

(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
2025年1月2日(02.01.2025)



(10) 国際公開番号

WO 2025/005131 A1

(51) 国際特許分類:

C08L 15/00 (2006.01) *C08K 5/36* (2006.01)
C08C 19/25 (2006.01) *C08L 57/02* (2006.01)
C08C 19/28 (2006.01) *C08L 91/00* (2006.01)
C08K 3/36 (2006.01) *C08L 101/00* (2006.01)

川 県 平 塚 市 追 分 2 番 1 号 横 浜 ゴ ム 株 式 会 社 平 塚 製 造 所 内 Kanagawa (JP). 高 橋 亮 太 (TAKAHASHI Ryota); 〒2548601 神 奈 川 県 平 塚 市 追 分 2 番 1 号 横 浜 ゴ ム 株 式 会 社 平 塚 製 造 所 内 Kanagawa (JP).

(21) 国際出願番号: PCT/JP2024/023162

(22) 国際出願日: 2024年6月26日(26.06.2024)

(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 2023-104310 2023年6月26日(26.06.2023) JP

(71) 出願人: 横浜ゴム株式会社 (THE YOKOHAMA RUBBER CO., LTD.) [JP/JP]; 〒2548601 神奈川県平塚市追分2番1号 Kanagawa (JP).

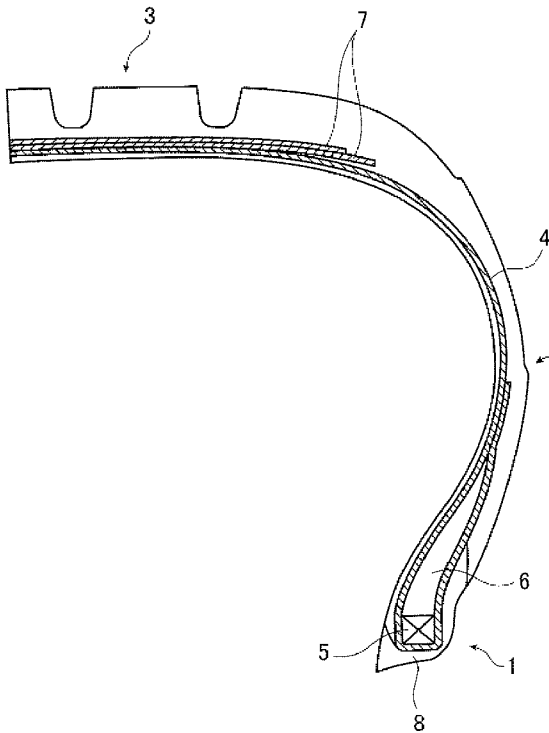
(72) 発明者: 佐藤 正樹 (SATO Masaki); 〒2548601 神奈川県平塚市追分2番1号 横浜ゴム株式会社 平塚製造所内 Kanagawa (JP). 杉本 洋樹 (SUGIMOTO Hiroki); 〒2548601 神奈

(74) 代理人: 伊 東 秀 明, 外 (ITO HIDEAKI et al.); 〒1010032 東京都千代田区岩本町2丁目3番3号 ザイマックス岩本町ビル6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, CV, CZ, DE, DJ, DK, DM, DO, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, GT, HN, HR, HU, ID, IL, IN, IQ, IR, IS, IT, JM, JO, JP, KE, KG, KH, KN, KP, KR, KW, KZ, LA, LC, LK, LR, LS, LU, LY, MA, MD, MG, MK, MN, MU, 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,

(54) Title: RUBBER COMPOSITION FOR TIRES, AND TIRE

(54) 発明の名称: タイヤ用ゴム組成物及びタイヤ



(57) Abstract: The purpose of the present invention is to provide: a rubber composition for tires which exhibit excellent resistance to thermal sagging, resistance to wear in circuit running, wet performance, and rolling performance; and a tire produced using the rubber composition. This rubber composition for tires comprises: a rubber component A including a modified conjugated-diene rubber A1; silica B; and a softener C comprising at least one member selected from the group consisting of thermoplastic resins and oils. The A1 is a conjugated-diene rubber satisfying a specific expression and having a modification group including a nitrogen atom, a silicon atom, and an oxygen atom adjacent thereto and accounts for 25 mass% or more of the A. The A as a whole has a glass transition temperature higher than -80°C but not higher than -45°C. The content of the B is 80-160 parts by mass per 100 parts by mass of the A. The content of the thermoplastic resin(s) is 30-80 parts by mass, excluding 80 parts by mass, per 100 parts by mass of the A, and the proportion of the thermoplastic resin(s) to the sum of the thermoplastic resin(s) and the oil(s) is 50 mass% or higher.

SL, ST, SV, SY, TH, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA,
UG, US, UZ, VC, VN, WS, ZA, ZM, ZW.

(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, CV, GH, GM, KE, LR, LS, MW, MZ, NA, RW, SC, 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, ME, 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:

— 国際調査報告 (条約第21条(3))

(57) 要約: 本発明は、優れた耐熱ダレ性、耐サーキット摩耗性、ウェット性能及び転がり性能を示すタイヤ用ゴム組成物、並びに、これを用いて製造されたタイヤを提供することを課題とする。本発明のタイヤ用ゴム組成物は、変性共役ジエン系ゴム A 1 を含むゴム成分 A とシリカ B と熱可塑性樹脂及びオイルからなる群より選択される少なくとも 1 種からなる軟化剤 C とを含有し、A 1 が、特定の式を満たし、且つ、窒素原子、ケイ素原子及びそれに隣接する酸素原子を含む変性基を有する、共役ジエン系ゴムであり、A 中の A 1 の割合が 25 質量%以上であり、A 全体のガラス転移温度が -80°C 超 -45°C 以下であり、A 1 0 0 質量部に対する B の含有量が 80 質量部以上 160 質量部以下であり、A 1 0 0 質量部に対する熱可塑性樹脂の含有量が 30 質量部以上 80 質量部未満であり、熱可塑性樹脂とオイルとの合計に対する熱可塑性樹脂の割合が 50 質量%以上である。

明 細 書

発明の名称： タイヤ用ゴム組成物及びタイヤ

技術分野

[0001] 本発明は、タイヤ用ゴム組成物及びタイヤに関する。

背景技術

[0002] 従来、性能向上の観点からシリカを配合したタイヤ用ゴム組成物が知られている（例えば、特許文献1）。

先行技術文献

特許文献

[0003] 特許文献1：特開2014-28902号公報

発明の概要

発明が解決しようとする課題

[0004] 昨今、安全性等の観点から、タイヤに対して、耐熱ダレ性、耐サーキット摩耗性（サーキット走行等の高シビアリティ条件下での耐摩耗性）、ウェット性能等のさらなる向上が求められている。また、環境問題等の観点から、転がり性能のさらなる向上も求められている。

このようななか、本発明者らが特許文献1等に記載のタイヤ用ゴム組成物について検討したところ、今後高まるであろう要求を考慮すると、さらなる改善が望ましいことが明らかになった。

[0005] そこで、本発明は、上記実情を鑑みて、タイヤにしたときに優れた耐熱ダレ性、耐サーキット摩耗性、ウェット性能及び転がり性能を示すタイヤ用ゴム組成物、並びに、上記タイヤ用ゴム組成物を用いて製造された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] 本発明者らは、上記課題について鋭意検討した結果、ゴム成分として特定の変性共役ジエン系ゴムを使用するとともに、シリカや熱可塑性樹脂の含有量等を最適化することで、上記課題が解決できることを見出し、本発明に至

った。

すなわち、本発明者らは、以下の構成により上記課題が解決できることを見出した。

[0007] (1) 変性共役ジエン系ゴム (A 1) を含むゴム成分 (A) と、シリカ (B) と、熱可塑性樹脂及びオイルからなる群より選択される少なくとも 1 種からなる軟化剤 (C) とを含有し、

上記変性共役ジエン系ゴム (A 1) が、下記式 (1) 及び下記式 (2) を満たし、且つ、窒素原子、ケイ素原子及びそれに隣接する酸素原子を含む変性基を有する、共役ジエン系ゴムであり、

上記ゴム成分 (A) 中の上記変性共役ジエン系ゴム (A 1) の割合が、25 質量%以上であり、

上記ゴム成分 (A) 全体のガラス転移温度が、 -80°C 超 -45°C 以下であり、

上記ゴム成分 (A) 100 質量部に対する上記シリカ (B) の含有量が、80 質量部以上 160 質量部以下であり、

上記ゴム成分 (A) 100 質量部に対する上記熱可塑性樹脂の含有量が、30 質量部以上 80 質量部未満であり、

上記熱可塑性樹脂と上記オイルとの合計に対する上記熱可塑性樹脂の割合が、50 質量%以上である、タイヤ用ゴム組成物。

$$I V w_{10\%} \leq 3.1 \times 10^{-6} \times M w_{10\%} - 2.77 \quad (1)$$

$$S t + V n \leq 50 \quad (2)$$

式 (1) 中の $M w_{10\%}$ 及び $I V w_{10\%}$ については以下のとおりである。

変性共役ジエン系ゴムについて示差屈折率検出器及び粘度検出器を検出器とするゲルパーミエーションクロマトグラフィー測定を行う。示差屈折率検出器によるクロマトグラムピークのうち、ピーク全体の面積の 10% の面積となる高分子量側の部分を用いて求められた重量平均分子量を $M w_{10\%}$ とする。また、粘度検出器によるクロマトグラムピークのうち、ピーク全体の面積の 10% の面積となる高分子量側の部分を用いて求められた重量平均固

