

(12) 特許協力条約に基づいて公開された国際出願

(19) 世界知的所有権機関
国際事務局

(43) 国際公開日
2017年12月7日(07.12.2017)



(10) 国際公開番号

WO 2017/209263 A1

- (51) 国際特許分類:
C08L 7/00 (2006.01) *B60C 1/00* (2006.01) ST, SV, SY, TH, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, ZA, ZM, ZW.
- (21) 国際出願番号: PCT/JP2017/020519
- (22) 国際出願日: 2017年6月1日(01.06.2017)
- (25) 国際出願の言語: 日本語
- (26) 国際公開の言語: 日本語
- (30) 優先権データ:
特願 2016-110515 2016年6月1日(01.06.2016) JP
- (71) 出願人:株式会社ブリヂストン(BRIDGESTONE CORPORATION) [JP/JP]; 〒1048340 東京都中央区京橋三丁目1番1号 Tokyo (JP).
- (72) 発明者: ▲高 ▼野 宏輔 (TAKANO Kosuke); 〒1048340 東京都中央区京橋三丁目1番1号 株式会社ブリヂストン内 Tokyo (JP).
- (74) 代理人: 杉 村 憲 司 (SUGIMURA Kenji); 〒1000013 東京都千代田区霞が関三丁目2番1号 霞が関コモンゲート西館36階 Tokyo (JP).
- (81) 指定国(表示のない限り、全ての種類の国内保護が可能): AE, AG, AL, AM, AO, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BH, BN, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CL, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DJ, DK, DM, DO, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, GT, HN, HR, HU, ID, IL, IN, IR, IS, JP, KE, KG, KH, KN, KP, KR, KW, KZ, LA, LC, LK, LR, LS, LU, LY, MA, MD, ME, MG, MK, MN, MW, MX, MY, MZ, NA, NG, NI, NO, NZ, OM, PA, PE, PG, PH, PL, PT, QA, RO, RS, RU, RW, SA, SC, SD, SE, SG, SK, SL, SM,
- (84) 指定国(表示のない限り、全ての種類の広域保護が可能): ARIPO (BW, GH, GM, KE, LR, LS, MW, MZ, NA, RW, SD, SL, ST, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), ユーラシア (AM, AZ, BY, KG, KZ, RU, TJ, TM), ヨーロッパ (AL, AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HR, HU, IE, IS, IT, LT, LU, LV, MC, MK, MT, NL, NO, PL, PT, RO, RS, SE, SI, SK, SM, TR), OAPI (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, KM, ML, MR, NE, SN, TD, TG).

添付公開書類:

- 一 国際調査報告 (条約第21条(3))

(54) Title: RUBBER COMPOSITION AND TIRE

(54) 発明の名称: ゴム組成物、及びタイヤ

(57) Abstract: Provided is a rubber composition capable of improving tire fuel economy performance and wet performance and including a rubber component (A) including at least 50% by mass natural rubber, a compatible resin (B) having a difference in SP value from the rubber component (A) of no more than $1.5 \text{ (cal/cm}^3)^{1/2}$, and an incompatible resin (C) having a difference in SP value from the rubber component (A) of more than $1.5 \text{ (cal/cm}^3)^{1/2}$. The rubber composition is characterized by the total compatible resin (B) and incompatible resin (C) content being at least 10 parts by mass relative to 100 parts by mass of the rubber component (A).

(57) 要約: 本発明は、タイヤの燃費性能、及びウェット性能を向上させることが可能なゴム組成物として、天然ゴムを50質量%以上含むゴム成分(A)と、該ゴム成分(A)とのSP値の差が $1.5 \text{ (cal/cm}^3)^{1/2}$ 以下である相溶性樹脂(B)と、該ゴム成分(A)とのSP値の差が $1.5 \text{ (cal/cm}^3)^{1/2}$ を超える非相溶性樹脂(C)と、を含み、前記相溶性樹脂(B)と前記非相溶性樹脂(C)との合計配合量が、前記ゴム成分(A)100質量部に対して10質量部以上であることを特徴とする、ゴム組成物を提供する。



WO 2017/209263 A1

明 細 書

発明の名称： ゴム組成物、及びタイヤ

技術分野

[0001] 本発明は、ゴム組成物、及びタイヤに関するものである。

背景技術

[0002] 昨今の環境問題への関心の高まりに伴う世界的な二酸化炭素排出規制の動きに関連して、自動車の低燃費化に対する要求が強まりつつある。このような要求に対応するため、タイヤ性能についても、転がり抵抗の低減が求められている。ここで、タイヤの転がり抵抗に寄与するタイヤのトレッド用ゴム組成物の開発にあたっては、通常走行時のタイヤの温度が60℃程度になることに鑑み、60℃付近での損失正接 ($\tan \delta$) を指標とすることが一般に有効であり、具体的には、60℃付近での $\tan \delta$ が低いゴム組成物をトレッドゴムに用いることで、タイヤの発熱を抑制して転がり抵抗を低減し、結果として、タイヤの燃費性能を向上させることができる（特許文献1）。

また、自動車走行の安全性を高める見地から、湿潤路面でのグリップ性能（以下、「ウェット性能」と略称する。）を確保することも重要であり、タイヤの燃費性能を向上させると共にウェット性能を向上させることも求められている。これに対して、特許文献2には、タイヤトレッド用ゴム組成物の0℃における $\tan \delta$ を0.95以上にして、ウェット性能を向上させる技術が開示されている。

先行技術文献

特許文献

[0003] 特許文献1：特開2012-92179号公報

特許文献2：特開2014-9324号公報

発明の概要

発明が解決しようとする課題

[0004] しかしながら、タイヤのウェット性能を向上させるために、単純に0℃に

おける $\tan \delta$ が高いゴム組成物をトレッドゴムに用いると、タイヤの燃費性能と関連する 60°C での $\tan \delta$ も高くなるため、タイヤの燃費性能が悪化するという問題がある。

[0005] そこで、本発明は、上記従来技術の問題を解決し、タイヤの燃費性能、及びウェット性能を向上させることが可能なゴム組成物を提供することを課題とする。

また、本発明は、燃費性能、及びウェット性能に優れたタイヤを提供することを課題とする。

課題を解決するための手段

[0006] 上記課題を解決する本発明の要旨構成は、以下の通りである。

[0007] 本発明のゴム組成物は、天然ゴムを50質量%以上含むゴム成分(A)と、該ゴム成分(A)とのSP値の差が $1.5(\text{cal}/\text{cm}^3)^{1/2}$ 以下である相溶性樹脂(B)と、該ゴム成分(A)とのSP値の差が $1.5(\text{cal}/\text{cm}^3)^{1/2}$ を超える非相溶性樹脂(C)と、を含み、

前記相溶性樹脂(B)と前記非相溶性樹脂(C)との合計配合量が、前記ゴム成分(A)100質量部に対して10質量部以上であることを特徴とする。

かかる本発明のゴム組成物によれば、タイヤのトレッドゴムに適用することで、タイヤの燃費性能、及びウェット性能を向上させることができる。

[0008] ここで、本発明においては、上記の通り、ゴム成分(A)とのSP値の差が $1.5(\text{cal}/\text{cm}^3)^{1/2}$ 以下である樹脂を相溶性樹脂(B)とし、ゴム成分(A)とのSP値の差が $1.5(\text{cal}/\text{cm}^3)^{1/2}$ を超える樹脂を非相溶性樹脂(C)とし、ゴム成分(A)、相溶性樹脂(B)、及び非相溶性樹脂(C)のSP値(溶解パラメーター)は、Fedors法に従って、算出する。

また、ゴム成分(A)のSP値とは、主成分、即ち、最も含有量の多いゴム成分のSP値であり、また、最も含有量の多いゴム成分が複数ある場合は、それらの平均値である。ここで、平均値とは、各成分の配合比率×SP値

の合計値である。

[0009] 本発明のゴム組成物の好適例においては、前記相溶性樹脂（B）と前記非相溶性樹脂（C）との質量での配合比率（B/C）が、1/4～4/1である。この場合、該ゴム組成物をタイヤのトレッドゴムに適用することで、タイヤのウェット性能を更に向上させることができる。

[0010] 本発明のゴム組成物の他の好適例においては、前記相溶性樹脂（B）の軟化点が110℃以下である。この場合、該ゴム組成物をタイヤのトレッドゴムに適用することで、タイヤのウェット性能を更に向上させることができる。

ここで、本発明において、軟化点は、JIS K 2207に記載の軟化点試験方法〔6.4 軟化点試験方法（環球法）〕に従って測定した値である。

[0011] 本発明のゴム組成物の他の好適例においては、前記ゴム成分（A）が、更に変性ポリマーを含む。この場合、該ゴム組成物をタイヤのトレッドゴムに適用することで、タイヤの燃費性能、及びウェット性能を更に向上させることができる。

[0012] また、本発明のタイヤは、上記のゴム組成物をトレッドゴムに用いたことを特徴とする。本発明のタイヤは、前記ゴム組成物がトレッドゴムに用いられているため、燃費性能、及びウェット性能に優れる。

発明の効果

[0013] 本発明によれば、タイヤの燃費性能、及びウェット性能を向上させることが可能なゴム組成物を提供することができる。また、本発明によれば、燃費性能、及びウェット性能に優れたタイヤを提供することができる。

