

# 省燃費タイヤ用 溶液重合SBRの 開発と展望

住友化学株式会社

石油化学品研究所

林 真 弓  
濱 久 勝  
稲 垣 勝 成

## Development and Foresight of Solution SBR for Energy-Saving Tires

Sumitomo Chemical Co., Ltd.

Petrochemicals Research Laboratory

Mayumi HAYASHI

Hisakatsu HAMA

Katsunari INAGAKI

The market for solution styrene-butadiene rubber (S-SBR) which is mainly used for the treads of the energy-saving tires for automobiles has continued to expand rapidly while the fuel efficiency requirements for automobiles have been tightened worldwide. It is estimated that the annual S-SBR demand for 2011 will be between 400 and 350 thousands tons.

We have supplied special S-SBR with controlled molecular weight, molecular weight distribution and quantitative end-functionality to both domestic and international tire manufacturing companies and our S-SBR has been highly regarded.

This review first describes an overview of the recent situation for high performance energy-saving tires, then gives some details of our technology for both polymer design and synthesis and of the latest general analysis technologies.

### はじめに

近年、地球温暖化対策、環境保護の観点から世界的に省資源・省エネルギーに関する意識が高まっている。我が国の二酸化炭素排出量の約2割を占める運輸部門に注目すると、そのうちの約9割が自動車による。この背景を受けて、国土交通省は省エネ法に基づき、自動車

の2015年度燃費基準を策定している。この基準により乗用車の燃費は、2015年度には2004年度実績と比べて平均23.5%の改善が求められている (Fig. 1)。自動車業界ではその他にも、省エネルギーに繋がる、様々な施策が試みられてきた。例えば国土交通省により、燃費性能の高い自動車の普及を促進するために「自動車の燃費性能の評価及び公表に関する実施要領」が定められ、

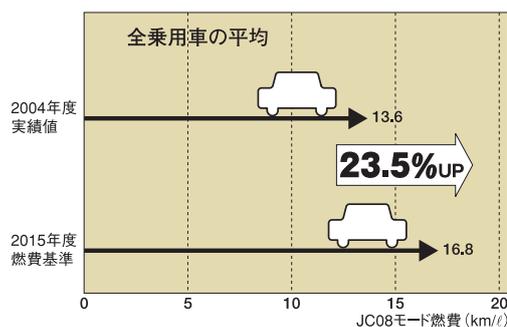


Fig. 1 Target of fuel economy in 2015<sup>1)</sup>

各自動車の燃費性能がメーカー別・車種別に毎年「自動車燃費一覧」として公表されてきた。その他にも、昨年行われたエコカー減税制度（環境性能に優れた自動車に対する自動車重量税等の減免）は記憶に新しい。

タイヤは自動車が地面に接している唯一の部品であり、エンジンの駆動力を地面に伝え、「走る」「曲がる」「止まる」といった自動車の基本動作を可能にする。これら基本性能を損なうことなく、高まる省燃費性能の要望に応えていくことは、最近のタイヤメーカーの最大の課題であると言っても過言ではない。省燃費タイヤの普及と共に、かつては専門用語であった「低燃費」や「転がり抵抗」などの言葉が、社会一般に認知されるまでになってきた。また近年乗用車だけでなく、トラック・バスなどの大型車用タイヤにも省燃費性能が求められている。

省燃費性能は、タイヤの基本構造から各種材料に到るまでの様々な改良や工夫によって達成されるが、中でも特に路面接地部であるトレッドの果たす役割は大きい。省燃費性能と安全性に繋がる路面把握力（グリップ）という二律背反の両特性を同時に改良し得るポリマー素材を提供する意味で、タイヤ用ポリマーメーカーに対して最も期待が寄せられている領域でもある。

当社は、主にトレッド部に用いられる溶液重合SBR（Styrene-Butadiene Rubber、スチレンーブタジエンゴム）事業を1983年に開始し、緻密に構造を設計・制御したSBRを国内外のタイヤメーカーに供給して、高い評価を得ている。一方で省燃費タイヤ用SBRの需要は、世界的に自動車燃費規制が強化される中で急速に拡大しており、2011年には年間35～40万トンが見込まれている。とりわけ中国・インド・タイを初めとするアジア諸国では、タイヤメーカーの新增設計画が相次いでいることから、SBR供給能力の早期拡大が期待されていた。このような中、当社はシンガポール・ジュロン島内に新プラントを建設することを決定した。新設するプラントの生産能力は年産4万トン、2013年第4四半期に商業運転開始の予定である。