有粘度を $1/V_{w10\%}$ とする。ただし、重量平均固有粘度の単位は dL/g である。

式(2)中、 S_t は、変性共役ジエン系ゴム全体に対するスチレンに由来する繰り返し単位の割合(質量%)を表し、 V_n は、変性共役ジエン系ゴム全体に対する共役ジエンに由来する1,2-ビニル構造の繰り返し単位の割合(質量%)を表す。

(2) 上記変性共役ジエン系ゴム(A1)が、

3分岐以上の星形構造を有し、上記星形構造の少なくとも1つの分岐鎖がアルコキシシリル基又はハロシリル基を含むビニル系単量体に由来する部分を有し、

上記部分において、さらなる主鎖分岐構造を有する、上記(1)に記載のタイヤ用ゴム組成物。

(3) 上記熱可塑性樹脂が、テルペン系樹脂、C5/C9系樹脂、C9系樹脂、DCPD系樹脂、DCPD/C9系樹脂、水添C5/C9系樹脂、水添C9系樹脂、水添DCPD系樹脂、及び、水添DCPD/C9系樹脂からなる群より選択される少なくとも1種を含む、上記(1)又は(2)に記載のタイヤ用ゴム組成物。

(4) さらに、上記ゴム成分(A)100質量部に対して、チウラム系加硫促進剤0.2質量部以上3.0質量部以下を含有する、上記(1)～(3)のいずれかに記載のタイヤ用ゴム組成物。

(5) 上記ゴム成分(A)100質量部に対する上記熱可塑性樹脂の含有量が、50質量部以上80質量部未満であり、

上記熱可塑性樹脂と上記オイルとの合計に対する上記熱可塑性樹脂の割合が、80質量%以上である、上記(1)～(4)のいずれかに記載のタイヤ用ゴム組成物。

(6) 上記軟化剤(C)が、熱可塑性樹脂を2種以上含む、上記(1)～(5)のいずれかに記載のタイヤ用ゴム組成物。

(7) 上記(1)～(6)のいずれかに記載のタイヤ用ゴム組成物を用い

て製造された、タイヤ。

発明の効果

[0008] 以下に示すように、本発明によれば、タイヤにしたときに優れた耐熱ダレ性、耐サーキット摩耗性、ウェット性能及び転がり性能を示すタイヤ用ゴム組成物、並びに、上記タイヤ用ゴム組成物を用いて製造されたタイヤを提供することができる。

図面の簡単な説明

[0009] [図1]GPCのクロマトグラムの一例である。

[図2]本発明のタイヤの実施態様の一例を表す部分断面概略図である。

発明を実施するための形態

[0010] 以下に、本発明のタイヤ用ゴム組成物等について説明する。

なお、本明細書において「～」を用いて表される数値範囲は、「～」の前後に記載される数値を下限値及び上限値として含む範囲を意味する。

また、各成分は、1種を単独でも用いても、2種以上を併用してもよい。ここで、各成分について2種以上を併用する場合、その成分について含有量とは、特段の断りが無い限り、合計の含有量を指す。

また、タイヤ用ゴム組成物について、タイヤにしたときの、耐熱ダレ性、耐サーキット摩耗性、ウェット性能、転がり性能をそれぞれ単に「耐熱ダレ性」、「耐サーキット摩耗性」、「ウェット性能」、「転がり性能」とも言う。

また、本明細書において、10のべき乗をEで表すことがある。例えば、E+5は10の5乗を表す。

[0011] [1] タイヤ用ゴム組成物

本発明のタイヤ用ゴム組成物（以下、「本発明の組成物」とも言う）は、変性共役ジエン系ゴム（A1）を含むゴム成分（A）と、シリカ（B）と、熱可塑性樹脂及びオイルからなる群より選択される少なくとも1種からなる軟化剤（C）とを含有し、

上記変性共役ジエン系ゴム（A1）が、後述する式（1）及び後述する式

(2) を満たし、且つ、窒素原子、ケイ素原子及びそれに隣接する酸素原子を含む変性基を有する、共役ジエン系ゴムであり、

上記ゴム成分 (A) 中の上記変性共役ジエン系ゴム (A 1) の割合が、25 質量%以上であり、

上記ゴム成分 (A) 全体のガラス転移温度が、 -80°C 超 -45°C 以下であり、

上記ゴム成分 (A) 100 質量部に対する上記シリカ (B) の含有量が、80 質量部以上160 質量部以下であり、

上記ゴム成分 (A) 100 質量部に対する上記熱可塑性樹脂の含有量が、30 質量部以上80 質量部未満であり、

上記熱可塑性樹脂と上記オイルとの合計に対する上記熱可塑性樹脂の割合が、50 質量%以上である、タイヤ用ゴム組成物である。

[0012] 本発明の組成物はこのような構成をとるために上述した課題を解決できるものと考えられる。その理由は明らかではないが、およそ以下のとおりと推測している。

本発明の組成物にはゴム成分として、後述する式 (1) 及び後述する式 (2) を満たし、且つ、窒素原子、ケイ素原子及びそれに隣接する酸素原子を含む変性基（以下、「特定変性基」とも言う）を有する、共役ジエン系ゴム（以下、「特定共役ジエン系ゴム」とも言う）が含まれる。式 (1) は高分子量側の重量平均固有粘度と高分子量側の重量平均分子量との関係を規定するものであり、本発明者らの検討から、式 (1) を満たすゴムは加工性に優れることが知見されている。また、特定共役ジエン系ゴムが有する特定変性基はシリカと相互作用するものと考えられる。そのため、本発明の組成物において、シリカの分散性は極めて高く、このことは優れた効果（耐熱ダレ性、耐サーキット摩耗性、ウェット性能、転がり性能）に繋がるものと考えられる。さらには、本発明の組成物においては、特定量の熱可塑性樹脂を含有するため、極めて高い水準のモジュラス（耐熱ダレ性）や耐サーキット摩耗性が達成されるものと考えられる。

[0013] 以下、本発明の組成物に含有される各成分について説明する。

[0014] [1] ゴム成分

本発明の組成物は特定共役ジエン系ゴムを含むゴム成分を含有する。

本発明の組成物は特定共役ジエン系ゴム以外のゴム成分を含んでいてもよい。

[0015] [特定共役ジエン系ゴム]

特定共役ジエン系ゴムは、後述する式（１）及び後述する式（２）を満たし、且つ、窒素原子、ケイ素原子及びそれに隣接する酸素原子を含む変性基（特定変性基）を有する、共役ジエン系ゴムである。

[0016] [骨格]

特定共役ジエン系ゴムの骨格は、共役ジエンに由来する繰り返し単位を有する重合体である。

[0017] <共役ジエン>

共役ジエンの具体例としては、ブタジエン（特に１，３－ブタジエン）、イソプレン、クロロプレン等が挙げられる。上記ジエンは、本発明の効果がより優れる理由から、ブタジエン（特に１，３－ブタジエン）又はイソプレンであることが好ましく、ブタジエン（特に１，３－ブタジエン）であることがより好ましい。

[0018] <その他のモノマー>

特定共役ジエン系ゴムの骨格は、共役ジエンに由来する繰り返し単位以外の繰り返し単位を有していてもよい。そのような繰り返し単位となるモノマー（その他のモノマー）としては、例えば、ビニル系単量体、アルケン（例えば、エチレン、プロピレン、ブテン）等が挙げられる。ビニル系単量体としては、芳香族ビニル（例えば、スチレン）、アクリロニトリル、後述する特定分岐化剤、等が挙げられる。

[0019] <具体例>

骨格の具体例としては、天然ゴム（NR）、ブタジエンゴム（BR）、芳香族ビニル－共役ジエン共重合ゴム、イソプレンゴム（IR）、アクリロニ

トリループタジエン共重合ゴム（NBR）、ブチルゴム（IIR）、ハロゲン化ブチルゴム（Br-IIR、Cl-IIR）、クロロプレンゴム（CR）などが挙げられる。上記芳香族ビニル共役ジエン共重合ゴムとしては、スチレンブタジエンゴム（SBR）、スチレンイソプレン共重合ゴムなどが挙げられる。

上記共役ジエン系ゴムは、本発明の効果がより優れる理由から、SBRであることが好ましい。

[0020] 〔特定変性基〕

上述のとおり、特定共役ジエン系ゴムは、窒素原子、ケイ素原子及びそれ（ケイ素原子）に隣接する酸素原子を含む変性基（特定変性基）を有する。

特定変性基は、共役ジエン系ゴムの末端、主鎖、側鎖いずれに有するのでもよい。

特定変性基は、本発明の効果がより優れる理由から、ケイ素原子及びそれに隣接する酸素原子を、アルコキシシリル基として含むのが好ましい。なお、アルコキシシリル基は、 $-Si(OR_1)_n(R_2)_{3-n}$ （ここで、 R_1 ：アルキル基、 R_2 ：水素原子又はアルキル基、 n ：1～3の整数）で表される基である。

特定変性基は、本発明の効果がより優れる理由から、窒素原子を、アミノ基（1～3級アミノ基）として含むのが好ましい。

特定変性基は、本発明の効果がより優れる理由から、後述する特定変性剤に由来する基であることが好ましい。

[0021] 〔式（1）〕

特定共役ジエン系ゴムは、下記式（1）を満たす。

式（1）は高分子量側の重量平均固有粘度と高分子量側の重量平均分子量との関係を規定したものであり、分岐を有する等、分子量の割に分子の大きさが小さい重合体が式（1）を満たす傾向にある。なお、高分子量側に限定している理由は、重合体全体の物性に与える影響が大きいためである。

$$[0022] \quad IV_{w10\%} \leq 3.1 \times 10^{-6} \times Mw_{10\%} - 2.77 \quad (1)$$