発明を実施するための形態

[0014] 以下に、本発明のゴム組成物、及びタイヤを、その実施形態に基づき、詳細に例示説明する。

[0015] <ゴム組成物>

本発明のゴム組成物は、天然ゴムを50質量%以上含むゴム成分（A）と

、該ゴム成分（A）とのSP値の差が $1.5 (\text{cal}/\text{cm}^3)^{1/2}$ 以下である相溶性樹脂（B）と、該ゴム成分（A）とのSP値の差が $1.5 (\text{cal}/\text{cm}^3)^{1/2}$ を超える非相溶性樹脂（C）と、を含み、前記相溶性樹脂（B）と前記非相溶性樹脂（C）との合計配合量が、前記ゴム成分（A）100質量部に対して10質量部以上であることを特徴とする。

[0016] 前記非相溶性樹脂（C）は、低歪領域での弾性率を上昇させる一方、高歪領域での弾性率を低下させ、また、前記相溶性樹脂（B）は、低歪領域及び高歪領域の双方での弾性率を低下させる。本発明のゴム組成物においては、相溶性樹脂（B）と非相溶性樹脂（C）との両方を配合することで、低歪領域での弾性率の変動を抑制しつつ、高歪領域での弾性率を大幅に低下させることができる。そのため、本発明のゴム組成物をタイヤのトレッドゴムに適用することで、走行時の歪が大きい路面との接地面近傍のトレッドゴムの変形体積を大きくしつつ、走行時の歪が小さい路面との接地面から遠い部分のトレッドゴムの剛性を確保できる。

なお、ゴム組成物の低歪領域での弾性率が上昇すると、該ゴム組成物を適用したタイヤの燃費性能が悪化するが、本発明のゴム組成物においては、相溶性樹脂（B）と非相溶性樹脂（C）との両方を配合して、樹脂の配合に起因する低歪領域での弾性率の変動を抑制することで、タイヤの燃費性能への樹脂による影響を抑制できる。

一方、本発明のゴム組成物においては、ゴム成分（A）中の天然ゴムの含有率を50質量%以上とすることで、 $\tan \delta$ （損失正接）が低下し、該ゴム組成物を適用したタイヤの燃費性能が向上する。

そして、湿潤路面での摩擦係数（ μ ）は、トレッドゴム全体の剛性と、トレッドゴムの変形量と、 $\tan \delta$ （損失正接）との積に比例するため、本発明のゴム組成物をトレッドゴムに適用したタイヤは、天然ゴムを50質量%以上含むゴム成分（A）の適用により $\tan \delta$ を低下させても、トレッドゴム全体の剛性を確保しつつ、トレッドゴムの変形量を増加させることができるため、湿潤路面での摩擦係数（ μ ）を十分に向上させることができ、湿潤

路面での摩擦係数 (μ) が大きくなることで、ウェット性能が向上する。そのため、本発明のゴム組成物をトレッドゴムに適用したタイヤは、 $\tan \delta$ が低いことで、燃費性能が向上し、且つ、湿潤路面での摩擦係数 (μ) が高いことで、ウェット性能が向上する。

[0017] また、前記相溶性樹脂 (B) を配合したゴム組成物は、低歪領域から高歪領域に至る弾性率が低く、タイヤのトレッドゴムに適用すると、タイヤのコーナーリング性能を悪化させるおそれがあるが、相溶性樹脂 (B) と非相溶性樹脂 (C) との両方を配合したゴム組成物は、低歪領域での弾性率の変動が抑制されるため、タイヤのコーナーリング性能の悪化を抑制できる。

また、前記相溶性樹脂 (B) を配合したゴム組成物は、密着性が高く、混練装置や押出装置等のゴム製品の製造工程で使用する装置へ過度に密着するが、相溶性樹脂 (B) と非相溶性樹脂 (C) との両方を配合したゴム組成物は、密着性が過度に高くはなく、ゴム製品の製造工程で使用する装置へ過度に密着することが無く、各種ゴム製品を成形する際の作業性の悪化を抑制できる。

また、前記相溶性樹脂 (B) を配合したゴム組成物は、耐オゾン性が悪いが、相溶性樹脂 (B) と非相溶性樹脂 (C) との両方を配合したゴム組成物は、耐オゾン性の悪化を抑制でき、該ゴム組成物を適用したゴム製品の耐候性の悪化を抑制できる。

[0018] 本発明のゴム組成物のゴム成分 (A) は、天然ゴムを50質量%以上、好ましくは60質量%以上、より好ましくは70質量%以上含む。なお、ゴム成分 (A) 中の天然ゴムの含有率の上限は特に限定されず、ゴム成分 (A) の全量が天然ゴムであってもよい。ゴム成分 (A) 中の天然ゴムの含有率が50質量%以上であれば、ゴム組成物の $\tan \delta$ が小さくなり、該ゴム組成物をタイヤのトレッドゴムに適用することで、タイヤの燃費性能を改善することができる。

[0019] 前記ゴム成分 (A) としては、天然ゴム (NR) の他、合成イソプレンゴム (IR)、ポリブタジエンゴム (BR)、スチレン-ブタジエン共重合体

ゴム（SBR）、スチレン-イソプレン共重合体ゴム（SIR）等の合成ジエン系ゴムを含んでもよく、また、他の合成ゴムを含んでもよい。これらゴム成分（A）は、1種単独で用いてもよいし、2種以上のブレンドとして用いてもよい。

[0020] 前記ゴム成分（A）は、更に変性ポリマーを含むことが好ましい。該変性ポリマーのゴム成分（A）中での含有率は、50質量%以下、好ましくは10～45質量%、より好ましくは20～40質量%である。ゴム成分（A）が変性ポリマーを含むことで、ゴム組成物中での各種配合剤の分散性が向上し、該ゴム組成物をタイヤのトレッドゴムに適用することで、タイヤの燃費性能、及びウェット性能を更に向上させることができる。

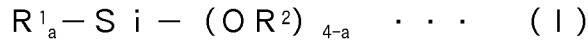
[0021] 前記変性ポリマーにおける変性官能基としては、例えば、含窒素官能基、含ケイ素官能基、含酸素官能基等が挙げられる。

前記変性ポリマーとしては、モノマーとして共役ジエン化合物、或いは、共役ジエン化合物と芳香族ビニル化合物を使用し、該共役ジエン化合物の重合体又は共重合体、或いは、共役ジエン化合物と芳香族ビニル化合物との共重合体の分子末端及び／又は主鎖を変性剤で変性して得たポリマーや、モノマーとして共役ジエン化合物、或いは、共役ジエン化合物と芳香族ビニル化合物を使用し、変性官能基を有する重合開始剤を用いて、これらのモノマーを重合又は共重合させて得たポリマーを使用することができる。

[0022] 前記変性ポリマーの合成に用いるモノマーに関し、共役ジエン化合物としては、1,3-ブタジエン、イソプレン、1,3-ペンタジエン、2,3-ジメチルブタジエン、2-フェニル-1,3-ブタジエン、1,3-ヘキサジエン等が挙げられ、また、芳香族ビニル化合物としては、スチレン、 α -メチルスチレン、1-ビニルナフタレン、3-ビニルトルエン、エチルビニルベンゼン、ジビニルベンゼン、4-シクロヘキシルスチレン、2,4,6-トリメチルスチレン等が挙げられる。

[0023] 前記変性剤としては、ヒドロカルビルオキシシラン化合物が好ましい。

前記ヒドロカルビルオキシシラン化合物としては、下記一般式（1）：

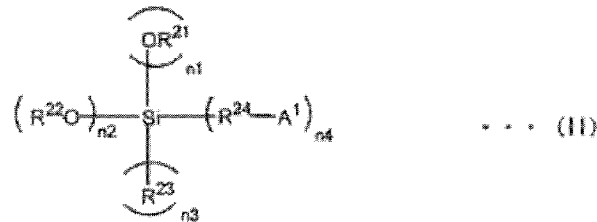


で表される化合物が好ましい。

一般式 (I) 中、 R^1 及び R^2 は、それぞれ独立して炭素数 1 ~ 20 の一価の脂肪族炭化水素基又は炭素数 6 ~ 18 の一価の芳香族炭化水素基を示し、 a は 0 ~ 2 の整数であり、 OR^2 が複数ある場合、各 OR^2 は互いに同一でも異なってもよく、また、分子中には活性プロトンは含まれない。

[0024] 前記ヒドロカルビルオキシシラン化合物としては、下記一般式 (II) :

[化1]



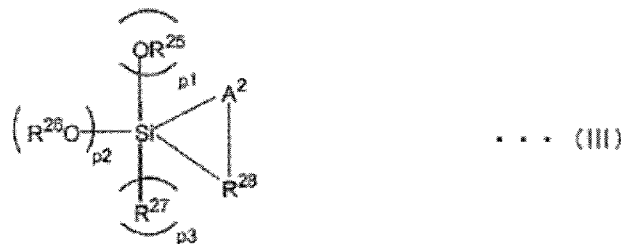
で表される化合物も好ましい。

一般式 (II) 中、 $n1 + n2 + n3 + n4$ は 4 であり (但し、 $n2$ は 1 ~ 4 の整数であり、 $n1$ 、 $n3$ 及び $n4$ は 0 ~ 3 の整数である)、 A^1 は、飽和環状 3 級アミン化合物残基、不飽和環状 3 級アミン化合物残基、ケチミン残基、ニトリル基、イソシアナート基、チオイソシアナート基、エポキシ基、チオエポキシ基、イソシアヌル酸トリヒドロカルビルエステル基、炭酸ジヒドロカルビルエステル基、ピリジン基、ケトン基、チオケトン基、アルデヒド基、チオアルデヒド基、アミド基、カルボン酸エステル基、チオカルボン酸エステル基、カルボン酸エステルの金属塩、チオカルボン酸エステルの金属塩、カルボン酸無水物残基、カルボン酸ハロゲン化合物残基、並びに加水分解性基を有する第一若しくは第二アミノ基又は加水分解性基を有するメルカプト基の中から選択される少なくとも 1 種の官能基であり、 $n4$ が 2 以上の場合には同一でも異なってもよく、 A^1 は、 Si と結合して環状構造を形成する二価の基であってもよく、 R^{21} は、炭素数 1 ~ 20 の一価の脂肪族若しくは脂環式炭化水素基又は炭素数 6 ~ 18 の一価の芳香族炭化水素基であり、 $n1$ が 2 以上の場合には同一でも異なってもよく、 R^{23} は、炭素数