本稿では高性能省燃費タイヤをとりまく最近の状況を概観した後に、著者らのポリマー設計・合成技術を紹介、最後に最新の分析技術についても触れていきたい。

## 高性能省燃費タイヤ

### 1. ラベリング制度

国内では一般社団法人 日本自動車タイヤ協会（JATMA）により「低燃費タイヤ等の普及促進に関する表示ガイドライン（ラベリング制度）」が制定され、2010年1月からスタートしている。対象となるのは、消費者が交換用としてタイヤ販売店等で購入する乗用車用夏用タイヤで、その性能を示す表示（ラベリング）

が付与されることになった。各タイヤメーカーのカタログ等に、タイヤ毎の性能を表すラベリングが表示されることになったこの制度では、一般消費者の目に直接見える形で自主基準として行われることとなった。

ラベリングは「燃費性能（転がり抵抗係数）」と「ウェットグリップ性能」（湿潤路面での制動性能）の二つの性能表示からなり、それぞれの性能をラベル表示している。燃費性能はAAAを頂点に、AA、A、B、Cの5つの等級に区分、またウェットグリップ性能は、aからdまでの4つの等級に区分されている（Fig. 2）。転がり抵抗係数が9.0以下であるA以上で、ウェットグリップ性能がa～dのタイヤが「低燃費タイヤ」と定義されている。



単位 (N/kN)		単位 (%)	
転がり抵抗係数 (RRC)	等級	ウェットグリップ性能 (G)	等級
$RRC \leq 6.5$	AAA	$155 \leq G$	a
$6.6 \leq RRC \leq 7.7$	AA	$140 \leq G \leq 154$	b
$7.8 \leq RRC \leq 9.0$	A	$125 \leq G \leq 139$	c
$9.1 \leq RRC \leq 10.5$	B	$110 \leq G \leq 124$	d
$10.6 \leq RRC \leq 12.0$	C		

Fig. 2 Labeling for “Fuel Efficient Tires” by JATMA<sup>2)</sup>

2011年3月現在、タイヤメーカー8社がこの自主基準に参加しており、24種の製品が低燃費タイヤとなっている。その中で最高の低燃費性能を示すAAAのタイヤは、現状3種である。

このようなラベリング制度は日本を皮切りに、韓国や欧州でも導入される予定となっている。特に欧州では、低燃費性能とウェットグリップ性能に加え、回転騒音（ロードノイズ）の表示が義務付けられる予定である。また米国でもラベリング制度の導入が検討されている。

### 2. シリカ配合ゴム

タイヤの強度を維持するためには、原料となる生ゴムに加硫を施すことはもとより、強度を向上させるた

めにフィラー（補強用充填剤）を配合することが必要である。乗用車用タイヤトレッドの配合設計は、ここ20年余りで大きな変貌を遂げてきた。フィラー種として、古くから知られるカーボンブラックに替えて、シリカが用いられることが多くなっている。省燃費性能とウェットグリップ性能の観点から、シリカをフィラーとするいわゆる「シリカ配合」が欧州を皮切りに世界に伝播し、高性能省燃費タイヤには必須の技術となってきた。

シリカは表面が親水性のシラノール基で覆われているため、カーボンブラックと比較して、一般に炭化水素系ポリマーとの親和性が低く、良分散が困難であり、そのままでは補強性に劣るという難点を有していた。その解決手段として登場したのがEvonik Degussa GmbHのSi69に代表されるシランカップリング剤である（Fig. 3）。シランカップリング剤は一般に6個のアルコキシシリル基と(S)n結合を合わせ持つポリスルフィド系化合物で、アルコキシシリル基部分がシリカ表面と、(S)n結合が開裂してSBRの二重結合部分と反応することにより、親和性の低いSBRとシリカ粒子とを化学的に結合させる仲立ちをすると考えられている。シランカップリング剤の使用により、シリカ配合ゴムはカーボン配合ゴムでは成し得なかった高度な物性を実現できるようになった。そして開発当初は非常に高価格だったシランカップリング剤も、原料となるナトリウムオリゴスルフィドの画期的な合成方法が高田らにより開発されるなど<sup>3)</sup>、合成技術のブレークスルーにより、安価且つ安定的に供給されるようになり、シリカ配合ゴムは高性能省燃費タイヤの分野を中心に、広く普及することになった。