[0023] 式(1)中の $M_{w10\%}$ 及び $I_{Vw10\%}$ は以下のようにして求められる。

変性共役ジエン系ゴムについて示差屈折率検出器(RI検出器)及び粘度検出器を検出器とするゲルパーミエーションクロマトグラフィー測定を行う。示差屈折率検出器によるクロマトグラムのピークのうち、ピーク全体の面積の10%の面積となる高分子量側の部分を用いて求められた重量平均分子量を $M_{w10\%}$ とする。また、粘度検出器によるクロマトグラムのピークのうち、ピーク全体の面積の10%の面積となる高分子量側の部分を用いて求められた重量平均固有粘度を $I_{Vw10\%}$ とする。ただし、重量平均固有粘度の単位は dL/g である。

[0024] 以下、式(1)中の $M_{w10\%}$ 及び $I_{Vw10\%}$ について、より具体的に説明する。

[0025] 上述のとおり、変性共役ジエン系ゴムについて示差屈折率検出器及び粘度検出器を検出器とするゲルパーミエーションクロマトグラフィー(GPC)測定を行う。GPC測定の具体的な方法は以下のとおりである。

[0026] 溶離液として 5 mmol/L のトリエチルアミン入りトルエンを使用する。カラムは、ポリスチレンゲルを充填剤としたカラム3本(東ソー社製の商品名「TSKgel G4000HXL」、「TSKgel G5000HXL」、及び「TSKgel G6000HXL」)を連結して使用する。測定用の試料を 1 mg/mL の濃度となるようにトルエンに溶解して測定溶液とし、測定溶液 $100\text{ }\mu\text{L}$ をGPC測定装置に注入して、オーブン温度 40°C 、トルエン流量 1 mL/分 の条件で測定する。

[0027] 示差屈折率検出器によるクロマトグラム(横軸:溶出時間、縦軸:信号強度)のピーク(変性共役ジエン系ゴムに由来するピーク)のうち、ピーク全体の面積の10%の面積となる高分子量側(溶出時間が短い方)の部分を用いて、重量平均分子量を求める。得られた重量平均分子量を $M_{w10\%}$ とする。

[0028] また、粘度検出器によるクロマトグラム(横軸:溶出時間、縦軸:信号強度)のピーク(変性共役ジエン系ゴムに由来するピーク)のうち、ピーク全体の面積の10%の面積となる高分子量側(溶出時間が短い方)の部分を用

いて、重量平均固有粘度を求める。得られた重量平均固有粘度を $IV_{w10\%}$ とする。

なお、重量平均固有粘度とは、分子量 M_i における、分子数を N_i 、固有粘度を η_i とすると、 $(\sum (\eta_i \times M_i \times N_i)) / (\sum (M_i \times N_i))$ と定義されるものである。

[0029] なお、図1にGPCのクロマトグラム（横軸：溶出時間、縦軸：信号強度）の一例を示す。ピーク全体であるP0の面積の10%の面積となる高分子量側（溶出時間が短い方）の部分であるP1を用いて $M_{w10\%}$ 及び $IV_{w10\%}$ を求める。

[0030] 変性共役ジエン系ゴムが式（1）を満たすようにするための方法としては、例えば、後述する本発明の製造方法において、特定変性剤の種類や使用量、特定分岐化剤の種類や使用量を変更する方法等が挙げられる。

[0031] $M_{w10\%}$ は、本発明の効果がより優れる理由から、100,000～10,000,000であることが好ましく、1,000,000～5,000,000であることがより好ましい。

[0032] $IV_{w10\%}$ は、本発明の効果がより優れる理由から、2～8であることが好ましく、4～6であることがより好ましい。

[0033] [式（2）]

特定共役ジエン系ゴムは、下記式（2）を満たす。

[0034] $S_t + V_n \leq 50$ （2）

[0035] 式（2）中、 S_t は、特定共役ジエン系ゴム全体に対するスチレンに由来する繰り返し単位の割合（質量%）（以下、「スチレン量」とも言う）を表し、 V_n は、特定共役ジエン系ゴム全体に対する共役ジエン（例えば、ブタジエン）に由来する1,2-ビニル構造の繰り返し単位の割合（質量%）（以下、「ビニル量」とも言う）を表す。

[0036] $S_t + V_n$ は、本発明の効果がより優れる理由から、10～45であることが好ましく、25～45であることがより好ましい。

[0037] S_t は、本発明の効果がより優れる理由から、5～40であることが好ま

しく、10～35であることがより好ましく、15～30であることがさらに好ましい。

[0038] V_n は、本発明の効果がより優れる理由から、5～30であることが好ましく、10～20であることがより好ましい。

[0039] [分子量]

特定共役ジエン系ゴムの重量平均分子量 (M_w) は、本発明の効果がより優れる理由から、100,000～2,000,000であることが好ましく、200,000～1,300,000であることがより好ましい。

なお、特定共役ジエン系ゴムの重量平均分子量 (M_w) の測定方法は、ピーク全体を用いる点以外、上述した $M_{w10\%}$ と同じである。

[0040] [ガラス転移温度]

特定共役ジエン系ゴムのガラス転移温度 (T_g) は特に制限されないが、本発明の効果がより優れる理由から、 -100°C ～ -30°C であることが好ましく、 -80°C ～ -45°C であることがより好ましい。

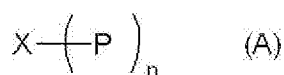
ガラス転移温度は、例えば、スチレン量やビニル量によって調節することができる。

なお、本明細書において、ガラス転移温度 (T_g) は、示差走査熱量計 (DSC) を用いて $10^{\circ}\text{C}/\text{分}$ の昇温速度で測定し、中点法にて算出したものとする。

[0041] [好適な態様1]

特定共役ジエン系ゴムは、本発明の効果がより優れる理由から、3分岐以上の星形構造を有するのが好ましく、特定変性基を分岐点とする3分岐以上の星形構造を有するのがより好ましく、下記式 (A) で表される共役ジエン系ゴムであることがさらに好ましい。

[0042] [化1]



[0043] 式 (A) 中、Xは、窒素原子、ケイ素原子及びそれに隣接する酸素原子を含むn個の基 (特定変性基) を表し、Pは、共役ジエン系重合体鎖を表し、

nは、3以上の整数を表す。

[0044] 上述のとおり、Xは、窒素原子、ケイ素原子及びそれに隣接する酸素原子を含むn個の基（特定変性基）を表す。

Xは、本発明の効果がより優れる理由から、ケイ素原子及びそれに隣接する酸素原子を、アルコキシシリル基として含むのが好ましい。

Xは、本発明の効果がより優れる理由から、窒素原子を、アミノ基として含むのが好ましい。

[0045] 上述のとおり、Pは、共役ジエン系重合体鎖を表す。複数存在するPは同一でも異なってもよい。

共役ジエン系重合体鎖の定義、具体例及び好適な態様は上述した特定共役ジエン系ゴムの骨格と同じである。

[0046] 上述のとおり、nは、3以上の整数を表す。nの上限は特に制限されないが、本発明の効果がより優れる理由から、30以下であることが好ましい。

[0047] [好適な態様2]

特定共役ジエン系ゴムが3分岐以上の星形構造を有する場合、上記星形構造の少なくとも1つの分岐鎖（共役ジエン系重合体鎖）は、本発明の効果がより優れる理由から、後述する特定分岐化剤に由来する部分を有し、上記部分において、さらなる主鎖分岐構造を有するのが好ましい。

なお、主鎖分岐構造とは、分岐鎖（共役ジエン系重合体鎖）がアルコキシシリル基又はハロシリル基を含むビニル系単量体に由来する部分で分岐点を形成し、さらにその分岐点から高分子鎖（例えば、別の共役ジエン系重合体鎖）が伸長している構造をいう。

[0048] [含有量]

ゴム成分中の特定共役ジエン系ゴムの割合は、25質量%以上である。

上記割合は、本発明の効果がより優れる理由から、30質量%以上であることが好ましく、40質量%以上であることがより好ましく、50質量%以上であることがさらに好ましい。

上記割合の上限は特に制限されず、100質量%である。

[0049] [特定共役ジエン系ゴムの製造方法]

特定共役ジエン系ゴムの製造方法は特に制限されないが、本発明の効果がより優れる理由から、下記（１）～（２）の工程を備える方法（以下、「本発明の製造方法」とも言う）が好ましい。

（１）共役ジエンを含むモノマーをアニオン重合によって重合することで、共役ジエン系重合体を得る、重合工程

（２）重合工程で得られた共役ジエン系重合体と、窒素原子とアルコキシシリル基とを含む化合物（以下、「特定変性剤」とも言う）とを反応させることで、特定変性基を有する共役ジエン系ゴムを得る、変性工程

[0050] [重合工程]