1～20の一価の脂肪族若しくは脂環式炭化水素基、炭素数6～18の一価の芳香族炭化水素基又はハロゲン原子であり、 n_3 が2以上の場合には同一でも異なってもよく、 R^{22} は、炭素数1～20の一価の脂肪族若しくは脂環式炭化水素基又は炭素数6～18の一価の芳香族炭化水素基であり、いずれも窒素原子及び／又はケイ素原子を含有していてもよく、 n_2 が2以上の場合には、互いに同一若しくは異なってもよく、或いは、一緒になって環を形成してもよく、 R^{24} は、炭素数1～20の二価の脂肪族若しくは脂環式炭化水素基又は炭素数6～18の二価の芳香族炭化水素基であり、 n_4 が2以上の場合には同一でも異なってもよい。前記加水分解性基を有する第一若しくは第二アミノ基又は加水分解性基を有するメルカプト基における加水分解性基としては、トリメチルシリル基、tert-ブチルジメチルシリル基が好ましく、トリメチルシリル基が特に好ましい。

[0025] 上記一般式(11)で表される化合物としては、下記一般式(111)：

[化2]



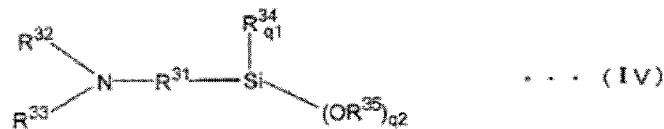
で表される化合物が好ましい。

一般式(111)中、 $p_1 + p_2 + p_3$ は2であり(但し、 p_2 は1～2の整数であり、 p_1 及び p_3 は0～1の整数である)、 A^2 は、 NR_a (R_a は、一価の炭化水素基、加水分解性基又は含窒素有機基である)、或いは、硫黄であり、 R^{25} は、炭素数1～20の一価の脂肪族若しくは脂環式炭化水素基又は炭素数6～18の一価の芳香族炭化水素基であり、 R^{27} は、炭素数1～20の一価の脂肪族若しくは脂環式炭化水素基、炭素数6～18の一価の芳香族炭化水素基又はハロゲン原子であり、 R^{26} は、炭素数1～20の一価の脂肪族若しくは脂環式炭化水素基、炭素数6～18の一価の芳香族炭化水素基又は含窒素有機基であり、いずれも窒素原子及び／又はケイ素原子を含有し

ていてもよく、 p が 2 の場合には、互いに同一でも異なってもよく、
或いは、一緒になって環を形成してもよく、 R^{28} は、炭素数 1 ~ 20 の二価の
脂肪族若しくは脂環式炭化水素基又は炭素数 6 ~ 18 の二価の芳香族炭化水
素基である。前記加水分解性基として、トリメチルシリル基、*tert*-ブ
チルジメチルシリル基が好ましく、トリメチルシリル基が特に好ましい。

[0026] 上記一般式 (I) で表される化合物としては、下記一般式 (IV) :

[化3]

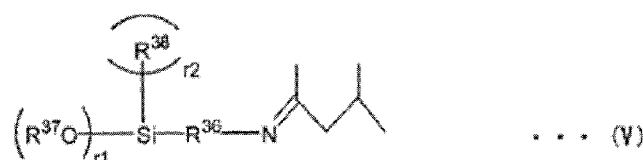


で表される化合物も好ましい。

一般式 (IV) 中、 $q_1 + q_2$ は 3 であり (但し、 q_1 は 0 ~ 2 の整数で
あり、 q_2 は 1 ~ 3 の整数である)、 R^{31} は炭素数 1 ~ 20 の二価の脂肪族若
しくは脂環式炭化水素基又は炭素数 6 ~ 18 の二価の芳香族炭化水素基であ
り、 R^{32} 及び R^{33} はそれぞれ独立して加水分解性基、炭素数 1 ~ 20 の一価の
脂肪族若しくは脂環式炭化水素基又は炭素数 6 ~ 18 の一価の芳香族炭化水
素基であり、 R^{34} は炭素数 1 ~ 20 の一価の脂肪族若しくは脂環式炭化水素基
又は炭素数 6 ~ 18 の一価の芳香族炭化水素基であり、 q_1 が 2 の場合には
同一でも異なってもよく、 R^{35} は炭素数 1 ~ 20 の一価の脂肪族若しくは
脂環式炭化水素基又は炭素数 6 ~ 18 の一価の芳香族炭化水素基であり、 q_2
が 2 以上の場合には同一でも異なってもよい。前記加水分解性基とし
ては、トリメチルシリル基、*tert*-ブチルジメチルシリル基が好ましく
、トリメチルシリル基が特に好ましい。

[0027] 上記一般式 (I) で表される化合物としては、下記一般式 (V) :

[化4]

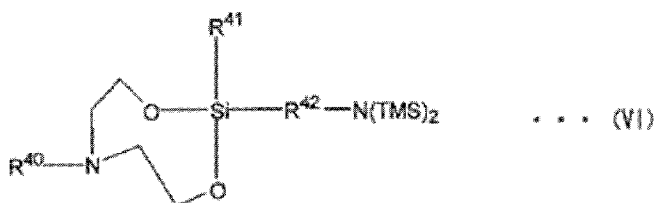


で表される化合物も好ましい。

一般式 (V) 中、 $r_1 + r_2$ は 3 であり (但し、 r_1 は 1~3 の整数であり、 r_2 は 0~2 の整数である)、 R^{36} は炭素数 1~20 の二価の脂肪族若しくは脂環式炭化水素基又は炭素数 6~18 の二価の芳香族炭化水素基であり、 R^{37} 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、メチルシリル (メチル) アミノメチル基、メチルシリル (メチル) アミノエチル基、メチルシリル (エチル) アミノメチル基、メチルシリル (エチル) アミノエチル基、ジメチルシリルアミノメチル基、ジメチルシリルアミノエチル基、炭素数 1~20 の一価の脂肪族若しくは脂環式炭化水素基又は炭素数 6~18 の一価の芳香族炭化水素基であり、 r_1 が 2 以上の場合には同一でも異なってもよく、 R^{38} は炭素数 1~20 のヒドロカルビルオキシ基、炭素数 1~20 の一価の脂肪族若しくは脂環式炭化水素基又は炭素数 6~18 の一価の芳香族炭化水素基であり、 r_2 が 2 の場合には同一でも異なってもよい。

[0028] 上記一般式 (I) で表される化合物としては、下記一般式 (VI) :

[化5]

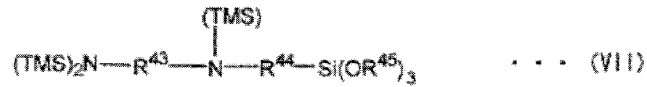


で表される化合物も好ましい。

一般式 (VI) 中、 R^{40} はトリメチルシリル基、炭素数 1~20 の一価の脂肪族若しくは脂環式炭化水素基又は炭素数 6~18 の一価の芳香族炭化水素基であり、 R^{41} は炭素数 1~20 のヒドロカルビルオキシ基、炭素数 1~20 の一価の脂肪族若しくは脂環式炭化水素基又は炭素数 6~18 の一価の芳香族炭化水素基であり、 R^{42} は炭素数 1~20 の二価の脂肪族若しくは脂環式炭化水素基又は炭素数 6~18 の二価の芳香族炭化水素基である。ここで、TMS は、トリメチルシリル基を示す (以下、同じ。)

[0029] 上記一般式 (I I) で表される化合物としては、下記一般式 (V I I) :

[化6]

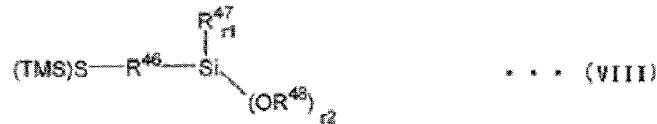


で表される化合物も好ましい。

一般式 (V I I) 中、 R^{43} 及び R^{44} はそれぞれ独立して炭素数1~20の二価の脂肪族若しくは脂環式炭化水素基又は炭素数6~18の二価の芳香族炭化水素基であり、 R^{45} は炭素数1~20の一価の脂肪族若しくは脂環式炭化水素基又は炭素数6~18の一価の芳香族炭化水素基であり、各 R^{45} は、同一でも異なってもよい。

[0030] 一般式 (I I) で表される化合物としては、下記一般式 (V I I I) :

[化7]