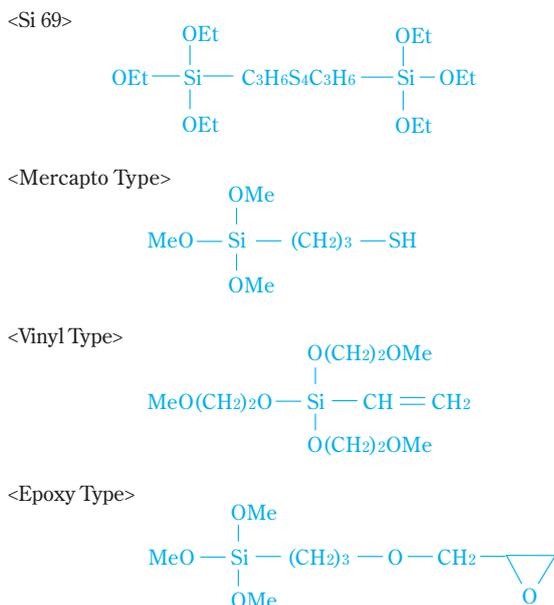


Fig. 3 Various silane coupling agents

また高性能省燃費タイヤの需要の高まりと共に、新規シランカップリング剤の開発も加速している。例えばγ-メルカプト-プロピルトリメトキシシランのようなメルカプト系、ビニルトリス（2-メトキシエトキシ）シランのようなビニル系、γ-グリシドキシ-プロピルトリメトキシシランのようなエポキシ系など、様々なゴム用シランカップリング剤が開発されている。いずれのシランカップリング剤も、アルコキシシリル基によりシリカと結合する点は従来のポリスルフィド系と同様であるが、SBRとの結合様式が様々な工夫されている。よりシリカの分散性を高め、ポリマーとの結合を自在にコントロールできるシランカップリング剤の開発が期待される。

### シリカ配合用 溶液重合SBR

当社ではポリマー構造制御の観点から、シリカ配合用SBRのグリップ性能と省燃費性能向上の両立を目指している。溶液重合SBRはリビングアニオン重合により合成されるため、ポリマー基本骨格（スチレンやブタジエンの組成、ガラス転移点、分子量や分子量分布、マイクロ構造など）を精密に制御することができる<sup>4)</sup>。更に新しいシリカ配合用グレード開発に向けて、ポリマー基本骨格とポリマー中への極性官能基導入を検討している。極性官能基を導入してポリマー自体の極性を上げることで、親水性のシリカとの親和性に直接的な好影響が期待できる。シリカ配合の場合、カーボンとゴム成分との間に見られるような物理吸着が期待できないため、ポリマー鎖中への極性官能基の導入は、シランカップリング剤と同様に、より一層重要になってくる。

ポリマー鎖末端への極性官能基の導入は、高い求核性を有する生長末端ポリマーアニオンと求電子試薬である末端変性剤を反応させることにより比較的簡便に達成することができる<sup>5)</sup>。この方法では、官能基は重合の停止末端に導入されることになる。一般的な極性基であるアミノ基や水酸基の他、シロキサン化合物、エポキシ化合物、スズ化合物などの導入が報告されており、省燃費性能向上に寄与することが明らかになっている<sup>6),7)</sup>。

近年、シランカップリング剤の考え方を応用し、アルコキシシラン化合物を変性剤に用いる試みがなされ、注目を集めている<sup>8),9)</sup>。新しいシランカップリング剤として先に述べたγ-グリシドキシ-プロピルトリメトキシシランでポリマー鎖末端を変性したSBRの合成なども報告されている。

当社でも独自のアルコキシシラン化合物を用いた検討を行っている。その興味深い重合特性について、ここに紹介したい。

## 1. アルコキシシリル基変性SBR

SBRのリビングポリマーとアルコキシシリル基との反応では、速やかにポリマーアニオンの求核付加反応が起きて、アルコキシ基が脱離することが知られている。従って、アルコキシ基をポリマー鎖末端に導入するためには、反応系の設計が必要になってくる。我々は、官能基Fを有するジアルコキシシラン化合物およびトリアルコキシシラン化合物 (Fig. 4) を用いて、その反応条件、具体的には添加条件や反応条件等を工夫することにより、様々なポリマーの分子設計を可能にした。



Fig. 4 Di-alkoxysilane and tri-alkoxysilane with functional group (F)

以下にトリアルコキシシラン化合物を例に、説明する (Fig. 5)。SBRのリビングポリマーとトリアルコキシシラン化合物の1個のアルコキシ基が反応すれば、鎖末端に2個のアルコキシ基と官能基Fが導入されたSBR (1) を得ることができる。SBRのリビングポリマーとトリアルコキシシラン化合物の2個のアルコキシ基が反応すれば、2本のSBR鎖が結合し、結合点に残りの1個のアルコキシ基と官能基Fが導入されたカップリングポリマー (2) が生成される。またSBRのリビングポリマーとトリアルコキシシラン化合物の3個のアルコキシ基が等しく反応すれば、官能基Fのみが導入されアルコキシ基を有していない3分岐のスターポリマー (3) が生成される。シリカ配合系における省燃費性能の発現のためには、アルコキシシリル基がより多く導入されたSBR (1) の生成割合を高くすることが重要になってくる。

