR150B

共重合体 1 ~ 3 : 上記方法で合成

カーボンブラック : 三菱化学(株)製のダイアブラックN220 (N₂SA : 111 m² / g、DBP吸収量 : 115 ml / 100 g)

シリカ : デグッサ社製のウルトラシルVN3 (N₂SA : 175 m² / 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)

架橋剤 : ランクセス社製のVulcuren VP KA9188 (1,6-ビス(N,N'-ジベンジルチオカルバモイルジチオ)ヘキサン)

20

老化防止剤 : 住友化学(株)製のアンチゲン3C

ワックス : 大内新興化学工業(株)製のサンノックN

オイル : (株)ジャパンエナジー製のX-140

ステアリン酸 : 日油(株)製のピ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

加硫促進剤D : 住友化学(株)製のソクシノールD

【 0 3 2 5 】

(実施例及び比較例)

30

表2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、架橋剤、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架橋剤、硫黄及び加硫促進剤を添加し、オープンロールを用いて、80の条件下で5分間練り込み、未加硫ゴム組成物を得た。得られた未加硫ゴム組成物を170で20分間、0.5mm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: 195/65R15)を製造した。

【 0 3 2 6 】

40

得られた加硫ゴム組成物及び試験用タイヤについて、以下の評価を行った。結果を表2に示す。

【 0 3 2 7 】

<評価項目及び試験方法>

<転がり抵抗>

転がり抵抗試験機を用い、試験用タイヤを、リム(15×6JJ)、内圧(230kPa)、荷重(3.43kN)、速度(80km/h)で走行させたときの転がり抵抗を測定し、比較例3を100とした時の指数で表示した。数値が大きいほど転がり抵抗が小さく、低燃費性に優れることを示している。

【 0 3 2 8 】

50

< ウェットグリップ性能 >

各試験用タイヤを車両（国産FF2000cc）の全輪に装着して、湿潤アスファルト路面にて初速度100km/hからの制動距離を求めた。結果は指数で表し、数値が大きいほどウェットスキッド性能（ウェットグリップ性能）が良好である。指数は次の式で求めた。

$$(\text{ウェットグリップ性能指数}) = (\text{比較例3の制動距離}) / (\text{各配合の制動距離}) \times 100$$

【0329】

< 耐摩耗性 >

LAT試験機（Laboratory Abrasion and Skid Tester）を用い、荷重50N、速度20km/h、スリップアングル5°の条件にて、各加硫ゴム組成物の容積損失量を測定した。表2の数値（耐摩耗性指数）は、比較例3の容積損失量を100としたときの相対値である。当該数値が大きいほど耐摩耗性に優れている。

【0330】

【表2】

		実施例			比較例		
		1	2	3	1	2	3
配合 (質量部)	NR	20	20	20	20	20	20
	BR	20	20	20	20	20	20
	共重合体1	60	-	60	60	-	-
	共重合体2	-	60	-	-	-	-
	共重合体3	-	-	-	-	60	60
	カーボンブラック	5	5	5	5	5	5
	シリカ	75	75	75	75	75	75
	シランカップリング剤	6	6	6	6	6	6
	架橋剤	7	7	10	-	7	-
	老化防止剤	2	2	2	2	2	2
	ワックス	2	2	2	2	2	2
	オイル	20	20	20	20	20	20
	ステアリン酸	2	2	2	2	2	2
	酸化亜鉛	2	2	2	2	2	2
	硫黄	0.5	0.5	0.3	1.5	0.5	1.5
	加硫促進剤CZ	1.5	1.5	1.5	1.5	1.5	1.5
	加硫促進剤D	1	1	1	1	1	1
評価	転がり抵抗指数	135	155	140	110	110	100
	ウェットグリップ性能指数	130	140	130	110	100	100
	耐摩耗性指数	130	130	135	102	110	100

【0331】

表2に示すように、特定の単量体単位を有し、かつ末端が特定の化合物で変性された共役ジエン系重合体（共重合体1、2）と、シリカと、式（I）で表される化合物（架橋剤）とを配合した実施例は、比較例のゴム組成物に比べて、低燃費性、ウェットグリップ性能及び耐摩耗性が相乗的に改善し、これらの性能が高次元でバランス良く得られた。

フロントページの続き

(56)参考文献 特開2012-229385(JP,A)
特開2012-197407(JP,A)
特開2014-125543(JP,A)

(58)調査した分野(Int.Cl., DB名)

C08L 1/00 - 101/00
C08K 3/00 - 13/08
C08F 6/00 - 246/00
C08F 301/00