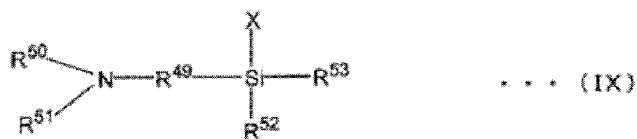


で表される化合物も好ましい。

一般式 (V I I I) 中、 $r1+r2$ は3であり (但し、 $r1$ は0~2の整数であり、 $r2$ は1~3の整数である)、 R^{46} は炭素数1~20の二価の脂肪族若しくは脂環式炭化水素基又は炭素数6~18の二価の芳香族炭化水素基であり、 R^{47} および R^{48} はそれぞれ独立して炭素数1~20の一価の脂肪族若しくは脂環式炭化水素基又は炭素数6~18の一価の芳香族炭化水素基である。複数の R^{47} 又は R^{48} は、同一でも異なってもよい。

[0031] 上記一般式 (I I) で表される化合物としては、下記一般式 (I X) :

[化8]

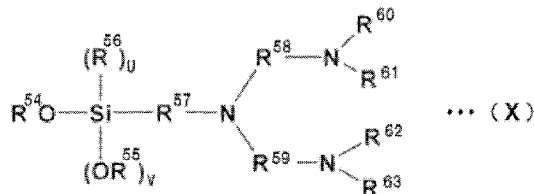


で表される化合物も好ましい。

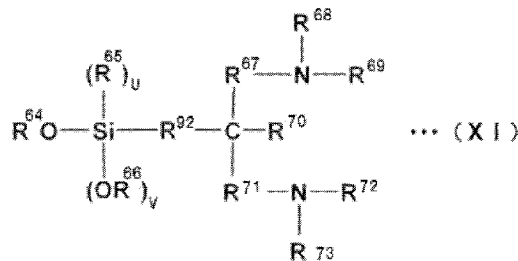
一般式 (IX) 中、X はハロゲン原子であり、R⁴⁹ は炭素数 1 ~ 20 の二価の脂肪族若しくは脂環式炭化水素基又は炭素数 6 ~ 18 の二価の芳香族炭化水素基であり、R⁵⁰ 及び R⁵¹ はそれぞれ独立して加水分解性基、炭素数 1 ~ 20 の一価の脂肪族若しくは脂環式炭化水素基又は炭素数 6 ~ 18 の一価の芳香族炭化水素基であるか、或いは、R⁵⁰ 及び R⁵¹ は結合して二価の有機基を形成しており、R⁵² 及び R⁵³ はそれぞれ独立してハロゲン原子、ヒドロカルビルオキシ基、炭素数 1 ~ 20 の一価の脂肪族若しくは脂環式炭化水素基又は炭素数 6 ~ 18 の一価の芳香族炭化水素基である。R⁵⁰ 及び R⁵¹ としては、加水分解性基であることが好ましく、加水分解性基として、トリメチルシリル基、tert-ブチルジメチルシリル基が好ましく、トリメチルシリル基が特に好ましい。

[0032] 上記一般式 (I) で表されるヒドロカルビルオキシシラン化合物としては、下記一般式 (X) ~ (XIII) :

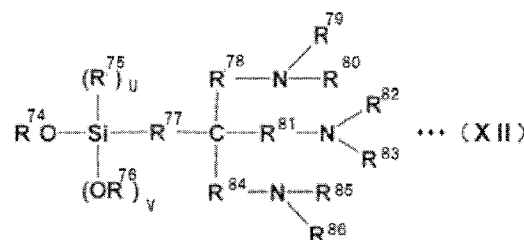
[化9]



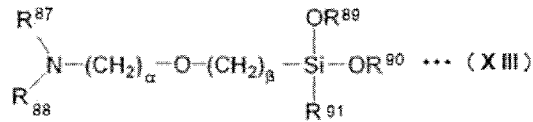
[化10]



[化11]



[化12]



で表される化合物も好ましい。

一般式 (X) ~ (X III) 中、記号 U、V はそれぞれ 0 ~ 2 且つ $U + V = 2$ を満たす整数である。一般式 (X) ~ (X III) 中の $\text{R}^{54 \sim 92}$ は同一でも異なってもよく、炭素数 1 ~ 20 の一価若しくは二価の脂肪族又は脂環式炭化水素基、或いは炭素数 6 ~ 18 の一価若しくは二価の芳香族炭化水素基である。一般式 (X III) 中の α 及び β は 0 ~ 5 の整数である。

[0033] 前記変性官能基を有する重合開始剤としては、リチウムアミド化合物が好ましい。該リチウムアミド化合物としては、例えば、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、リチウムジメチルアミド、リチウムジエチルアミド、リチウムジブチルアミド、リチウムジプロピルアミド、リチウムジヘプチルアミド、リチウムジヘキシルアミド、リチウムジオクタールアミド、リチウムジ-2-エチルヘキシルアミド、リチウムジデシルアミド、リチウム-N-メチルピペラジド、リチウムエチルプロピルアミド、リチウムエチルブチルアミド、リチウムエチルベンジルアミド、リチウムメチルフェネチルアミド等が挙げられる。

[0034] 本発明のゴム組成物は、前記ゴム成分 (A) との S P 値の差が $1.5 (\text{cal/cm}^3)^{1/2}$ 以下である相溶性樹脂 (B) と、前記ゴム成分 (A) との S P 値の差が $1.5 (\text{cal/cm}^3)^{1/2}$ を超える非相溶性樹脂 (C) と、を含む。ゴム組成物に相溶性樹脂 (B) と非相溶性樹脂 (C) の両方を配合することで、低歪領域での弾性率の変動を抑制しつつ、高歪領域での弾性率を大幅に低下させることができる。そのため、相溶性樹脂 (B) 及び非相溶性樹脂 (C) を配合したゴム組成物をタイヤのトレッドに適用することで、走行時の歪が大きい路面との接地面近傍のトレッドゴムの変形体積を大きくしつつ、走行時の歪が小さい路面との接地面から遠い部分のトレッドゴムの剛性

を確保でき、その結果として、湿潤路面での摩擦係数 (μ) が高くなり、タイヤのウェット性能を向上させることができる。また、本発明のゴム組成物においては、ゴム組成物に相溶性樹脂 (B) と非相溶性樹脂 (C) の両方を配合して、低歪領域での弾性率の変動を抑制することで、タイヤの燃費性能への樹脂による影響を抑制でき、更には、タイヤのコーナーリング性能の悪化を抑制できる。また、本発明のゴム組成物においては、相溶性樹脂 (B) と非相溶性樹脂 (C) との両方を配合することで、密着性の上昇を抑制でき、耐オゾン性の悪化を抑制できる。

[0035] 前記相溶性樹脂 (B) と前記非相溶性樹脂 (C) との質量での配合比率 (即ち、相溶性樹脂 (B) の配合量 / 非相溶性樹脂 (C) の配合量) は、 $1/4 \sim 4/1$ の範囲が好ましく、 $1/2 \sim 2/1$ の範囲が更に好ましい。相溶性樹脂 (B) と非相溶性樹脂 (C) との配合比率を上記範囲内とすることで、ゴム組成物をトレッドゴムに適用したタイヤのウェット性能を更に向上させることができる。

[0036] 前記相溶性樹脂 (B) は、軟化点が 110°C 以下であることが好ましく、 85°C 以下であることが更に好ましい。相溶性樹脂 (B) の軟化点が 110°C 以下であれば、ゴム組成物をトレッドゴムに適用したタイヤのウェット性能を更に向上させることができる。

また、前記非相溶性樹脂 (C) の軟化点は、 145°C 以下の範囲が好ましい。

そして、軟化点が 110°C 以下の相溶性樹脂 (B) と、軟化点が 145°C 以下の非相溶性樹脂 (C) とを組み合わせることで、ゴム組成物をトレッドゴムに適用したタイヤのウェット性能を更に向上させることができる。

[0037] 前記相溶性樹脂 (B) と前記非相溶性樹脂 (C) との合計配合量は、前記ゴム成分 (A) 100 質量部に対して 10 質量部以上であり、好ましくは 12 質量部以上であり、また、好ましくは 40 質量部以下、より好ましくは 30 質量部以下、より一層好ましくは 20 質量部以下である。相溶性樹脂 (B) と非相溶性樹脂 (C) との合計配合量がゴム成分 (A) 100 質量部に対

して10質量部未満では、ゴム組成物の高歪領域での弾性率を十分に低下させることができない。また、相溶性樹脂(B)と非相溶性樹脂(C)との合計配合量がゴム成分(A)100質量部に対して40質量部以下であれば、ゴム組成物をタイヤのトレッドゴムに適用した際に、タイヤのトレッドの剛性を十分に確保できる。

[0038] また、前記相溶性樹脂(B)の配合量は、前記ゴム成分(A)100質量部に対して5質量部以上が好ましく、また、30質量部以下が好ましく、20質量部以下がより好ましい。また、前記非相溶性樹脂(C)の配合量は、前記ゴム成分(A)100質量部に対して5質量部以上が好ましく、また、30質量部以下が好ましく、20質量部以下がより好ましい。前記相溶性樹脂(B)と前記非相溶性樹脂(C)の配合量が上記の範囲であれば、ゴム組成物の高歪領域での弾性率を十分に低下させることができる。

[0039] 前記相溶性樹脂(B)及び非相溶性樹脂(C)は、ゴム成分(A)のSP値に応じて、適宜選択されるが、ウェット性能の観点から、C₅系樹脂、C₉系樹脂、C₅-C₉系樹脂、ジシクロペンタジエン樹脂、ロジン樹脂、アルキルフェノール樹脂及びテルペンフェノール樹脂が好ましい。