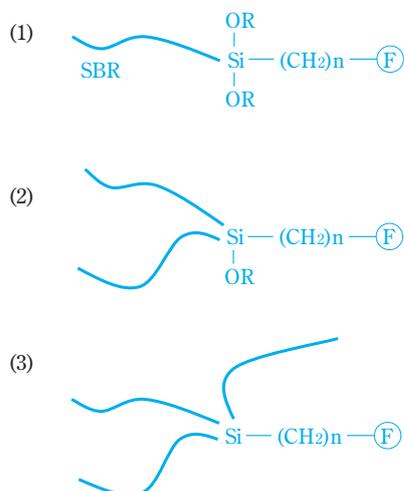


Fig. 5 Resulting SBR structures (1)–(3)

オートクレーブで合成したSBRリビングポリマー中への、活性末端と等量のトリアルコキシシラン化合物の添加速度を変化させた。この場合、トリアルコキシシラン化合物の添加速度が遅く、少量ずつ添加するほどアルコキシ基は不足状態となる。従って、添加速度は速ければ速いほど好ましい。結果は予想通り、添加速度を早くした方がカップリングポリマーが減少することが示された (Fig. 6)。その他にも、攪拌の強弱やSBRリビングポリマーの分子量によっても、カップリングポリマーの生成率が変化することが明らかになった。

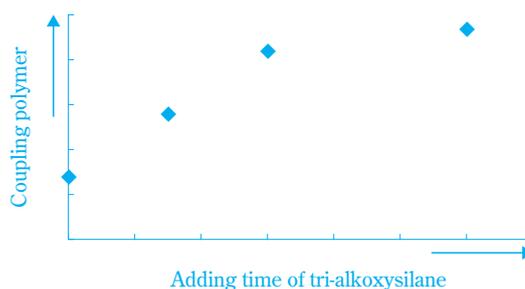


Fig. 6 Coupling polymer against adding time of tri-alkoxysilane

カップリングポリマーには、シリカ表面と結合するアルコキシ基が1個または存在しないため、目的の省燃費性能とグリップ性能の両立には寄与が低い。しかし一方で、分子量が増加することによる強度の向上、分子量分布が広がることによる加工性の改良などの効果が期待できる。当社では種々の合成条件を制御することで、様々な特性のSBR設計手法を見出している。例えば、同じトリアルコキシシラン化合物を用いているにも関わらず、その設計手法を変えることでFig. 7に示したような多様な分子量分布のポリマーを自在に簡便に合成することに成功している。このような多峰性の分子量分布を有するポリマーの合成には、従来はそれぞれ分子量に対応するカップリング剤の選定および、対応する数段階の反応、あるいはポリマーブレンドが必須であった。トリアルコキシシランを用いることに

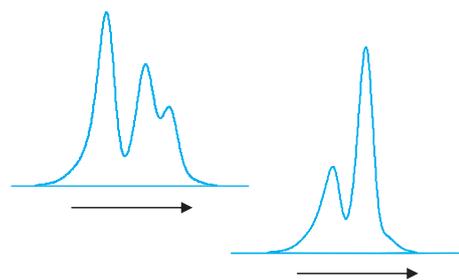


Fig. 7 GPC curves of various functionalized SBR with tri-alkoxysilane

より、分子量分布の制御がより簡便かつ精密にできる可能性があり、SBRの性能向上が期待される。

## 2. 次世代マルチファンクショナルSBR

当社では鎖末端だけでなく鎖中も含めた複数の箇所に複数個の官能基を導入した、新しい多官能基化ポリマー（マルチファンクショナルポリマー）を他社に先駆けて開発してきた。マルチファンクショナルポリマーは、官能基の種類や個数、導入位置（官能基間の長さ）などを選ぶことで、無限の種類をデザインすることができ（Fig. 8）、その性能と可能性には大きな期待が寄せられている。しかし、個々のマルチファンクショナルポリマーに対する分子設計とその実現に向けては、制御しなければならないファクターが膨大にある。そのため従来ポリマー合成の分野では、特定の個数の官能基を、特定の位置へ導入することは非常に困難であるとされ、僅かにある報告例も複数の煩雑な工程を要するものが多かった。しかし当社では既にマルチファンクショナルポリマー合成のいくつかの画期的な合成法を開発し、まさに‘オーダーメイド’ポリマーの実現を可能にした。その一例である、1,1-ジフェニルエチレン（DPE）化合物を用いたマルチファンクショナルポリマーの簡便な合成法の開発では、産学界で高い評価を得ている<sup>10, 11)</sup>。