重合工程は、共役ジエンを含むモノマーをアニオン重合によって重合することで、共役ジエン系重合体を得る工程である。

[0051] <アニオン重合>

アニオン重合は特に制限されないが、本発明の効果がより優れる理由から、開始剤として有機リチウム化合物を用いたアニオン重合であることが好ましい。

[0052] 有機リチウム化合物は特に制限されないが、その具体例としては、*n*-ブチルリチウム（*n*-BuLi）、*sec*-ブチルリチウム、*tert*-ブチルリチウム、*n*-プロピルリチウム、*iso*-プロピルリチウム、ベンジルリチウム等のモノ有機リチウム化合物；１，４-ジリチオブタン、１，５-ジリチオペンタン、１，６-ジリチオヘキサン、１，１０-ジリチオデカン、１，１-ジリチオジフェニレン、ジリチオポリブタジエン、ジリチオポリイソプレン、１，４-ジリチオベンゼン、１，２-ジリチオ-１，２-ジフェニルエタン、１，４-ジリチオ-２-エチルシクロヘキサン、１，３，５-トリリチオベンゼン、１，３，５-トリリチオ-２，４，６-トリエチルベンゼン等の多官能性有機リチウム化合物が挙げられる。なかでも、本発明の効果がより優れる理由から、*n*-ブチルリチウム、*sec*-ブチルリチウム、*tert*-ブチルリチウムのモノ有機リチウム化合物が好ましく、*n*-

ブチルリチウムがより好ましい。

[0053] 有機リチウム化合物の使用量は特に制限されないが、本発明の効果がより優れる理由から、モノマーに対して、0.001～10モル%であることが好ましい。

[0054] <モノマー>

重合工程で用いられる共役ジエンを含むモノマーの具体例及び好適な態様は、上述した特定共役ジエン系ゴムの骨格の共役ジエン及びその他のモノマーと同じである。

[0055] (特定分岐化剤)

モノマーは、本発明の効果がより優れる理由から、アルコキシシリル基又はハロシリル基を含むビニル系単量体（以下、「特定分岐化剤」とも言う）を含むのが好ましい。

特定分岐化剤は、本発明の効果がより優れる理由から、アルコキシシリル基又はハロシリル基を含む芳香族ビニル（特にスチレン）であることが好ましく、アルコキシシリル基を含む芳香族ビニルであることがより好ましく、トリアルコキシシリル基を含む芳香族ビニルであることがさらに好ましい。

[0056] (1) 具体例

アルコキシシリル基を含む芳香族ビニルの具体例としては、1-(トリメトキシシリル)-4-ビニルベンゼン、1,1-ビス(4-トリメトキシシリルフェニル)エチレン等が挙げられる。

また、ハロシリル基を含む芳香族ビニルとしては、トリクロロ(4-ビニルフェニル)シラン、1,1-ビス(4-トリクロロシリルフェニル)エチレン等が挙げられる。

[0057] (2) 使用量

特定分岐化剤の使用量は、本発明の効果がより優れる理由から、共役ジエンに対して、0.001～0.1質量%であることが好ましく、0.005～0.05質量%であることがより好ましい。

[0058] <極性化合物>

重合工程においては、極性化合物を添加してもよい。これにより、モノマーをランダムに共重合させることができる。また、極性化合物は、共役ジエンのミクロ構造を制御するためのビニル化剤としても用いることができる傾向にある。また、重合反応の促進等にも効果がある傾向にある。

[0059] 極性化合物としては、例えば、テトラヒドロフラン、ジエチルエーテル、ジオキサン、ジメトキシベンゼン、2, 2-ビス(2-オキソラニル)プロパン等のエーテル類；テトラメチルエチレンジアミン、ジピペリジノエタン、トリメチルアミン、トリエチルアミン、ピリジン、キヌクリジン等の第3級アミン化合物；カリウム-*tert*-アミラート、ナトリウム-*tert*-ブチラート等のアルカリ金属アルコキシド化合物；トリフェニルホスフィン等のホスフィン化合物等を用いることができる。

これらの極性化合物は、1種単独で用いてもよいし、2種以上を併用してもよい。

[0060] (使用量)

極性化合物の使用量は、本発明の効果がより優れる理由から、開始剤1モルに対して、0.01モル以上100モル以下であることが好ましい。

[0061] [変性工程]

変性工程は、重合工程で得られた共役ジエン系重合体と、窒素原子、ケイ素原子及びそれに隣接する酸素原子を含む変性剤（特定変性剤）とを反応させることで、特定変性基を有する共役ジエン系ゴムを得る工程である。

[0062] 変性工程では、重合工程で得られた共役ジエン系重合体の活性末端が特定変性剤のケイ素原子に結合するものと考えられる。例えば、特定変性剤がアルコキシシリル基を含む場合、上記活性末端はアルコキシシリル基のケイ素原子に結合し、アルコキシ基が脱離すると考えられる。

また、重合工程で得られた共役ジエン系重合体が特定分岐化剤に由来する部分を有する場合、上述した活性末端に加えて、上記部分のアルコキシシリル基又はハロシリル基も特定変性剤（例えば、アルコキシシリル基）と反応するものと考えられる。また、上記部分のアルコキシシリル基又はハロシリ

ル基は、別の共役ジエン系重合体の活性末端とも反応するものと考えられる。結果として、特定分岐化剤に由来する部分を有する共役ジエン系重合体は、上記部分において、主鎖分岐構造（別の共役ジエン系重合体鎖）を有することになる。

[0063] <特定変性剤>

特定変性剤は、窒素原子、ケイ素原子及びそれに隣接する酸素原子を含む化合物である。

特定変性剤は、本発明の効果がより優れる理由から、ケイ素原子及びそれに隣接する酸素原子を、アルコキシシリル基（特に、トリアルコキシシリル基）、又は、シラザン構造（特に環状シラザン構造）を含む基であってシラザン構造のケイ素原子にアルコキシ基が結合した基として含むのが好ましい。ここで、シラザン構造とは、ケイ素原子と窒素原子とが直接結合した構造（Si-N結合を有する構造）を意図する。

特定変性剤は、本発明の効果がより優れる理由から、窒素原子を、アミノ基（1～3級アミノ基）、又は、シラザン構造（特に環状シラザン構造）を含む基として含むのが好ましい。

特定変性剤は、アルコキシシリル基等の活性末端と反応し得る部位を2以上（好ましくは3以上）有するのが好ましい。特定変性剤が上記部位を複数有する場合、特定変性剤は共役ジエン系重合体同士を繋ぐカップリング剤として機能する。

[0064] （具体例）

特定変性剤の具体例としては、トリス（3-トリメトキシシリルプロピル）アミン、テトラキス（3-トリメトキシシリルプロピル）-1, 3-プロパンジアミン等のアルコキシシリル基を有する3級アミン、2, 2-ジメトキシ-1-（3-トリメトキシシリルプロピル）-1-アザ-2-シラシクロペンタン等のアルコキシシリル基を有する環状シラザン、トリス〔3-（2, 2-ジメトキシ-1-アザ-2-シラシクロペンタン）プロピル〕アミン、テトラキス〔3-（2, 2-ジメトキシ-1-アザ-2-シラシクロペ

ンタン) プロピル] - 1, 3-プロパンジアミン等のアルコキシシリル基含有環状シラザン構造を含む基を有する3級アミン、ビス(3-トリメトキシシリルプロピル) - [3 - (2, 2-ジメトキシ-1-アザ-2-シラシクロペンタン) プロピル] アミン、ビス[3 - (2, 2-ジメトキシ-1-アザ-2-シラシクロペンタン) プロピル] - (3-トリメトキシシリルプロピル) アミン、トリス(3-トリメトキシシリルプロピル) - [3 - (2, 2-ジメトキシ-1-アザ-2-シラシクロペンタン) プロピル] - 1, 3-プロパンジアミン、ビス(3-トリメトキシシリルプロピル) - [3 - (2, 2-ジメトキシ-1-アザ-2-シラシクロペンタン) プロピル] - [3 - (1-メトキシ-2-トリメチルシリル-1-シラ-2-アザシクロペンタン) プロピル] - 1, 3-プロパンジアミン、ビス(2-トリメトキシシリルプロピル) - [3 - (2, 2-ジメトキシ-1-アザ-2-シラシクロペンタン) プロピル] - メチル-1, 3-プロパンジアミン等のアルコキシシリル基と環状シラザン構造を含む基とを有する3級アミン、等が挙げられる。

[0065] (使用量)

特定変性剤の使用量は、本発明の効果がより優れる理由から、共役ジエンに対し、0.01~1質量%であることが好ましく、0.02~0.2質量%であることがより好ましい。

[0066] [その他の工程]

本発明の製造方法は、上述した工程以外の工程(その他の工程)を備えていてもよい。

その他の工程としては、重合停止剤(例えば、メタノール)を添加する重合停止工程、スチームストリッピングにより溶媒を除去する溶媒除去工程、等が挙げられる。

[0067] [その他のゴム成分]

ゴム成分は、特定共役ジエン系ゴム以外のゴム成分(ゴム成分)を含有していてもよい。そのようなその他のゴム成分としては、天然ゴム(NR)、

ブタジエンゴム（BR）、芳香族ビニル共役ジエン共重合ゴム、イソプレングム（IR）、アクリロニトリルブタジエン共重合ゴム（NBR）、ブチルゴム（IIR）、ハロゲン化ブチルゴム（Br-IIR、Cl-IIR）、クロロプレンゴム（CR）などが挙げられる。上記芳香族ビニル共役ジエン共重合ゴムとしては、スチレンブタジエンゴム（SBR）、スチレンイソプレン共重合ゴムなどが挙げられる。

[0068] [平均T_g]

ゴム成分全体のガラス転移温度（以下、「平均T_g」とも言う）は、-80℃超-45℃以下である。

ゴム成分の平均T_gは、本発明の効果がより優れる理由から、-75℃以上-45℃以下であることが好ましく、-70℃以上-50℃以下であることがより好ましい。

なお、ゴム成分の平均T_gとは、各ゴム成分のガラス転移温度（T_g）に各ゴム成分の質量分率を乗じた合計（ガラス転移温度の加重平均値）である。

[0069] [分子量]