[0040] 前記C₅系樹脂とは、C₅系合成石油樹脂を指し、該C₅系樹脂としては、例えば、石油化学工業のナフサの熱分解によって得られるC₅留分を、AlCl₃、BF₃等のフリーデルクラフツ型触媒を用いて重合して得られる脂肪族系石油樹脂が挙げられる。前記C₅留分には、通常1-ペンテン、2-ペンテン、2-メチル-1-ブテン、2-メチル-2-ブテン、3-メチル-1-ブテン等のオレフィン系炭化水素、2-メチル-1,3-ブタジエン、1,2-ペンタジエン、1,3-ペンタジエン、3-メチル-1,2-ブタジエン等のジオレフィン系炭化水素等が含まれる。なお、前記C₅系樹脂としては、市販品を利用することができ、例えば、エクソンモービルケミカル社製脂肪族系石油樹脂である「エスコレッツ(登録商標)1000シリーズ」、日本ゼオン株式会社製脂肪族系石油樹脂である「クイントン(登録商標)100シリーズ」の内「A100、B170、M100、R100」等が挙げられる。

ECR213」(エクソンモービルケミカル社製)等が挙げられる。

[0043] 前記ジシクロペンタジエン樹脂は、シクロペンタジエンを二量体化して得られるジシクロペンタジエンを主原料に製造された石油樹脂である。前記ジシクロペンタジエン樹脂としては、市販品を利用することができ、例えば、日本ゼオン株式会社製脂環式系石油樹脂である商品名「クイントン(登録商標)1000シリーズ」の内「1105、1325、1340」等が挙げられる。

[0044] 前記ロジン樹脂は、マツ科の植物の樹液である松脂(まつやに)等のバルサム類を集めてテレピン精油を蒸留した後に残る残留物で、ロジン酸(アビエチン酸、パラストリン酸、イソピマール酸等)を主成分とする天然樹脂、及びそれらを変性、水素添加等で加工した変性樹脂、水添樹脂である。例えば、天然樹脂ロジン、その重合ロジンや部分水添ロジン;グリセリンエステルロジン、その部分水添ロジンや完全水添ロジンや重合ロジン;ペンタエリスリトールエステルロジン、その部分水添ロジンや重合ロジン等が挙げられる。天然樹脂ロジンとして、生松ヤニやトール油に含まれるガムロジン、トール油ロジン、ウッドロジン等がある。前記ロジン樹脂としては、市販品を利用することができ、例えば、商品名「ネオトール105」(ハリマ化成株式会社製)、商品名「SNタック754」(サンノプロ株式会社製)、商品名「ライムレジンNo.1」、「ペンセルA」及び「ペンセルAD」(荒川化学工業株式会社製)、商品名「ポリペール」及び「ペンタリンC」(イーストマンケミカル株式会社製)、商品名「ハイロジン(登録商標)S」(大社松精油株式会社製)等が挙げられる。

[0045] 前記アルキルフェノール樹脂は、例えば、アルキルフェノールとホルムアルデヒドとの触媒下における縮合反応によって得られる。該アルキルフェノール樹脂としては、市販品を利用することができ、例えば、商品名「ヒタノール1502P」(日立化成株式会社製)、商品名「タッキロール201」(田岡化学工業株式会社製)、商品名「タッキロール250-1」(臭素化アルキルフェノールホルムアルデヒド樹脂、田岡化学工業株式会社製)、商

品名「タッキロール250-111」（臭素化アルキルフェノールホルムアルデヒド樹脂、田岡化学工業株式会社製）、商品名「R7521P」、「SP1068」、「R7510PJ」、「R7572P」及び「R7578P」（S I GROUP INC. 製）等が挙げられる。

[0046] 前記テルペンフェノール樹脂は、例えば、テルペン類と種々のフェノール類とを、フリーデルクラフツ型触媒を用いて反応させたり、又はさらにホルマリンで縮合する方法で得ることができる。原料のテルペン類としては特に制限はなく、 α -ピネンやリモネン等のモノテルペン炭化水素が好ましく、 α -ピネンを含むものがより好ましく、特に α -ピネンであることが好ましい。該テルペンフェノール樹脂としては、市販品を利用することができ、例えば、商品名「タマノル803L」、「タマノル901」（荒川化学工業株式会社製）、商品名「YSポリスター（登録商標）U」シリーズ、「YSポリスター（登録商標）T」シリーズ、「YSポリスター（登録商標）S」シリーズ、「YSポリスター（登録商標）G」シリーズ、「YSポリスター（登録商標）N」シリーズ、「YSポリスター（登録商標）K」シリーズ、「YSポリスター（登録商標）TH」シリーズ（ヤスハラケミカル株式会社製）等が挙げられる。

[0047] 本発明のゴム組成物は、充填剤を含むことが好ましい。また、本発明のゴム組成物は、該充填剤として、シリカを含むことが好ましく、充填剤中のシリカの割合は、好ましくは70質量%以上、より好ましくは80質量%以上、より一層好ましくは90質量%以上であり、充填剤の全量がシリカであってもよい。充填剤中のシリカの割合が70質量%以上であれば、ゴム組成物の $\tan \delta$ が更に低下し、該ゴム組成物を適用したタイヤの燃費性能が更に向上する。

[0048] 前記シリカとしては、特に制限はなく、例えば、湿式シリカ（含水ケイ酸）、乾式シリカ（無水ケイ酸）、ケイ酸カルシウム、ケイ酸アルミニウム等が挙げられ、これらの中でも、湿式シリカが好ましい。これらシリカは、1種単独で使用してもよいし、2種以上を併用してもよい。

- [0049] 本発明のゴム組成物において、前記シリカの配合量は、前記ゴム成分（A）100質量部に対して40～70質量部の範囲が好ましく、45～60質量部の範囲が更に好ましい。シリカの配合量がゴム成分（A）100質量部に対して40質量部以上であれば、ゴム組成物の $\tan \delta$ が更に低下して、該ゴム組成物を適用したタイヤの燃費性能が更に向上し、また、70質量部以下であれば、ゴム組成物の柔軟性が高く、該ゴム組成物をタイヤのトレッドゴムに適用することで、トレッドゴムの変形体積が大きくなって、タイヤのウェット性能を更に向上させることができる。
- [0050] 本発明のゴム組成物においては、充填剤中のシリカの窒素吸着比表面積は、特に制限なく、窒素吸着比表面積が $150 \text{ m}^2/\text{g}$ を超える一般的なシリカを用いても良いし、比較的粒径が大きいとされる、平均一次粒子径が 21 nm 以上で且つ窒素吸着比表面積が $150 \text{ m}^2/\text{g}$ 以下であるシリカ（以下、「大粒径シリカ」と称することがある）を用いても良い。
- [0051] 本発明のゴム組成物においては、前記充填剤として、更に、カーボンブラックを含むことが好ましく、また、該カーボンブラックの配合量は、前記ゴム成分（A）100質量部に対して1～10質量部の範囲が好ましく、3～8質量部の範囲が更に好ましい。カーボンブラックを1質量部以上配合することで、ゴム組成物の剛性が向上し、また、カーボンブラックの配合量が10質量部以下であれば、 $\tan \delta$ の上昇を抑制できるため、該ゴム組成物をタイヤのトレッドゴムに適用することで、タイヤの燃費性能とウェット性能を高いレベルで両立できる。
- [0052] 前記カーボンブラックとしては、特に限定されるものではなく、例えば、GPF、FEF、HAF、ISAF、SAFグレードのカーボンブラックが挙げられる。これらの中でも、タイヤのウェット性能を向上させる観点から、ISAF、SAFグレードのカーボンブラックが好ましい。これらカーボンブラックは、1種単独で使用してもよいし、2種以上を併用してもよい。
- [0053] また、前記充填剤は、上述したシリカ、カーボンブラックの他、水酸化アルミニウム、アルミナ、クレー、炭酸カルシウム等を含んでもよい。

[0054] 本発明のゴム組成物において、前記充填剤の配合量は、前記ゴム成分（A）100質量部に対して、好ましくは30質量部以上、より好ましくは40質量部以上であり、また、好ましくは100質量部以下、より好ましくは80質量部以下である。ゴム組成物中の充填剤の配合量が前記範囲内であれば、該ゴム組成物をタイヤのトレッドゴムに適用することで、タイヤの燃費性能とウェット性能を更に向上させることができる。

[0055] 本発明のゴム組成物は、前記シリカの配合効果を向上させるために、更に、シランカップリング剤を含有することが好ましい。該シランカップリング剤としては、特に限定されるものではなく、例えば、ビス（3-トリエトキシシリルプロピル）テトラスルフィド、ビス（3-トリエトキシシリルプロピル）トリスルフィド、ビス（3-トリエトキシシリルプロピル）ジスルフィド、ビス（2-トリエトキシシリルエチル）テトラスルフィド、ビス（3-トリメトキシシリルプロピル）テトラスルフィド、ビス（2-トリメトキシシリルエチル）テトラスルフィド、3-メルカプトプロピルトリメトキシシラン、3-メルカプトプロピルトリエトキシシラン、2-メルカプトエ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-トリメトキシシリルプロピル-N，N-ジメチルチオカルバモイルテトラスルフィド、3-トリエトキシシリルプロピル-N，N-ジメチルチオカルバモイルテトラスルフィド、2-トリエトキシシリルエチル-N，N-ジメチルチオカルバモイルテトラスルフィド、3-トリメトキシシリルプロピルベンゾチアゾリルテトラスルフィド、3-トリエトキシシリルプロピルベンゾチアゾリルテトラスルフィド、3-トリエトキシシリルプロピルメタクリレートモノスルフィド、3-トリメトキシシリルプロピルメタクリレートモノスルフィド、ビス（3-ジエトキシメチルシリルプロピル）テトラスルフィド、3-メルカプトプロピルジメトキシメチルシラン、ジメトキシメチルシリルプロピル-N，N-ジメチルチオカルバモイルテトラスルフィド、ジメトキシメチルシリルプロピルベンゾチアゾリルテトラスルフィド等が挙げられる。これらシランカップリング剤は、1種単独で用いてもよいし、2種以上

