

# タイヤ用ゴム材料の精密構造解析

課題番号 2020AM0020, 実施日 2020/6/2

住友ゴム工業株式会社 研究開発本部 分析センター 増井 友美

## 1. Introduction

タイヤゴム材料は 10 数種類以上の材料からなる複雑系であり、広い時間・空間スケールにわたり階層性を有している。これら材料の中でもシリカやカーボンブラックなどのフィラーは、ゴムの補強性能と関係する。特に重要なのはフィラー表面の吸着ポリマーであることが知られ、シリカとポリマーとを混ぜるだけでは補強性は低いが、シリカとポリマーとをそれぞれ結合させるカップリング剤を用いることにより補強性が向上することが知られている。我々は、これまでにカーボンブラック表面の吸着ポリマーの構造および運動性解析を小角中性子散乱および中性子スピネコー法を用いて実施してきた (Macromolecules 2021, 54, 23, 11032–11046)。この実験では、試料としてはカーボンブラック表面のポリマーのみを H 体で作製し、マトリックスポリマーを D 体ポリマーに置換することで、H 体のポリマーのみの情報を選択的に抽出することができる。現在、この手法をシリカ系へ応用することを考えており、試料調製方法について検討を重ねてきた。その結果、試料調製法に目途が立ってきたため、シリカ表面吸着ポリマーによる中性子小角散乱強度への寄与を評価することを目的とする。

## 2. Experiment

真球シリカとカップリング剤をトルエンに分散させ、ポリブタジエンゴム(PB)のトルエン溶液と混合した。混合後に超音波処理を行うことでゴム溶液中にシリカを分散させた。その後、エバポレーターを用いてトルエンを除去した。その後、カップリング剤とポリマーとの反応を進めるために真空下で 150°C に加熱をした。さらに試料を冷却後、シリカとポリブタジエンゴムの混合物である試料にトルエンを添加し、超音波処理によりシリカをトルエン中に分散させた。さらに、シリカに吸着していないフリーのブタジエンゴムを除去するために遠心分離にて上澄み除去を行った。その後、重水素化ポリブタジエンゴムを添加し乾燥させることで、シリカ表面に結合したポリマーのみが H 体でマトリックスが重水素化物であるポリマーであるサンプル A を得た。またリファレンスとして、重水素化ポリブタジエン中に真球シリカを分散させた試料を準備した。このサンプルをサンプル B とした。

サンプル A および B はアルミ箔で覆った上でサンプルホルダーにセットした。中性子小角散乱実験は、BL20 iMATERIA にてサンプルチェンジャーを用いて測定を行った。

## 3. Results

図 1 にサンプル B から得られた中性子小角散乱実験結果を示す。得られた散乱強度はグラッシーカーボンを用いて絶対強度化を行った。仕込みのシリカの充填量、用いたシリカが粒径 100 nm の比較的粒径分布の小さな真球シリカであること、重水素化ポリブタジエンをマトリックスとして用いていることを踏まえ、粒径分布のある球状粒子の散乱関数を求め、実験データのモデル解析を行った。シリカおよび重水素化ポリブタジエンの散乱長密度としてそれぞれ  $3.16 \times 10^{-6} \text{ cm}^2$ 、 $6.67 \times 10^{-6} \text{ cm}^2$ 、シリカの粒径および体積分率をフリ

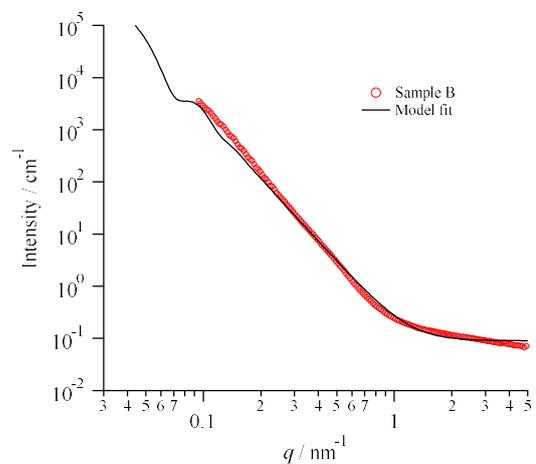


図 1. サンプル B から得られた中性子小角散乱実験結果とモデル散乱関数の計算結果 (実線)

一のパラメータとして解析を行った。結果、粒径としては約 120 nm、体積分率としては仕込みの体積分率の約 2 倍になることが分かった。このことから、シリカ表面のみに存在する H 体のポリマーの強度寄与については、仕込みの体積分率をリファレンスであるサンプル B と同じだと仮定して見積もることとし、引き続き検討・考察を進めている。