ゴム成分の重量平均分子量（M_w）の好適な態様は、上述した特定共役ジエン系ゴムと同じである。

[0070] [2] シリカ

本発明の組成物はシリカを含有する。

シリカは特に制限されず、従来公知の任意のシリカを用いることができる。

シリカとしては、例えば、湿式シリカ、乾式シリカ、ヒュームドシリカ、珪藻土などが挙げられる。もみ殻等、バイオマス由来のシリカを使用してもよい。上記シリカは、1種のシリカを単独で用いても、2種以上のシリカを併用してもよい。

[0071] [CTAB]

シリカのセチルトリメチルアンモニウムブロマイド（CTAB）吸着比表

面積（以下、「CTAB吸着比表面積」を単に「CTAB」とも言う）は特に制限されないが、本発明の効果がより優れる理由から、 $100 \sim 300 \text{ m}^2/\text{g}$ であることが好ましく、 $150 \sim 200 \text{ m}^2/\text{g}$ であることがより好ましい。

ここで、CTAB吸着比表面積は、JIS K6430:2008 附属書Gに従って測定した値である。

[0072] [含有量]

本発明の組成物において、シリカの含有量は、上述したゴム成分100質量部に対して、80質量部以上160質量部以下である。シリカの含有量は、本発明の効果がより優れる理由から、上述したゴム成分100質量部に対して、100質量部以上140質量部以下であることが好ましい。

[0073] [3] 軟化剤

本発明の組成物は、熱可塑性樹脂及びオイルからなる群より選択される少なくとも1種からなる軟化剤を含有する。

[0074] [熱可塑性樹脂]

軟化剤は、熱可塑性樹脂を含有する。

軟化剤は、本発明の効果がより優れる理由から、熱可塑性樹脂を2種以上含むのが好ましい。

[0075] [具体例]

熱可塑性樹脂としては、例えば、クマロン系樹脂（例えば、クマロン樹脂、クマロン・インデン樹脂、クマロン・インデン・スチレン樹脂）、フェノール系樹脂（例えば、フェノール樹脂、フェノール・アセチレン樹脂、フェノール・ホルムアルデヒド樹脂）、キシレン系樹脂（例えば、キシレン樹脂、キシレン・アセチレン樹脂、キシレン・ホルムアルデヒド樹脂）、ロジン系樹脂（例えば、ロジン、ロジンエステル、水素添加ロジン誘導体）、テルペン系樹脂（例えば、テルペン樹脂、変性テルペン樹脂（芳香族変性テルペン樹脂等）、テルペンフェノール樹脂、水添テルペン樹脂、 α -ピネン樹脂、 β -ピネン樹脂、リモネン樹脂、水添リモネン樹脂、ジペンテン樹脂、テ

ルペンスチレン樹脂)、スチレン系樹脂、石油系樹脂(例えば、C5/C9系樹脂、C9系樹脂、DCPD(ジシクロペンタジエン)系樹脂、DCPD/C9系樹脂、水添C5/C9系樹脂、水添C9系樹脂、水添DCPD系樹脂、水添DCPD/C9系樹脂)、脂肪族飽和炭化水素系樹脂等が挙げられる。

[0076] 熱可塑性樹脂は、本発明の効果がより優れる理由から、テルペン系樹脂、C5/C9系樹脂、C9系樹脂、DCPD系樹脂、DCPD/C9系樹脂、水添C5/C9系樹脂、水添C9系樹脂、水添DCPD系樹脂、及び、水添DCPD/C9系樹脂からなる群より選択される少なくとも1種を含むのが好ましい。

[0077] [含有量]

本発明の組成物において、熱可塑性樹脂の含有量は、上述したゴム成分100質量部に対して、30質量部以上80質量部未満である。

本発明の組成物において、熱可塑性樹脂の含有量は、本発明の効果がより優れる理由から、上述したゴム成分100質量部に対して、50質量部以上80質量部未満であることが好ましい。

[0078] 本発明の組成物において、熱可塑性樹脂の含有量は、本発明の効果がより優れる理由から、上述した特定共役ジエン系ゴムに対して、40~120質量%であることが好ましい。

[0079] [オイル]

軟化剤は、オイルを含んでいてもよい。

[0080] [含有量]

本発明の組成物において、オイルの含有量は、本発明の効果がより優れる理由から、上述したゴム成分100質量部に対して、0~40質量部であることが好ましく、5~35質量部であることがより好ましい。

[0081] [樹脂比率]

本発明の組成物において、熱可塑性樹脂とオイルとの合計に対する熱可塑性樹脂の割合(以下、「樹脂比率」とも言う)は、50質量%以上である。

樹脂比率は、本発明の効果がより優れる理由から、80質量%以上であることが好ましい。

樹脂比率の上限は特に制限されず、100質量%である。

[0082] [4] 任意成分

本発明の組成物は、必要に応じて、上述した成分以外の成分（任意成分）を含有してもよい。

そのような成分としては、例えば、シリカ以外の充填剤（好ましくは、カーボンプラック）、シランカップリング剤、熱膨張性マイクロカプセル、酸化亜鉛（亜鉛華）、ステアリン酸、老化防止剤、ワックス、加工助剤、液状ポリマー、熱硬化性樹脂、加硫剤（例えば、硫黄）、加硫促進剤（促進剤）、加硫活性剤などのゴム組成物に一般的に使用される各種添加剤などが挙げられる。

[0083] [シランカップリング剤]

本発明の組成物は、本発明の効果がより優れる理由から、シランカップリング剤を含有するのが好ましい。

[0084] シランカップリング剤は、加水分解性基および有機官能基を有するシラン化合物であれば特に制限されない。

上記加水分解性基は特に制限されないが、例えば、アルコキシ基、フェノキシ基、カルボキシル基、アルケニルオキシ基などが挙げられる。なかでも、本発明の効果がより優れる理由から、アルコキシ基であることが好ましい。加水分解性基がアルコキシ基である場合、アルコキシ基の炭素数は、本発明の効果がより優れる理由から、1～16であることが好ましく、1～4であることがより好ましい。炭素数1～4のアルコキシ基としては、例えば、メトキシ基、エトキシ基、プロポキシ基などが挙げられる。

[0085] 上記有機官能基は特に制限されないが、有機化合物と化学結合を形成し得る基であることが好ましく、例えば、エポキシ基、ビニル基、アクリロイル基、メタクリロイル基、アミノ基、スルフィド基、メルカプト基、ブロックメルカプト基（保護メルカプト基）（例えば、オクタノイルチオ基）などが

挙げられ、なかでも、本発明の効果がより優れる理由から、スルフィド基（特に、ジスルフィド基、テトラスルフィド基）、メルカプト基、ブロックメルカプト基が好ましい。

シランカップリング剤は、1種を単独で用いてもよく、2種以上を併用してもよい。

[0086] 上記シランカップリング剤は、本発明の効果がより優れる理由から、硫黄含有シランカップリング剤であることが好ましい。

[0087] 上記シランカップリング剤の具体例としては、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-トリメ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）ジスルフィド、メルカプトプロピルトリメトキシシラン、メルカプトプロピ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、トリメトキシシリルプロピル-メルカプトベンゾチアゾールテトラスルフィド、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、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、3-オクタノイルチオ-1-プロピルトリエトキシシラン等が挙げられ、これらのうち1種を単独で用いてもよく、2種以上を併用してもよい。

[0088] [含有量]

本発明の組成物において、シランカップリング剤の含有量は特に制限されないが、本発明の効果がより優れる理由から、上述したゴム成分100質量部に対して、2～20質量部であることが好ましい。

[0089] また、本発明の組成物において、シランカップリング剤の含有量は、本発明の効果がより優れる理由から、上述したシリカの含有量に対して、1～20質量%であることが好ましく、5～15質量%であることがより好ましい。

[0090] [カーボンブラック]

本発明の組成物は、本発明の効果がより優れる理由から、カーボンブラッ

クを含有するのが好ましい。上記カーボンブラックは、1種のカーボンブラックを単独で用いても、2種以上のカーボンブラックを併用してもよい。

上記カーボンブラックは特に限定されず、例えば、SAF-HS、SAF、ISAF-HS、ISAF、ISAF-LS、IISAF-HS、HAF-HS、HAF、HAF-LS、FEF、GPF、SRF等の各種グレードのものを使用することができる。

[0091] [N₂SA]

上記カーボンブラックの窒素吸着比表面積(N₂SA)は特に制限されないが、本発明の効果がより優れる理由から、50~200m²/gであることが好ましく、70~150m²/gであることがより好ましい。

ここで、窒素吸着比表面積(N₂SA)は、カーボンブラック表面への窒素吸着量をJIS K6217-2:2001「第2部：比表面積の求め方—窒素吸着法—単点法」にしたがって測定した値である。

[0092] [含有量]

本発明の組成物において、カーボンブラックの含有量は特に制限されないが、本発明の効果がより優れる理由から、上述したゴム成分100質量部に対して、1~100質量部であることが好ましく、2~30質量部であることがより好ましい。

[0093] [加硫促進剤]

本発明の組成物は、本発明の効果がより優れる理由から、加硫促進剤を含有するのが好ましい。

加硫促進剤としては、例えば、スルフェンアミド系、チウラム系、グアニジン系等が挙げられる。

[0094] [含有量]