を組み合わせてもよい。

また、前記シランカップリング剤の配合量は、前記シリカ100質量部に対して2～20質量部の範囲が好ましく、5～15質量部の範囲が更に好ましい。シランカップリング剤の配合量がシリカ100質量部に対して2質量部以上であれば、シリカの配合効果が十分に向上し、また、シランカップリング剤の配合量がシリカ100質量部に対して20質量部以下であれば、ゴム成分(A)のゲル化の可能性が低い。

[0056] 本発明のゴム組成物は、加工性、作業性の観点から、更に、軟化剤を含んでもよい。該軟化剤の配合量は、前記ゴム成分(A)100質量部に対して1～5質量部の範囲が好ましく、1.5～3質量部の範囲が更に好ましい。軟化剤を1質量部以上配合することで、ゴム組成物の混練が容易となり、また、軟化剤を5質量部以下配合することで、ゴム組成物の剛性の低下を抑制できる。

ここで、前記軟化剤としては、鉱物由来のミネラルオイル、石油由来のアロマチックオイル、パラフィンオイル、ナフテンオイル、天然物由来のパームオイル等が挙げられるが、これらの中でも、タイヤのウェット性能の観点から、鉱物由来の軟化剤及び石油由来の軟化剤が好ましい。

[0057] 本発明のゴム組成物は、更に、脂肪酸金属塩を含んでもよい。該脂肪酸金属塩に用いられる金属としては、Zn、K、Ca、Na、Mg、Co、Ni、Ba、Fe、Al、Cu、Mn等が挙げられ、Znが好ましい。一方、前記脂肪酸金属塩に用いられる脂肪酸としては、炭素数4～30の飽和又は不飽和の直鎖、分岐もしくは環状構造を有する脂肪酸、あるいはそれらの混合物が挙げられ、これらの中でも、炭素数10～22の飽和又は不飽和の直鎖脂肪酸が好ましい。炭素数10～22の飽和直鎖脂肪酸としては、ラウリン酸、ミリスチン酸、パルミチン酸、ステアリン酸等が挙げられ、また、炭素数10～22の不飽和直鎖脂肪酸としては、オレイン酸、リノール酸、リノレン酸、アラキドン酸等が挙げられる。前記脂肪酸金属塩は、1種単独で用いてもよいし、2種以上を組み合わせてもよい。前記脂肪酸金属塩の

配合量は、前記ゴム成分（A）100質量部に対して0.1～10質量部の範囲が好ましく、0.5～5質量部の範囲が更に好ましい。

[0058] 本発明のゴム組成物には、前記ゴム成分（A）、相溶性樹脂（B）、非相溶性樹脂（C）、充填剤、シランカップリング剤、軟化剤、脂肪酸金属塩の他、ゴム工業界で通常使用される配合剤、例えば、ステアリン酸、老化防止剤、酸化亜鉛（亜鉛華）、加硫促進剤、加硫剤等を、本発明の目的を害しない範囲内で適宜選択して配合してもよい。これら配合剤としては、市販品を好適に使用することができる。ただし、本発明のゴム組成物の動歪1%、0℃における貯蔵弾性率を低減する観点から、ノボラック型及びレゾール型フェノール樹脂、レゾルシン樹脂等の熱硬化性樹脂を配合しないことが好ましい。

[0059] 本発明のゴム組成物は、0℃における $\tan \delta$ が0.5以下であり、30℃における $\tan \delta$ と60℃における $\tan \delta$ との差が0.070以下であり、動歪1%、0℃における貯蔵弾性率が20MPa以下であることが好ましい。

ゴム組成物の0℃における $\tan \delta$ が0.5以下の場合、該ゴム組成物を適用したタイヤの低温での燃費性能を向上させることができる。なお、0℃における $\tan \delta$ は、タイヤの低温での燃費性能の観点から、より好ましくは0.45以下、より一層好ましくは0.4以下である。また、0℃における $\tan \delta$ の下限は特に限定されるものではないが、通常、0℃における $\tan \delta$ は、0.15以上である。

また、ゴム組成物の30℃における $\tan \delta$ と60℃における $\tan \delta$ との差が0.070以下の場合、 $\tan \delta$ の温度依存性が小さくなり、広い温度領域に渡って、該ゴム組成物を適用したタイヤの燃費性能を改善することが可能となる。なお、30℃における $\tan \delta$ と60℃における $\tan \delta$ との差は、タイヤの燃費性能の温度依存性を低減する観点から、より好ましくは0.060以下、より一層好ましくは0.055以下、特に好ましくは0.050以下である。また、30℃における $\tan \delta$ と60℃における $\tan \delta$

$n \delta$ との差の下限は特に限定されるものではなく、該差は0でもよい。

また、ゴム組成物の動歪1%、0℃における貯蔵弾性率 (E') が20 MPa以下であれば、低温でのゴム組成物の柔軟性が高く、該ゴム組成物をタイヤのトレッドゴムに適用することで、トレッドゴムの接地性能が良くなり、タイヤのウェット性能を更に向上させることができる。なお、動歪1%、0℃における貯蔵弾性率 (E') は、ウェット性能の観点から、より好ましくは18 MPa以下、より一層好ましくは16 MPa以下、また、好ましくは3 MPa以上、より好ましくは5 MPa以上である。

[0060] また、本発明のゴム組成物は、30℃における $\tan \delta$ が0.4以下であることが好ましく、より好ましくは0.35以下であり、また、通常は0.1以上である。更に、本発明のゴム組成物は、60℃における $\tan \delta$ が0.35以下であることが好ましく、より好ましくは0.3以下であり、また、通常は0.05以上である。この場合、広い温度範囲に渡って、タイヤの燃費性能を改善できる。

[0061] また、本発明のゴム組成物は、ウェット性能の向上及び燃費性能の温度依存性を低減する観点から、0℃における $\tan \delta$ と30℃における $\tan \delta$ との差が0.30以下であることが好ましく、0.14~0.30であることが更に好ましく、より一層好ましくは0.15~0.25、特に好ましくは0.16~0.20である。

[0062] また、本発明のゴム組成物は、燃費性能の温度依存性を低減する観点から、0℃における $\tan \delta$ と60℃における $\tan \delta$ との差が0.35以下であることが好ましく、より好ましくは0.24以下、より一層好ましくは0.23以下であり、該差は0でもよい。

[0063] 本発明のゴム組成物は、ウェット性能の観点から、引張強さ (T_b) が20 MPa以上であることが好ましく、より好ましくは23 MPa以上である。引張強さが20 MPa以上のゴム組成物をトレッドゴムに用いると、トレッドゴム全体としての剛性が向上し、ウェット性能を更に向上させることができる。

[0064] 上述した、0℃における $\tan \delta$ が0.5以下であり、30℃における $\tan \delta$ と60℃における $\tan \delta$ との差が0.070以下である本発明の好適態様のゴム組成物は、加硫剤及び加硫促進剤を含む加硫系配合剤を除いて、前記ゴム成分(A)と、前記相溶性樹脂(B)と、前記非相溶性樹脂(C)とを150～165℃で混練する工程を経て製造されることが好ましい。

前記加硫系配合剤を除いて、150～165℃で混練することで、早期加硫(スコーチ)を避けつつ、加硫系配合剤以外の配合剤をゴム成分(A)に均一に分散させることができ、各配合剤の配合効果が十分に発揮されて、ゴム組成物の0℃における $\tan \delta$ を低下させつつ、ゴム組成物の30℃における $\tan \delta$ と60℃における $\tan \delta$ との差を小さくすることができる。

なお、ゴム組成物の $\tan \delta$ 、各温度での $\tan \delta$ の差、貯蔵弾性率(E')、引張強さ(T_b)は、上述の混練温度の他、ゴム成分(A)の種類やブレンド比、相溶性樹脂(B)及び非相溶性樹脂(C)の種類や配合量、充填剤中のシリカの割合やシリカの種類等、更には他の配合剤の種類及び量を調整することでも、変化させることができる。

[0065] また、前記ゴム組成物は、150～165℃で混練した後、更に150℃未満の別の温度で加硫系配合剤を加えて混練されることが好ましい。ここで、該ゴム組成物は、加硫系配合剤以外の配合剤をゴム成分(A)に十分均一に分散させた後、加硫剤及び加硫促進剤を含む加硫系配合剤を配合して、早期加硫(スコーチ)を防止できる温度、例えば、90～120℃で混練されることが好ましい。

なお、ゴム組成物の製造において、各温度での混練は、混練時間に制限はなく、混練装置の大きさ、原料の体積、原料の種類や状態等を勘案して、適宜設定することができる。

[0066] 前記加硫剤としては、硫黄等が挙げられる。該加硫剤の配合量は、ゴム成分(A)100質量部に対し、硫黄分として0.1～10質量部の範囲が好ましく、1～4質量部の範囲が更に好ましい。加硫剤の配合量が硫黄分として0.1質量部以上であれば、加硫ゴムの破壊強度、耐摩耗性等を確保でき

、また、10質量部以下であれば、ゴム弾性を十分に確保できる。特に、加硫剤の配合量を硫黄分として4質量部以下とすることで、タイヤのウェット性能を更に向上させることができる。