ここでは当社のマルチファンクショナルSBRの設計と性能について紹介したい。

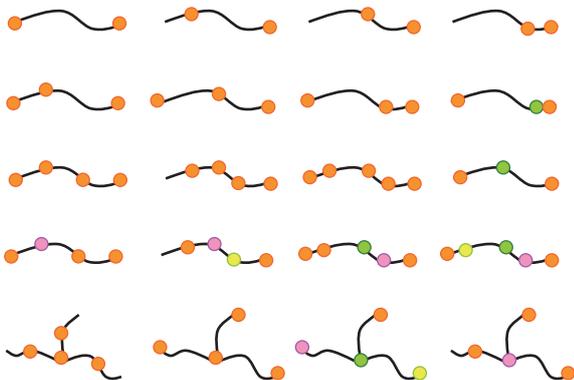


Fig. 8 Various multi-functional polymers

同一種類の官能基を複数個、鎖中の異なる位置に導入したポリマーを合成した（Fig. 9）。具体的には2個の官能基を導入したポリマーとして、ポリマー鎖の両末端に官能基を導入したもの、ポリマー鎖の中央と鎖末端に官能基を導入したものを、3個の官能基を導入したポリマーとして、鎖中にほぼ等間隔に官能基を導入したものを合成した。得られたポリマーの構造および性能評価結果をTable 1にまとめた。省燃費性能のひとつ

の指標となる反撥弾性（Resilience）は、JIS K-6255に従い、60℃でリュプケ式反撥弾性試験機を用いて測定した値を採用した。反撥弾性の値は、大きいほど省燃費性能に優れることを示す。



Fig. 9 Multi-functional polymers synthesized

Table 1 Evaluation results of multi-functional polymers

	Mw	ML <sub>1+4</sub> 100°C	Resilience
	35.7	56	57
	34.8	51	64
	37.7	63	62
	29.5	53	65

2個を導入したポリマーでは、いずれの場合もポリマーの片方の末端には必ず官能基を導入しているのに対し、3個を導入したポリマーではいずれも鎖中に官能基を導入した。今回使用した官能基の場合、反撥弾性値はいずれの場合も、片末端変性ポリマーに比べて良好な結果となった。官能基数が増えるほど反撥弾性値は高くなり、2個の官能基を導入した2種類のポリマーの比較では、両末端に官能基を導入したポリマーの方が、中央と鎖末端に官能基を導入したポリマーよりも、良好な結果となった。この結果は導入する官能基の種類により大きく異なることが予想され、官能基毎の特徴を生かした分子設計により、これまでにない性能を発現させられる可能性がある。

## モルフォロジーとカ学物性との関係解明に向けた取り組み

高性能省燃費タイヤに必須であるシリカ配合では、先に述べたように、それまでのカーボンブラック配合に比べて、省燃費性能とウエットグリップ性能の高レベルでのバランスの向上が可能である。シリカ粒子は親水性表面を有するために、雨天時のウエットグリップはカーボンブラック配合に比べて良好である。一方、シリカ粒子の親水性は、疎水性のポリマーとの相容性を低下させ、シリカ分散を妨げるため、フィラー凝集体内部のフィラー粒子同士の摩擦によるエネルギーロス、フィラー粒子の凝集による耐摩耗性の低下が懸念される。

しかし前述のシランカップリング剤を利用することや、ポリマー分子鎖に一部変性を施してシリカ粒子の分散性を向上させることで、優れた省燃費性能が達成される。

一方、タイヤメーカー各社では、コンピューターシミュレーション等を用いてタイヤの溝の最適化をはじめ、タイヤ全体の設計を行うことで、タイヤ性能の向上に向けて開発が進められている。

また最近、シリカの分散性とシリカ粒子周辺のゴムの特性に注目した、構造と物性の相関を明らかにするための様々な検討が試みられている。本章では、この構造解析の最近の動向と、今後の展望について述べたい。