本発明の組成物において、加硫促進剤の含有量は、本発明の効果がより優れる理由から、上述したゴム成分100質量部に対して、1~10質量部であることが好ましく、2~8質量部であることがより好ましく、3~6質量部であることがさらに好ましい。

[0095] 〔好適な態様〕

加硫促進剤は、本発明の効果がより優れる理由から、チウラム系加硫促進剤を含むのが好ましい。

[0096] 本発明の組成物において、チウラム系加硫促進剤の含有量は、本発明の効果がより優れる理由から、上述したゴム成分 100 質量部に対して、0.2 質量部以上 3.0 質量部以下であることが好ましい。

本発明の組成物において、チウラム系加硫促進剤の含有量は、本発明の効果がより優れる理由から、上述した特定共役ジエン系ゴムに対して、0.1 ~ 10 質量%であることが好ましく、0.2 ~ 5 質量%であることがより好ましく、0.5 ~ 2 質量%であることがさらに好ましい。

[0097] 〔5〕タイヤ用ゴム組成物の調製方法

本発明の組成物の製造方法は特に限定されず、その具体例としては、例えば、上述した各成分を、公知の方法、装置（例えば、バンバリーミキサー、ニーダー、ロールなど）を用いて、混練する方法などが挙げられる。本発明の組成物が硫黄又は加硫促進剤を含有する場合は、硫黄及び加硫促進剤以外の成分を先に高温（好ましくは 100 ~ 160℃）で混合し、冷却してから、硫黄又は加硫促進剤を混合するのが好ましい。

また、本発明の組成物は、従来公知の加硫または架橋条件で加硫または架橋することができる。

[0098] 〔11〕タイヤ

本発明のタイヤは、上述した本発明の組成物を用いて製造されたタイヤである。本発明のタイヤは、空気入りタイヤであることが好ましく、空気、窒素等の不活性ガス及びその他の気体を充填することができる。

[0099] 図 2 に、本発明のタイヤの実施態様の一例を表すタイヤの部分断面概略図を示す。ただし、本発明のタイヤは図 2 に示す態様に限定されるものではない。

[0100] 図 2 において、符号 1 はビード部を表し、符号 2 はサイドウォール部を表し、符号 3 はタイヤトレッド部を表す。

また、左右一対のビード部 1 間においては、繊維コードが埋設されたカーカス層 4 が装架されており、このカーカス層 4 の端部はビードコア 5 及びビードフィラー 6 の廻りにタイヤ内側から外側に折り返されて巻き上げられている。

また、タイヤトレッド部 3 においては、カーカス層 4 の外側に、ベルト層 7 がタイヤ 1 周に亘って配置されている。

また、ビード部 1 においては、リムに接する部分にリムクッション 8 が配置されている。

なお、符号 2～3、5～6 及び 8 の少なくともいずれか（好ましくは符号 3）は上述した本発明の組成物により形成されている。

[0101] 本発明のタイヤは、例えば、従来公知の方法に従って製造することができる。また、タイヤに充填する気体としては、通常のまたは酸素分圧を調整した空気その他、窒素、アルゴン、ヘリウムなどの不活性ガスを用いることができる。

実施例

[0102] 以下、実施例により、本発明についてさらに詳細に説明するが、本発明はこれらに限定されるものではない。

[0103] [共役ジエン系ゴムの合成]

以下のとおり、各共役ジエン系ゴムを合成した。

[0104] [共役ジエン系ゴム 1]

[0105] <重合工程>

攪拌機付きオートクレーブに、窒素雰囲気下、シクロヘキサン 1000 g/h（時間）、テトラメチルエチレンジアミン 0.023 g/h、1,3-ブタジエン 176.4 g/h、1-ブテン 0.406 g/h、及びスチレン 23.6 g/h で仕込んだ後、n-ブチルリチウムを 1.43 mmol/h で連続的に加え、70℃で重合を開始した。重合が十分に安定したところで、1-(トリメトキシシリル)-4-ビニルベンゼン（分岐化剤）を 0.02 g/h で添加し、攪拌して反応させた。なお、分岐化剤は上述した特定分

岐化剤に該当する。

[0106] <変性工程>

反応器出口から流出した溶液に、ビス（３－トリメトキシシリルプロピル）－〔３－（２，２－ジメトキシ－１－アザ－２－シラシクロペンタン）プロピル〕アミン（変性剤）を０．０８ｇ／ｈで添加し、攪拌して反応させた。

[0107] その後、重合停止剤として、メタノールを添加して、共役ジエン系ゴムを含有する溶液を得た。

[0108] 得られた溶液に、老化防止剤として、イルガノックス１５２０Ｌ（ＢＡＳＦ社製）を、共役ジエン系ゴム１００質量部に対して１．１４質量部添加した後、スチームストリッピングにより溶媒を除去し、６０℃で２４時間真空乾燥して、固形状の共役ジエン系ゴムを得た。得られた共役ジエン系ゴムを共役ジエン系ゴム１とも言う。

[0109] 共役ジエン系ゴム１は、ブタジエンとスチレンと分岐化剤との共重合体である共役ジエン系重合体と変性剤との反応物であり、変性剤に由来する、窒素原子、ケイ素原子及びそれに隣接する酸素原子を含む変性基（特定変性基）を有する変性共役ジエン系ゴムである。

共役ジエン系ゴム１は、変性基を分岐点とする３分岐以上の星形構造を有し、上記変性基に結合する分岐鎖は、分岐化剤に由来する部分を有し、分岐剤に由来する部分において、更なる主鎖分岐構造（共役ジエン系重合体鎖）を有する。

[0110] 〔共役ジエン系ゴム２〕

各成分の使用量を表１に記載のとおり変更した点以外は、共役ジエン系ゴム１と同様の手順にしたがって、固形状の共役ジエン系ゴムを得た。得られた共役ジエン系ゴムを共役ジエン系ゴム２とも言う。

[0111] 共役ジエン系ゴム２は、ブタジエンとスチレンと分岐化剤との共重合体である共役ジエン系重合体と変性剤との反応物であり、変性剤に由来する、窒素原子、ケイ素原子及びそれに隣接する酸素原子を含む変性基（特定変性基

)を有する変性共役ジエン系ゴムである。

共役ジエン系ゴム2は、変性基を分岐点とする3分岐以上の星形構造を有し、上記変性基に結合する分岐鎖は、分岐化剤に由来する部分を有し、分岐剤に由来する部分において、更なる主鎖分岐構造（共役ジエン系重合体鎖）を有する。

[0112]〔共役ジエン系ゴム3〕

各成分の使用量を表1に記載のとおり変更した点以外は、共役ジエン系ゴム1と同様の手順にしたがって、固形状の共役ジエン系ゴムを得た。得られた共役ジエン系ゴムを共役ジエン系ゴム3とも言う。

[0113] 共役ジエン系ゴム3は、ブタジエンとスチレンと分岐化剤との共重合体である共役ジエン系重合体と変性剤との反応物であり、変性剤に由来する、窒素原子、ケイ素原子及びそれに隣接する酸素原子を含む変性基（特定変性基）を有する変性共役ジエン系ゴムである。

共役ジエン系ゴム3は、変性基を分岐点とする3分岐以上の星形構造を有し、上記変性基に結合する分岐鎖は、分岐化剤に由来する部分を有し、分岐剤に由来する部分において、更なる主鎖分岐構造（共役ジエン系重合体鎖）を有する。

[0114] [表1]

表1	共役ジエン系ゴム1	共役ジエン系ゴム2	共役ジエン系ゴム3
シクロヘキサン[g/h]	1000	1000	1000
テトラメチルエチレンジアミン[g/h]	0.023	0.028	0.021
1,3-ブタジエン[g/h]	176.4	163.4	188.1
1-ブテン[g/h]	0.406	0.376	0.433
スチレン[g/h]	23.6	36.6	11.9
n-ブチルリチウム[mmol/h]	1.43	1.43	1.43
分岐化剤[g/h]	0.02	0.07	0.08
変性剤[g/h]	0.08	0.31	0.35
老化防止剤[質量部]	1.14	1.14	1.14

[0115]〔比較共役ジエン系ゴム〕

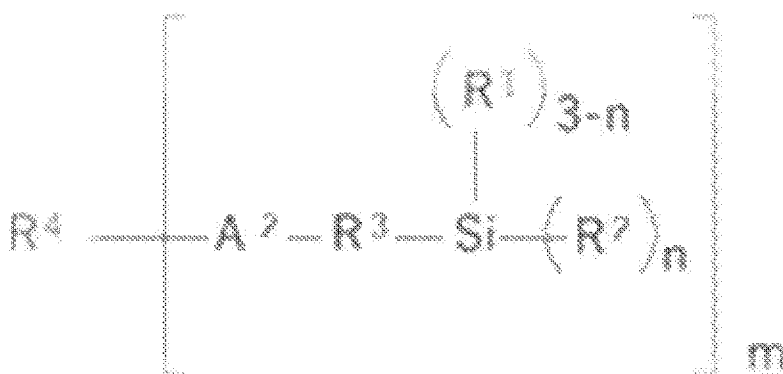
窒素置換された内容積5リットルのオートクレーブ反応器に、シクロヘキサン2,000g、テトラヒドロフラン31.6g、スチレン122g及び1,3-ブタジエン320gを仕込んだ。反応器の内容物の温度を10℃に