[0067] また、前記加硫促進剤としては、特に限定されるものではなく、例えば、2-メルカプトベンゾチアゾール (M)、ジベンゾチアジルスルフィド (DM)、N-シクロヘキシル-2-ベンゾチアジルスルフェンアミド (CZ)、N-tert-ブチル-2-ベンゾチアゾリルスルフェンアミド (NS) 等のチアゾール系加硫促進剤、1,3-ジフェニルグアニジン (DPG) 等のグアニジン系加硫促進剤等が挙げられる。なお、本発明のゴム組成物は、3種の加硫促進剤を含むことが好ましい。前記加硫促進剤の配合量は、前記ゴム成分 (A) 100質量部に対して0.1~5質量部の範囲が好ましく、0.2~3質量部の範囲が更に好ましい。

[0068] なお、本発明のゴム組成物は、例えば、バンバリーミキサーやロール等を用いて、上述のように、ゴム成分 (A) に、相溶性樹脂 (B) 及び非相溶性樹脂 (C) と、必要に応じて適宜選択した各種配合剤とを配合して混練した後、熱入れ、押出等することにより製造することができる。

[0069] 本発明のゴム組成物は、タイヤを始めとする種々のゴム製品に利用できる。特に、本発明のゴム組成物は、タイヤのトレッドゴムとして好適である。

[0070] <タイヤ>

本発明のタイヤは、上述したゴム組成物をトレッドゴムに用いたことを特徴とする。本発明のタイヤは、前記ゴム組成物がトレッドゴムに用いられているため、燃費性能、及びウェット性能に優れる。また、本発明のタイヤは、各種車両向けのタイヤとして利用できるが、乗用車用タイヤとして好ましい。

[0071] 本発明のタイヤは、適用するタイヤの種類に応じ、未加硫のゴム組成物を用いて成形後に加硫して得てもよく、又は予備加硫工程等を経た半加硫ゴムを用いて成形後、さらに本加硫して得てもよい。なお、本発明のタイヤは、

好ましくは空気入りタイヤであり、空気入りタイヤに充填する気体としては、通常の或いは酸素分圧を調整した空気その他、窒素、アルゴン、ヘリウム等の不活性ガスを用いることができる。

実施例

[0072] 以下に、実施例を挙げて本発明を更に詳しく説明するが、本発明は下記の実施例に何ら限定されるものではない。

[0073] <ゴム組成物の調製及び評価>

表1に示す配合処方に従い、通常のパンバリーミキサーを用いて、ゴム組成物を製造した。なお、各ゴム組成物には、表1に示す配合剤以外に、石油系オイル〔株式会社ジャパンエナジー製、商品名「プロセスX-140」〕3質量部、老化防止剤〔N-(1,3-ジメチルブチル)-N'-フェニル-p-フェニレンジアミン、大内新興化学工業株式会社製、商品名「ノクラック6C」〕1質量部、ステアリン酸1質量部、亜鉛華2.5質量部、加硫促進剤A〔1,3-ジフェニルグアニジン、住友化学株式会社製、商品名「ソクシノール(登録商標)D-G」〕0.8質量部、加硫促進剤B〔ジベンゾチアジルスルフィド、大内新興化学工業株式会社製、商品名「ノクセラ(登録商標)DM-P」〕1.1質量部、加硫促進剤C〔N-シクロヘキシル-2-ベンゾチアジルスルフェンアミド、大内新興化学工業株式会社製、商品名「ノクセラ(登録商標)CZ-G」〕1質量部、硫黄1.9質量部を配合した。

得られたゴム組成物に対して、下記の方法で損失正接($\tan \delta$)及び貯蔵弾性率(E')、並びに、引張強さ(T_b)を測定し、更に、ウェット性能、燃費性能、コーナーリング性能、密着性、耐オゾン性を評価した。結果を表1に示す。

[0074] (1) 損失正接($\tan \delta$)及び貯蔵弾性率(E')

ゴム組成物を145℃で33分間加硫して得られた加硫ゴムに対して、株式会社上島製作所製スペクトロメーターを用いて、初期荷重160mg、動歪1%、周波数52Hzの条件下で、0℃、30℃及び60℃における $\tan \delta$

$n \delta$ （損失正接）、並びに、 0°C における貯蔵弾性率（ E' ）を測定した。

[0075] (2) 引張強さ（ T_b ）

ゴム組成物を 145°C で33分間加硫して得られた加硫ゴムに対して、JIS K6251-1993に準拠して、引張強さ（ T_b ）を測定した。

[0076] (3) ウェット性能

上記のようにして得られたゴム組成物をトレッドゴムに用いて、サイズ195/65R15の乗用車用空気入りラジアルタイヤを作製した。作製した供試タイヤを試験車に装着し、湿潤路面での実車試験にて、グリップ性能をドライバーのフィーリング評点で表し、比較例1のタイヤのフィーリング評点を100として指数表示した。指数値が大きい程、ウェット性能に優れることを示す。

[0077] (4) 燃費性能

上記のようにして測定した各加硫ゴムの 60°C における $\tan \delta$ の逆数を計算し、比較例1の $\tan \delta$ の逆数を100として、それぞれ指数表示した。指数値が大きい程、 60°C における $\tan \delta$ が小さく、燃費性能が良好であることを示す。

[0078] (5) コーナリング性能

上記のようにして得られたゴム組成物をトレッドゴムに用いて、サイズ195/65R15の乗用車用空気入りラジアルタイヤを作製した。作製した供試タイヤを試験車に装着し、実車試験にて、コーナリング性能をドライバーのフィーリング評点で表し、比較例1のタイヤのフィーリング評点を100として指数表示した。指数値が大きい程、コーナリング性能に優れることを示す。

[0079] (6) 密着性

シーティングした加硫前の未加硫ゴムシートに対して、押し付けた金属との密着力を測定し、比較例1の密着力の逆数を100として、それぞれ指数表示した。指数値が大きい程、密着力が小さく、密着性が良好であることを示す。

[0080] (7) 耐オゾン性

J I S K 6 2 5 9 「動的オゾン劣化試験」に準じて評価を実施した。具体的には、145℃で33分間加硫して得られた加硫ゴムからなる試験片を準備し、オゾン濃度：50pphm、温度：40℃、引張り歪み：20%の条件で、試験片表面にオゾンクラックが発生する時間を測定し、比較例1のオゾンクラック発生時間を100として、それぞれ指数表示した。指数値が大きい程、オゾンクラック発生時間が長く、耐オゾン性が良好であることを示す。

[0081]

[表1]

		比較例 1	比較例 2	比較例 3	比較例 4	実施例 1	実施例 2	実施例 3	実施例 4	実施例 5	比較例 5	実施例 6	実施例 7	比較例 6	実施例 8	実施例 9	
配合	ゴム成分	天然ゴム *1	70	70	70	70	70	70	70	70	70	50	90	70	70	60	
		変性スチレン-ブタジエン共重合体ゴム *2	30	30	30	30	30	30	30	30	60	60	50	10	30	30	40
		スチレン-ブタジエン共重合体ゴム *3	-	-	-	-	-	-	-	-	30	-	-	-	-	-	-
	質量部	充填剤	5	5	5	5	5	5	5	5	5	5	5	5	5	5	5
		シリカ *5	60	60	60	60	60	60	60	60	60	60	60	60	60	60	60
		樹脂A *6	-	15	-	-	10	10	5	5	10	10	10	10	4	15	10
		樹脂B *7	-	-	15	-	-	-	-	5	-	-	-	-	-	-	-
		樹脂C *8	-	-	-	15	5	-	10	5	5	5	5	5	4	15	5
		樹脂D *9	15	-	-	-	-	5	-	-	-	-	-	-	-	-	-
		樹脂の総量	15	15	15	15	15	15	15	15	15	15	15	15	8	30	15
物性	0°Cでのtanδ	0.35	0.35	0.35	0.34	0.38	0.37	0.39	0.37	0.47	0.34	0.35	0.41	0.3	0.48	0.37	
	30°Cでのtanδ	0.17	0.2	0.18	0.18	0.2	0.22	0.18	0.2	0.4	0.19	0.2	0.3	0.14	0.28	0.2	
	60°Cでのtanδ	0.12	0.16	0.14	0.09	0.11	0.1	0.09	0.11	0.25	0.08	0.08	0.18	0.08	0.16	0.09	
	30°Cでのtanδ - 60°Cでのtanδ	0.05	0.04	0.04	0.09	0.09	0.12	0.09	0.09	0.15	0.11	0.12	0.12	0.06	0.12	0.11	
	0°Cでのtanδ - 30°Cでのtanδ	0.18	0.15	0.17	0.16	0.18	0.15	0.21	0.17	0.07	0.15	0.15	0.11	0.16	0.2	0.17	
	0°Cでのtanδ - 60°Cでのtanδ	0.23	0.19	0.21	0.25	0.27	0.27	0.3	0.26	0.22	0.26	0.22	0.23	0.22	0.32	0.28	
	0°CでのE'	13.4	17.2	13.0	13.5	15.0	14.8	14.5	14.2	35	14	14.3	16	11.8	35.2	14.5	
性能	Tb	20.0	23.0	19.0	19.5	22.5	22.2	22.5	21.5	22.0	22.5	22.6	22.8	23.0	22.2	22.4	
	ウェット性能	100	100	100	100	106	105	107	105	108	100	100	108	95	111	100	
	燃費性能	100	95	97	105	103	104	106	102	85	102	101	92	102	100	99	
	コーナリング性能	100	103	102	101	103	106	101	103	110	97	98	107	104	95	99	
	密着性	100	105	98	103	104	105	104	104	104	104	104	104	101	98	104	
	耐オゾン性	100	105	98	100	104	105	104	104	104	104	104	104	101	98	104	
		100	105	98	100	104	105	104	104	104	104	104	104	101	98	104	