### 1. 粘弾性特性とタイヤ特性との関係

省燃費性能やグリップ性能の機能発現は、タイヤが路面から受ける運動モードにおける材料のヒステリシスロス (=  $\tan \delta$ ) の大きさに決まると考えられている。ヒステリシスロスとは、力学的に周期的な運動を受けた際の材料のエネルギー損失量である。Fig. 10に、ヒステリシスロスの模式図を示す。ヒステリシスロスを小さくすることは、車の運動エネルギーを無駄に消費することなく走行することを意味し、省燃費性能の向上につながる。逆にヒステリシスロスを大きくすることは、運動エネルギーを熱エネルギーに変換することであり、グリップ性能を向上させることができる。

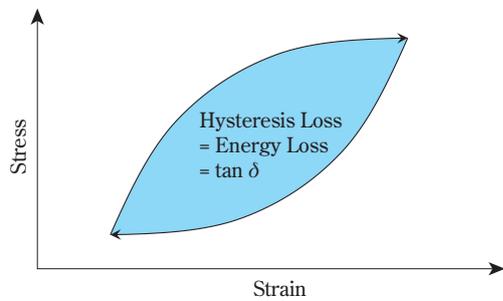


Fig. 10 Schematic image of hysteresis loss

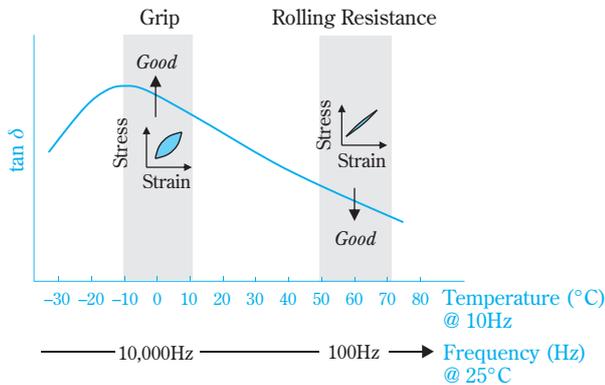


Fig. 11 Relationship between  $\tan \delta$  and performance of tire

一見、両者は全く両立しない性能のように見えるが、Fig. 11に示すように、省燃費性能とグリップ性能それぞれの運動モード（周波数）が異なることが知られており、適切に材料を設計することで、高レベルでバランスさせることが可能となる<sup>12)</sup>。

### 2. シリカの分散構造とタイヤ特性との関係

タイヤに配合されるシリカの一次粒子は約20~30nmの大きさであり、先に述べたように水素結合により凝集しやすい性質を有している。したがってゴム中のシリカは、多かれ少なかれ凝集構造を有することが知られている。この凝集サイズが小さければ小さいほどシリカ粒子が分散していることを意味し、省燃費性能やグリップ性能が向上すると考えられている。例として、Fig. 12に変性を施した各種ポリマー中（SBRA、SBR B、SBR C）に分散したシリカを透過型電子顕微鏡によって観察した結果と、省燃費性能とグリップ性能の優劣の比較を示した。

省燃費性能とグリップ性能の二つの性能を高レベルでバランスさせるためには、前述のようにポリマーに効果的な変性を施すことで、シリカ粒子の分散を促すことが重要である。ゴム中のシリカ粒子の分散状態は、透過型電子顕微鏡により観察することができる。しかしこの方法で得られるのは二次元の情報であり、三次元的に広がる粒子の凝集構造の情報を得ることは困難であった。

これを解決したのが、近年開発された三次元透過型電子顕微鏡である。この方法により、シリカの凝集構造に関する立体的な情報を、初めて得ることができるようになってきた<sup>13)</sup>。凝集構造の具体的な大きさや、シリカの位置やサイズを“直接”観察できるようになったことで、有限要素法によってゴム中のシリカの凝集構造が及ぼす影響をシミュレーションする報告もなされている<sup>14)</sup>。

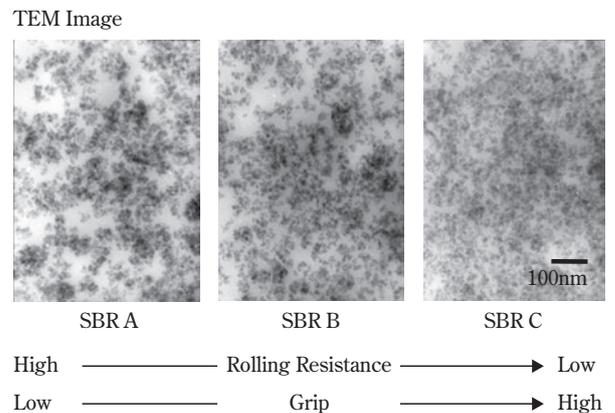


Fig. 12 Relationship between dispersibility of silica and performance of tire

しかし、三次元透過型電子顕微鏡は、視覚的に三次元情報を得る手段としては極めて有効であるが、一方で観察範囲が狭く、統計情報にはやや乏しい。これを補う観点から超小角～小角X線散乱実験による試みもなされてきている。また、シリカ粒子の凝集によって起こるヒステリシスロスの発生過程を明らかにするために、放射光を用いて一軸伸張引っ張り測定とX線散乱測定を同時に行うことによって、ヒステリシスロスとシリカの分散状態との関係を解明する研究がなされてきている<sup>15)</sup>。