調整した後、重合開始剤として *n*-ブチルリチウム 4.75 mmol を添加して重合を開始した。重合は断熱条件で実施し、最高温度は 85℃ に達した。重合転化率が 99% に達した時点で（重合開始から 20 分経過後に）、1,3-ブタジエン 10 g を 2 分間かけて追加し、その後、下記式（4）の化合物（変性剤）2.12 mmol を加えて 15 分間反応を行った。なお、変性剤は上述した特定変性剤に該当する。

得られた溶液に、2,6-ジ-*tert*-ブチル-*p*-クレゾールを 3.96 g 添加した。次いで、スチームストリッピングにより脱溶媒を行い、110℃ に調温された熱ロールで乾燥することにより固形状の共役ジエン系ゴムを得た。得られた共役ジエン系ゴムを比較共役ジエン系ゴムとも言う。

[0116] 式（4）

[化2]



[0117] 式（4）中、 R^1 は、炭素数 1～20 のヒドロカルビル基であり、 R^2 は、炭素数 1～20 のヒドロカルビルオキシ基であり、 R^3 は、炭素数 1～20 のアルカンジイル基であり、 A^2 は、基「 $*-C(R^5)=N-$ 」又は基「 $*-N=C(R^5)-$ 」（ただし、 R^5 は水素原子又はヒドロカルビル基であり、「 $*$ 」は R^4 に結合する結合手であることを示す。）である。 R^4 は、炭素数 1～20 の m 価のヒドロカルビル基、又は窒素原子、酸素原子及び硫黄原子からなる群より選択される少なくとも一種の原子を有し、かつ活性水素を有さない炭素数 1～20 の m 価の基である。 n は 1～3 の整数であり、 m は 2～10 の整数である。式中、複数の R^1 、 R^2 、 R^3 、 A^2 、 n は、同一でも異なってもよい。

[0118] 比較共役ジエン系ゴムは、ブタジエンとスチレンとの共重合体である共役ジエン系重合体と変性剤との反応物であり、変性剤に由来する、窒素原子、ケイ素原子及びそれに隣接する酸素原子を含む変性基（特定変性基）を有する変性共役ジエン系ゴムである。

[0119] 〔重量平均分子量、重量平均固有粘度、スチレン量、ビニル量、ガラス転移温度〕

上述のとおり合成した共役ジエン系ゴム（共役ジエン系ゴム 1～3、比較共役ジエン系ゴム）について、 M_w 、 $M_{w10\%}$ 、 IV_w 、 $IV_{w10\%}$ 、 St 、 V_n 、ガラス転移温度（ T_g ）を表 2 に示す。また、後述する E 5 8 1 及び N S 6 1 2 についても同様に表 2 に示す。

なお、表 2 中、式（1）の「右辺」は、式（1）の右辺である「 $3.1 \times 10^{-6} \times M_{w10\%} - 2.77$ 」の値を表す。

また、表 2 中、式（1）の「該否」は、式（1）の該非を表し、具体的には、「A」は式（1）を満たすことを表し、「B」は式（1）を満たさないことを表す。

また、表 2 中、式（2）の「 $St + V_n$ 」は、上述した $St + V_n$ を表す。

[0120] [表2]

表2		共役ジエン系ゴム1	共役ジエン系ゴム2	共役ジエン系ゴム3	比較共役ジエン系ゴム	E581	NS612
式(1)	M_w	5.8E+05	6.9E+05	5.6E+05	1.2E+06	6.5E+05	3.3E+05
	$M_{w10\%}$	2.5E+06	2.6E+06	3.0E+06	4.3E+06	2.2E+06	1.3E+06
	IV_w	3.1	2.8	3.0	4.1	4.8	2.1
	$IV_{w10\%}$	4.9	4.1	4.8	6.0	7.9	3.1
	右辺	4.9	5.2	6.6	10.5	4.1	1.2
	該否	A	A	A	A	B	B
式(2)	St	20	30	11	40	36	15
	V_n	16	15	17	25	27	26
	$St + V_n$	36	45	28	65	63	41
$T_g[^\circ C]$		-63	-48	-75	-29	-27	-60

[0121] 表 2 に示されるとおり、共役ジエン系ゴム 1～3 はいずれも式（1）及び式（2）を満たす。また、上述のとおり、共役ジエン系ゴム 1～3 はいずれも特定変性基を有する変性共役ジエン系ゴムである。そのため、共役ジエン

系ゴム 1 ～ 3 はいずれも上述した特定共役ジエン系ゴムに該当する。

また、表 2 に示されるとおり、比較共役ジエン系ゴムは式 (1) を満たす。また、上述のとおり、比較共役ジエン系ゴムは特定変性基を有する変性共役ジエン系ゴムである。しかしながら、表 2 に示されるとおり、比較共役ジエン系ゴムは、式 (2) を満たさないため、上述した特定共役ジエン系ゴムに該当しない。

また、表 2 に示されるとおり、E 5 8 1 及び N S 6 1 2 はいずれも式 (1) を満たさないため上述した特定共役ジエン系ゴムに該当しない。

[0122] [タイヤ用ゴム組成物の調製]

下記表 3 ～ 4 の各成分を同表に示す組成 (質量部) で混合した。

具体的には、まず、表 3 ～ 4 中の硫黄及び加硫促進剤以外の成分を 1. 8 L の密閉型混合機で 1 6 0 °C 以下の条件下で 5 分間混合し、マスターバッチを放出した。その後、上記マスターバッチに硫黄及び加硫促進剤を加えてオープンロールを用いて 1 0 0 °C 以下の条件下で混合して、各タイヤ用ゴム組成物を製造した。

[0123] [評価]

得られた各タイヤ用ゴム組成物について以下の評価を行った。

[0124] [耐熱ダレ性]

得られた各タイヤ用ゴム組成物を用いて、タイヤサイズ 2 4 5 / 4 0 R 1 9 で各試験タイヤを作製した。適用リムを介して排気量 2 3 0 0 c c の前輪駆動車に装着し、1 周 1 0 k m のテストコースにおいてこの前輪駆動車を 2 周走行させた時の、操舵時のコントロール性をテストドライバーが官能性評価し、標準例を 1 0 0 として指数表示をした。結果を表 3 ～ 4 に示す。この評価は、指数が大きいほど、ドライ操安性能及びその耐熱ダレ性が高いことを示す。実用上、指数は 1 0 5 以上であることが好ましい。

[0125] [耐サーキット摩耗性]

得られた各タイヤ用ゴム組成物を用いて、タイヤサイズ 2 4 5 / 4 0 R 1 9 で各試験タイヤを作製した。適用リムを介して排気量 2 3 0 0 c c の前輪

駆動車に装着し、1周3.6kmのサーキットにおいてテストドライバーがこの前輪駆動車を5周走行させた。走行前後のタイヤプロファイルを測定し、その差から摩耗量を算出し、その逆数を、標準例を100とする指数で表した。結果を表3～4に示す。この評価は、指数が大きいほど、耐サーキット摩耗性が高いことを示す。実用上、指数は105以上であることが好ましい。

[0126] [ウェット性能]

得られた各タイヤ用ゴム組成物を用いて、タイヤサイズ245/40R19で各試験タイヤを作製し、制動試験に供した。制動試験方法は各試験タイヤ4本を排気量2300ccの乗用車に装着して実施した。ウェット制動試験は、撒水したアスファルト路面上で初速度100km/hからの制動距離を測定した。そして、距離の逆数を、標準例を100として指数化して表3～4に示した。数値の大きいもの程優れていることを示す。実用上、指数は103以上であることが好ましい。

[0127] [転がり性能]

得られた各タイヤ用ゴム組成物を金型(15cm×15cm×0.2cm)中で、160℃で40分間プレス加硫して各加硫ゴムシートを作製した。そして、得られた加硫ゴムシートについて、JIS K6394:2007に準じ、粘弾性スペクトロメーター(東洋精機製作所社製)を用いて、伸張変形歪率10%±2%、振動数20Hz、温度60℃の条件で $\tan \delta$ (60℃)を測定し、 $\tan \delta$ (60℃)の逆数を求めた。

結果を表3～4に示す。結果は標準例の $\tan \delta$ (60℃)の逆数を100とする指数で表した。指数が大きいほど転がり性能(低転がり抵抗性)に優れることを意味する。実用上、指数は102以上であることが好ましい。

[0128]

[表3]

表3	標準例	比較例1	比較例2	比較例3	比較例4	比較例5	比較例6	比較例7	比較例8
共役ジエン系ゴム1		20		40	60	40	40	40	40
共役ジエン系ゴム2									
共役ジエン系ゴム3									
比較共役ジエン系ゴム			40						
E581	20	20		60		20	20	20	20
NS612	80	60	60			40	40	40	40
BR					40				
カーボンブラック	20	20	20	20	20	20	20	70	5
シリカ	120	120	120	120	120	120	120	70	170
テルペン系樹脂	35	35	35	35	35	25	85	35	35
C5/C9系樹脂									
オイル	30	30	30	30	30	40	0	30	30
シランカップリング剤(Si69)	12	12	12	12	12	12	12	12	12
亜鉛華	2.5	2.5	2.5	2.5	2.5	2.5	2.5	2.5	2.5
ステアリン酸	2	2	2	2	2	2	2	2	2
老化防止剤	4	4	4	4	4	4	4	4	4
WAX	2	2	2	2	2	2	2	2	2
加硫促進剤(OZ)	2.4	2.4	2.4	2.4	2.4	2.4	2.4	2.4	2.4
加硫促進剤(TBzTD)									
加硫促進剤(DPG)	2	2	2	2	2	2	2	2	2
硫黄	1.5	1.5	1.5	1.5	1.5	1.5	1.5	1.5	1.5
平均Tg[°C]	-53	-54	-48	-41	-80	-55	-55	-55	-55
樹脂比率	54%	54%	54%	54%	54%	38%	100%	54%	54%
耐熱タレ性	100	103	104	109	106	102	104	107	106
耐サーキット摩耗性	100	102	102	104	108	99	104	112	103
ウエット性能	100	102	104	110	97	100	110	94	108
転がり性能	100	102	103	103	106	102	96	95	96

