

# ゴムの不均質架橋構造に関する研究（課題番号 2006A-A29）

Studies on crosslinking structure of vulcanized rubber

網野直也<sup>1)</sup> 石川泰弘<sup>1)</sup> 佐藤正樹<sup>1)</sup> 竹中幹人<sup>2)</sup> 西辻祥太郎<sup>2)</sup> 清水博文<sup>2)</sup> 山口大輔<sup>3)</sup>

Naoya AMINO, Yasuhiro ISHIKAWA, Masaki SATO, Mikihiro TAKENAKA, Shotaro NISHITSUJI, Hirohumi SHIMIZU,  
Daisuke YAMAGUCHI

<sup>1)</sup>横浜ゴム株式会社 <sup>2)</sup>京都大学大学院 <sup>3)</sup>日本原子力研究開発機構

様々な混合比の重水素化ヘキサン／非重水素化ヘキサンに膨潤させたシリカ充填系ゴムの散乱関数を比較した結果、計算された混合比において溶媒とシリカ粒子のコントラストマッチングがとれて、膨潤された網目からの散乱関数を得ることに成功した。

**キーワード：**小角中性子散乱、コントラストマッチング、スチレン・ブタジエン共重合体ゴム、架橋、シリカ

## 1. 目的

ゴムの架橋構造は、不均質構造であると考えられているが、その構造の詳細や不均質度合いについては十分に解明されていない。この不均質構造を制御することにより、ゴム製品の高強度化が可能になると考えられ、製品性能の向上や製品寿命の向上が期待できる。本研究では、硫黄架橋ゴムの架橋構造を小角中性子散乱法によって解析し、不均質構造形成メカニズムの推定および不均質構造制御手法を検討し、ゴム製品の高性能化につなげることを目的とする。

## 2. 方法

充填剤により補強されたゴム材料の架橋構造の不均一性を明らかにするために、ゴム材料を溶媒に膨潤する事により、いわゆるゲル状態にすることによって、網目構造のゆらぎの相関を SANS-J の 2 次元小角中性子散乱法を用いて測定した。しかし、充填剤により補強されたゴム材料には、架橋構造に由来するゆらぎだけでなく充填剤の分布によるゆらぎも存在する。そこで、ゴムの膨潤に用いる溶媒を重水素化物とそうでないものとの混合溶媒を用いることにより、充填剤やゴム高分子にコントラストを合わせて、それぞれの構造に由来する散乱を分離し、ゴム材料全体の構造を明らかにする。SANS-J の試料－検出器間距離を 2m および 10m として測定し、波数領域で  $0.03\text{~}1\text{nm}^{-1}$  の範囲の散乱曲線を得た。

## 3. 研究成果

様々な混合比の重水素化ヘキサン／非重水素化ヘキサンに膨潤させたシリカ充填スチレン・ブタジエン共重合体ゴムの散乱関数を測定し比較した結果、構成元素の散乱長から理論的に計算された混合比において、シリカ粒子に由来する散乱のショルダーが消滅し溶媒とシリカ粒子のコントラストマッチングをとることができた。網目の散乱関数はマスフラクタル的な挙動をしめすことがわかった。この挙動は、今回測定した全波数領域において観測された。フラクタル次元は 1.6 で、ポリマー鎖から予想される値よりも小さいが、膨潤によって分子鎖が緊張状態にあるためと推察された。カーボンブラック充填系に関しては、どの混合比においてもカーボンブラック粒子に由来するショルダーが観測されコントラストマッチングがとれていなかったことが観測された。

## 4. 結論・考察

・今回の実験により以下のことが明らかとなった。

1. シリカ充填スチレン・ブタジエン共重合体ゴムにおいて、溶媒とシリカ粒子のコントラストマッチングがとれて、ゴム網目からの散乱関数を得る手法を確立した。
  2. 網目の散乱関数はマスフラクタル的な挙動をしめすことがわかった。
  3. カーボンブラック充填系に関しては、カーボンの散乱長が大きすぎるため、ヘキサンでは完全なコントラストマッチングを行うことが困難であることが分かった。
- ・また、以下の課題があり、今後の実験によって明らかにしたい。
1. ゴムの架橋構造の違いによるフラクタル的な挙動の違い、すなわち、ゴムの配合等を変化させた時の網目のゆらぎの変化について調べ、ゴム製品の性能と架橋構造の関係を調べる。
  2. ゴム伸長時の網目構造の変化について調べる。
  3. カーボンブラックのコントラストマッチングをとる手法を開発する。