- [0082] *1 天然ゴム：インドネシア製「SIR20」、SP値=8.50 (cal/cm³)^{1/2}
- *2 変性スチレン-ブタジエン共重合体ゴム：下記の方法で合成した変性スチレン-ブタジエン共重合体ゴム、SP値=8.65 (cal/cm³)^{1/2}
- *3 スチレン-ブタジエン共重合体ゴム：JSR株式会社製、商品名「#1500」、SP値=8.60 (cal/cm³)^{1/2}
- *4 カーボンブラック：N234 (ISAF)、旭カーボン株式会社製、商品名「#78」
- *5 シリカ：東ソー・シリカ工業株式会社製、商品名「ニプシルAQ」、BET表面積=205 m²/g
- *6 樹脂A：C₉系樹脂、JX日鉱日石エネルギー株式会社製、商品名「日石ネオポリマー（登録商標）140」、SP値=10.5 (cal/cm³)^{1/2}、軟化点=145℃
- *7 樹脂B：ジシクロペンタジエン樹脂、日本ゼオン株式会社製、商品名「クイントン（登録商標）1105」、SP値=10.7 (cal/cm³)^{1/2}、軟化点=85℃
- *8 樹脂C：C₅-C₉系樹脂、日本ゼオン株式会社製、商品名「クイントン（登録商標）G100B」、SP値=8.8 (cal/cm³)^{1/2}、軟化点=104℃
- *9 樹脂D：C₅系樹脂、エクソンモービルケミカル社製、商品名「エスコレッツ（登録商標）1102B」、SP値=9.7 (cal/cm³)^{1/2}、軟化点=100℃

[0083] <変性スチレン-ブタジエン共重合体ゴムの合成>

乾燥し、窒素置換した800 mLの耐圧ガラス容器に、1, 3-ブタジエンのシクロヘキサン溶液およびスチレンのシクロヘキサン溶液を、1, 3-ブタジエン67.5 g及びスチレン7.5 gになるように加え、2, 2-ジテトラヒドロフリルプロパン0.6 mmolを加え、0.8 mmolのn-ブチルリチウムを加えた後、50℃で1.5時間重合を行った。この際の重

合転化率がほぼ100%となった重合反応系に対し、変性剤としてN，N-ビス（トリメチルシリル）-3-[ジエトキシ（メチル）シリル]プロピルアミン〔一般式（IV）の化合物に相当〕を0.72mmol添加し、50℃で30分間変性反応を行った。その後、2，6-ジ-tert-ブチル-p-クレゾール（BHT）のイソプロパノール5質量%溶液2mLを加えて反応を停止させ、常法に従い乾燥して、変性スチレン-ブタジエン共重合体ゴムを得た。

[0084] 表1から、本発明のゴム組成物は、タイヤに適用することで、タイヤの燃費性能、ウェット性能、コーナーリング性能を向上させられることが分かる。また、本発明のゴム組成物は、密着性、耐オゾン性も良好であることが分かる。

産業上の利用可能性

[0085] 本発明のゴム組成物は、タイヤのトレッドゴムに利用できる。また、本発明のタイヤは、各種車両向けのタイヤとして利用できる。

請求の範囲

- [請求項1] 天然ゴムを50質量%以上含むゴム成分(A)と、該ゴム成分(A)とのSP値の差が $1.5(\text{cal}/\text{cm}^3)^{1/2}$ 以下である相溶性樹脂(B)と、該ゴム成分(A)とのSP値の差が $1.5(\text{cal}/\text{cm}^3)^{1/2}$ を超える非相溶性樹脂(C)と、を含み、
前記相溶性樹脂(B)と前記非相溶性樹脂(C)との合計配合量が、前記ゴム成分(A)100質量部に対して10質量部以上であることを特徴とする、ゴム組成物。
- [請求項2] 前記相溶性樹脂(B)と前記非相溶性樹脂(C)との質量での配合比率(B/C)が、 $1/4 \sim 4/1$ である、請求項1に記載のゴム組成物。
- [請求項3] 前記相溶性樹脂(B)の軟化点が 110°C 以下である、請求項1又は2に記載のゴム組成物。
- [請求項4] 前記ゴム成分(A)が、更に変性ポリマーを含む、請求項1～3のいずれか一項に記載のゴム組成物。
- [請求項5] 請求項1～4のいずれか一項に記載のゴム組成物をトレッドゴムに用いたことを特徴とする、タイヤ。

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.
PCT/JP2017/020519

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER
C08L7/00(2006.01)i, B60C1/00(2006.01)i

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)
C08L7/00, B60C1/00

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Jitsuyo Shinan Koho	1922-1996	Jitsuyo Shinan Toroku Koho	1996-2017
Kokai Jitsuyo Shinan Koho	1971-2017	Toroku Jitsuyo Shinan Koho	1994-2017

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	JP 2011-126992 A (Sumitomo Rubber Industries, Ltd.), 30 June 2011 (30.06.2011), claims; paragraphs [0001] to [0002], [0016], [0019] to [0025], [0035] to [0036], [0039] to [0041]; table 1; paragraphs [0043] to [0044]; tables 2, 3 (Family: none)	1-5
X	JP 2013-43923 A (Sumitomo Rubber Industries, Ltd.), 04 March 2013 (04.03.2013), claims; paragraphs [0001] to [0002], [0019] to [0023], [0031], [0041] to [0044], [0048] to [0051]; tables 1, 2 & CN 102952294 A & KR 10-2013-0023034 A & TW 201309762 A	1-5

Further documents are listed in the continuation of Box C. See patent family annex.

* Special categories of cited documents:	"T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention
"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance	"X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone
"E" earlier application or patent but published on or after the international filing date	"Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art
"L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)	"&" document member of the same patent family
"O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means	
"P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed	

Date of the actual completion of the international search 21 July 2017 (21.07.17)	Date of mailing of the international search report 01 August 2017 (01.08.17)
--	---

Name and mailing address of the ISA/ Japan Patent Office 3-4-3, Kasumigaseki, Chiyoda-ku, Tokyo 100-8915, Japan	Authorized officer Telephone No.
--	---

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2017/020519

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	JP 2013-181069 A (Nisshin-Kasei Co., Ltd.), 12 September 2013 (12.09.2013), paragraph [0024]; table 6 (Family: none)	1-5
A	WO 2011/114990 A1 (The Yokohama Rubber Co., Ltd.), 22 September 2011 (22.09.2011), claims & KR 10-2012-0091457 A & CN 102725343 A	1-5
A	JP 2006-249403 A (Sumitomo Rubber Industries, Ltd.), 21 September 2006 (21.09.2006), entire text & EP 1690895 A1 entire text	1-5

A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (IPC))

Int.Cl. C08L7/00(2006.01)i, B60C1/00(2006.01)i

B. 調査を行った分野

調査を行った最小限資料 (国際特許分類 (IPC))

Int.Cl. C08L7/00, B60C1/00

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

日本国実用新案公報	1922-1996年
日本国公開実用新案公報	1971-2017年
日本国実用新案登録公報	1996-2017年
日本国登録実用新案公報	1994-2017年

国際調査で使用した電子データベース (データベースの名称、調査に使用した用語)

C. 関連すると認められる文献

引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求項の番号
X	JP 2011-126992 A (住友ゴム工業株式会社) 2011.06.30, 特許請求の範囲、[0001]-[0002]、[0016]、[0019]-[0025]、 [0035]-[0036]、[0039]-[0041]、表1、[0043]-[0044]、表2、表3 (ファミリーなし)	1-5

C欄の続きにも文献が列挙されている。

パテントファミリーに関する別紙を参照。

* 引用文献のカテゴリー	の日の後に公表された文献
「A」特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの	「T」国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの
「E」国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの	「X」特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの
「L」優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献 (理由を付す)	「Y」特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの
「O」口頭による開示、使用、展示等に言及する文献	「&」同一パテントファミリー文献
「P」国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願	

国際調査を完了した日 21.07.2017	国際調査報告の発送日 01.08.2017
--------------------------	--------------------------

国際調査機関の名称及びあて先 日本国特許庁 (ISA/J P) 郵便番号100-8915 東京都千代田区霞が関三丁目4番3号	特許庁審査官 (権限のある職員) 三原 健治 電話番号 03-3581-1101 内線 3457	4 J	8380
---	--	-----	------

C (続き) . 関連すると認められる文献		
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求項の番号
X	JP 2013-43923 A (住友ゴム工業株式会社) 2013. 03. 04, 特許請求の範囲、[0001]-[0002]、[0019]-[0023]、[0031]、 [0041]-[0044]、[0048]-[0051]、表 1、表 2 & CN 102952294 A & KR 10-2013-0023034 A & TW 201309762 A	1-5
A	JP 2013-181069 A (日進化成株式会社) 2013. 09. 12, [0024]、表 6 (ファミリーなし)	1-5
A	WO 2011/114990 A1 (横浜ゴム株式会社) 2011. 09. 22, 特許請求の範囲 & KR 10-2012-0091457 A & CN 102725343 A	1-5
A	JP 2006-249403 A (住友ゴム工業株式会社) 2006. 09. 21, 全文 & EP 1690895 A1 全文	1-5