更に、このような実験を通して得られる二次元のX線散乱像から、リバースモンテカルロ法と呼ばれる手法で、シリカの分散配置の変化を追跡する試みもなされ<sup>16)</sup>、この結果を用い、地球シミュレーターでゴム中のシリカの凝集構造が及ぼす力学物性への影響をシミュレーションする報告もなされている<sup>17)</sup>。

以上のように、三次元電子顕微鏡や超小角～小角X線散乱の手法とシミュレーションの手法を組み合わせることで、シリカ粒子の凝集を抑え、局所的な歪が抑えられ、ヒステリシスロスを低減できるというメカニズムをシミュレーション上で視覚化することが可能になってきた。

### 3. シリカに吸着するゴムの役割

ここまで、シリカ配合ゴム中に分散するシリカの役割について述べてきた。一方で古くから、ゴムをカーボンブラックやシリカなどのフィラーと共に混練した場合に、フィラーの周りに吸着するゴムが存在することが知られている。

シリカに強く吸着したゴムがトルエンのような有機溶剤に溶解しない性質を利用して、架硫前のシリカとゴムの混合物中の吸着ゴム量を定量することができる。例として、我々が開発したポリマーが与える吸着ゴム量をTable 2に示す。Fig. 12と比較することで、吸着ゴム量を多く与えるゴムほど、タイヤ特性に優れることが定性的にわかる。

**Table 2** Amount of bound rubber after mixing rubber, silica and curing reagents

	SBR A	SBR B	SBR C
Bound Rubber (wt%)	50 - 60	60 - 70	80 - 90

またフィラーに吸着しているゴムは、吸着していないゴムに比べて、ポリマー分子鎖が拘束されることで、ガラス転移点が高くなるといわれている。フィラーに吸着するゴムと吸着しないゴムとが様々な割合で存在することで、各運動モードに対応する温度領域、周波

数の粘弾性特性に影響を与え、結果として省燃費性能とグリップ性能にも影響を与えるのである。分子力学計算によって、固体表面上のポリマー分子鎖の吸着形態とガラス転移点の相関が検討されている。ここでは、片末端で吸着している場合に比べて、両末端で吸着してループ状になっているものの方が、ガラス転移点が高くなることが報告されている<sup>18)</sup>。変性ポリマーによって、フィラーへの吸着形態を制御することが可能であり、シリカに吸着する分子鎖形態によっても粘弾性挙動を制御できることを示唆する報告である。

また、吸着ゴムの分子鎖がシリカ粒子表面でどのように拘束されているのかについては、パルスNMRで測定する方法が試みられ、吸着ゴム相のシリカ表面での拘束具合を緩和時間から検証する試みがなされている<sup>19)</sup>。シリカに吸着したゴム成分は、吸着していないものよりも拘束されている結果である。

一方、シリカの凝集構造の大きさと吸着されたゴムの厚みを測定する方法として、最近、中性子散乱を用いた測定手法も提案されており、吸着ゴム相厚みが具体的に明らかになりつつある<sup>20), 21)</sup>。この竹中らの検討では、シリカの一次粒子サイズが13.6nm、凝集体サイズが65.4nmに対して、吸着ゴム相の厚みが5.3nmという結果が報告されている。

このような情報をも、シミュレーションに取り入れることにより、今後さらに精度の高い物性予測が可能になると思われる。

### 4. 今後の展望

このように、フィラーの分散構造や吸着ゴムの様々な特性を明らかにする手法は確立されつつある。これら様々な因子が作用しあって、タイヤ特性としての粘弾性挙動に影響を与えると考えられるが、どの要因がどのように作用しあって、実際のタイヤ特性に寄与するかを解明するには、各種因子を考慮した様々な検討が必要である。その他にも吸着したゴムと吸着していないゴムのガラス転移温度の差を利用して、力学モデルによる解析の試みがなされている<sup>22)</sup>。このような手法をさらに発展させると共に、ポリマーや配合物の構造や性質など、様々な情報を考慮することによって、詳細な力学モデルを確立することが重要であると考えられる。

様々な実態に合った情報を取り入れた力学モデルを提案することができれば、好ましい物性を与えるための構造（力学モデル中の好ましいパラメータ）を予想でき、そのためにはどのような因子を工夫すればよいのかがわかる。そうなれば、原料となるポリマー構造の好ましい姿を明らかにすることが可能になるはずである。

特に、昨今、制御されたポリマー構造（一次構造、分岐構造、変性形態）がフィラーの分散構造に代表さ

れる配合ゴムのモルフォロジーに大きな影響を与える可能性も示唆されている。

今後ますます、種々の構造を有するポリマーの精密合成のみならず、配合ゴムの構造解析や物性との関係解明といった多角的なアプローチから、総合的に材料開発していくことが重要となると考えられる。

## 引用文献

- 1) 経済産業省, 国土交通省, 社団法人日本自動車工業会, リーフレット「乗用車・貨物車の2015年度燃費基準スタート」, <http://www.mlit.go.jp/kisha/kisha07/09/090702/01.pdf> (2007).
- 2) 一般社団法人日本自動車タイヤ協会 HP, <http://www.jatma.or.jp/labeling/outline.html>
- 3) 高田 十志和, 山田 男, 日本ゴム協会誌, **75**, 98 (2002).
- 4) 松田 孝昭, 日本ゴム協会誌, **78**, 18 (2005).
- 5) A. Hirao and M. Hayashi, *Acta Polymer.*, **50**, 219 (1999).
- 6) 藤巻 達雄, 森田 浩一, 日本ゴム協会誌, **71**, 562 (1998).
- 7) 斉藤 章, 日本ゴム協会誌, **71**, 315 (1998).
- 8) 芥川 恵造, 小澤 洋一, 山田 浩, 濱田 達郎, 日本ゴム協会誌, **80**, 395 (2007).
- 9) 服部 岩和, 但 稔弘, 日本ゴム協会誌, **80**, 140 (2007).
- 10) M. Hayashi, *Macromolecular Symposia*, **215**, 29 (2004).
- 11) 林 真弓, 稲垣 勝成, 今井 昭夫, 日本ゴム協会誌, **78**, 91 (2005).
- 12) N. Yoshimura, M. Okuyama and K. Yamaguchi, *122<sup>nd</sup> Meeting ACS Chicago, Oct. 1982*.
- 13) H. Dohi, H. Kimura, M. Kotani, T. Kaneko, T. Kitaoka, T. Nishi and H. Jinnai, *Polym. J.*, **39**, 749 (2007).
- 14) K. Akutagawa, K. Yamaguchi, A. Yamamoto, H. Heguri, H. Jinnai and Y. Shinbori, *Rubber Chem. Tech.*, **81**, 182 (2008).
- 15) Y. Shinohara, H. Kishimoto, K. Inoue, Y. Suzuki, A. Takeuchi, K. Uesugi, N. Yagi, K. Muraoka, T. Mizoguchi and Y. Amemiya, *J. Appl. Cryst.*, **40**, s397 (2007).
- 16) K. Hagita, T. Arai, H. Kishimoto, N. Umesaki, H. Suno, Y. Shinohara and Y. Amemiya, *Rheo. Acta.*, **47**, 537 (2008).
- 17) Y. Amemiya, Y. Shinohara and H. Kishimoto, *Spring-8 Information*, **14**(2), 149 (2009).
- 18) H. Morita, M. Yamada, T. Yamaguchi and M. Doi, *Polym. J.*, **37**, 782, (2005).
- 19) S. Hayashi and Y. Komori, *Solid State NMR*, **36**, 167 (2009).
- 20) 竹中 幹人, 西辻 祥太郎, 網野 直也, 石川 泰弘, 山口 大輔, 小泉 智, 橋本 竹治, 日本ゴム協会誌, **81**, 334 (2008).
- 21) M. Takenaka, S. Nishitsuji, N. Amino, Y. Ishikawa, D. Yamaguchi and S. Koizumi, *Macromolecules*, **42**, 308 (2009).
- 22) V. Arrighia, I.J. McEwena, H. Qiana and M.B. Serrano Prieto, *Polymer*, **44**, 6259 (2003).

## PROFILE



林 真弓

Mayumi HAYASHI

住友化学株式会社  
石油化学品研究所  
主任研究員 博士 (工学)



稲垣 勝成

Katsunari INAGAKI

住友化学株式会社  
石油化学品研究所  
主席研究員



濱 久勝

Hisakatsu HAMA

住友化学株式会社  
石油化学品研究所  
主任研究員 博士 (理学)