[0129]

[表4]

表 4	実施例1	実施例2	実施例3	実施例4	実施例5	実施例6	実施例7	実施例8	実施例9	実施例10	実施例11	実施例12
共役ジエン系ゴム1	40			60	60	60	60	60	60	60	60	60
共役ジエン系ゴム2		40										
共役ジエン系ゴム3			80									
比較共役ジエン系ゴム												
E581	20	20	20	20	20	20	20	20	20	20	20	20
NS612	40	40		20	20	20	20	20	20	20	20	20
BR												
カーボンブラック	20	20	20	20	40	5	20	20	20	20	20	20
シリカ	120	120	120	120	90	150	120	120	120	120	120	120
テルペン系樹脂	35	35	35	35	35	35		35	52	75	26	26
C5/C9系樹脂							35				26	26
オイル	30	30	30	30	30	30	30	30	13		13	13
シランカップリング剤(Si69)	12	12	12	12	12	12	12	12	12	12	12	12
亜鉛華	2.5	2.5	2.5	2.5	2.5	2.5	2.5	2.5	2.5	2.5	2.5	2.5
ステアリン酸	2	2	2	2	2	2	2	2	2	2	2	2
老化防止剤	4	4	4	4	4	4	4	4	4	4	4	4
WAX	2	2	2	2	2	2	2	2	2	2	2	2
加硫促進剤(OZ)	2.4	2.4	2.4	2.4	2.4	2.4	2.4	2.4	2.4	2.4	2.4	2.4
加硫促進剤(TBzTD)								0.5				0.5
加硫促進剤(DPG)	2	2	2	2	2	2	2	1	2	2	2	1
硫黄	1.5	1.5	1.5	1.5	1.5	1.5	1.5	1.5	1.5	1.5	1.5	1.5
平均Tg[°C]	-55	-49	-65	-55	-55	-55	-55	-55	-55	-55	-55	-55
樹脂比率	54%	54%	54%	54%	54%	54%	54%	54%	80%	100%	80%	80%
耐熱タレ性	108	110	108	111	109	108	111	114	111	109	111	115
耐サーキット摩耗性	108	106	108	110	113	108	109	112	113	110	115	117
ウェット性能	105	108	103	106	103	111	105	106	116	119	118	118
転がり性能	104	104	106	106	103	106	104	107	104	102	106	107

[0130] 表3～4中の各成分の詳細は以下のとおりである。

- ・共役ジエン系ゴム1～3：上述のとおり合成した共役ジエン系ゴム1～3
- ・比較共役ジエン系ゴム：上述のとおり合成した比較共役ジエン系ゴム
- ・E581：旭化成社製E581（末端にヒドロキシ基を有する末端変性溶液重合SBR、 T_g ： -27°C ）（式（1）を満たさないため上述した特定共役ジエン系ゴムに該当しない）
- ・NS612：日本ゼオン社製NS612（溶液重合SBR、 T_g ： -60°C ）（式（1）を満たさないため上述した特定共役ジエン系ゴムに該当しない）
- ・BR：日本ゼオン社製Nipol BR1220（ブタジエンゴム、 T_g ： -106°C ）（特定変性基を有さないため上述した特定共役ジエン系ゴムに該当しない）
- ・カーボンブラック：東海カーボン社製シースト3（HAFカーボンブラック、窒素吸着比表面積（ N_2SA ）： $79\text{m}^2/\text{g}$ ）
- ・シリカ：Solvay社製ZEOSIL 1165MP（CTAB吸着比表面積： $160\text{m}^2/\text{g}$ ）
- ・テルペン系樹脂：ヤスハラケミカル社製YSレジンTO125（芳香族変性テルペン樹脂、軟化点： 125°C ）
- ・C5/C9系樹脂：Guangzhou Ecopower New Material社製HC-3100
- ・オイル：昭和シェル石油社製エキストラクト4号S
- ・シランカップリング剤（Si69）：Evonik社製Si69
- ・亜鉛華：亜鉛華3種（正同化学工業社製）
- ・ステアリン酸：ビーズステアリン酸YR（日本油脂社製）
- ・老化防止剤：ノクラック6C（大内新興化学工業社製）
- ・WAX：サンノック（大内振興化学工業社製）
- ・加硫促進剤（CZ）：三新化学工業社製サンセラーCM-G（スルフェンアミド系）

・加硫促進剤（TBZTD）：三新化学工業社製サンセラーTBZTD（チウラム系）

・加硫促進剤（DPG）：住友化学株式会社 ソクシノールD-G（グアニジン系）

・硫黄：四国化成工業社製ミュークロンOT-20

[0131] 表3～4中、「平均T_g」は、ゴム成分全体のガラス転移温度を表す。

また、表3～4中、「樹脂比率」は、上述した樹脂比率を表す。

[0132] 表3～4から分かるように、特定の量の特定共役ジエン系ゴムを含む平均T_gが特定の範囲のゴム成分と特定の量のシリカと特定の量の熱可塑性樹脂とを含有するとともに、樹脂比率が特定の範囲である実施例1～12はいずれも、優れた、耐熱ダレ性、耐サーキット摩耗性、ウェット性能及び転がり性能を示した。

実施例1～4の対比（ゴム成分の種類のみが異なる態様同士の対比）から、特定共役ジエン系ゴムのS_t+V_nが30以上である実施例1～2及び実施例4は、より優れたウェット性能を示した。なかでも、特定共役ジエン系ゴムのI_Vw_{10%}が4.5以上である実施例1及び実施例4は、より優れた耐サーキット摩耗性を示した。

また、実施例4～6の対比（カーボンブラック及びシリカの含有量のみが異なる態様同士の対比）から、ゴム成分100質量部に対するシリカの含有量が100質量部以上である実施例4及び実施例6は、より優れた、ウェット性能及び転がり性能を示した。

また、実施例4～6の対比（カーボンブラック及びシリカの含有量のみが異なる態様同士の対比）から、ゴム成分100質量部に対するシリカの含有量が140質量部以下である実施例4～5は、より優れた、耐熱ダレ性及び耐サーキット摩耗性を示した。

また、実施例4と実施例7との対比（熱可塑性樹脂の種類のみが異なる態様同士の対比）から、熱可塑性樹脂がテルペン系樹脂を含む実施例4は、より優れた、耐サーキット摩耗性、ウェット性能及び転がり性能を示した。

また、実施例 4 と実施例 8 との対比（加硫促進剤のみが異なる態様同士の対比）から、ゴム成分 100 質量部に対してチウラム系加硫促進剤 0.2 質量部以上 3.0 質量部以下を含有する実施例 8 は、より優れた、耐熱ダレ性、耐サーキット摩耗性及び転がり性能を示した。同様に、実施例 11 と実施例 12 との対比（加硫促進剤のみが異なる態様同士の対比）から、ゴム成分 100 質量部に対してチウラム系加硫促進剤 0.2 質量部以上 3.0 質量部以下を含有する実施例 12 は、より優れた、耐熱ダレ性、耐サーキット摩耗性及び転がり性能を示した。

また、実施例 4 と実施例 9 と実施例 10 との対比（樹脂比率が異なる態様同士の対比）から、樹脂比率が 60 質量%以上である実施例 9～10 は、より優れた、ウェット性能を示した。なかでも、樹脂比率が 90 質量%以下である実施例 9 は、より優れた、耐熱ダレ性、耐サーキット摩耗性及び転がり性能を示した。

また、実施例 9 と実施例 11 との対比（熱可塑性樹脂の種類のみが異なる態様同士の対比）から、熱可塑性樹脂がテルペン系樹脂及び C5/C9 系樹脂を含有する実施例 11 は、より優れた、耐サーキット摩耗性、ウェット性能及び転がり性能を示した。

[0133] 一方、特定共役ジエン系ゴムを含有しない標準例、特定共役ジエン系ゴムを含有するもののゴム成分中のその含有量が 25 質量%未満である比較例 1、特定共役ジエン系ゴムの代わりに特定共役ジエン系ゴム以外の変性ジエン系ゴムである比較共役ジエン系ゴムを含む比較例 2、ゴム成分の平均 T_g が -45℃を超える比較例 3、ゴム成分の平均 T_g が -80℃以下である比較例 4、ゴム成分 100 質量部に対する熱可塑性樹脂の含有量が 30 質量部に満たない比較例 5、ゴム成分 100 質量部に対する熱可塑性樹脂の含有量が 80 質量部以上である比較例 6、ゴム成分 100 質量部に対するシリカの含有量が 80 質量部に満たない比較例 7、及び、ゴム成分 100 質量部に対するシリカの含有量が 160 質量部を超える比較例 8 は、耐熱ダレ性、耐サーキット摩耗性、ウェット性能及び転がり性能のうち少なくとも 1 つが不十分

であった。

符号の説明

- [0134]
- 1 ビード部
 - 2 サイドウォール部
 - 3 タイヤトレッド部
 - 4 カーカス層
 - 5 ビードコア
 - 6 ビードフィラー
 - 7 ベルト層
 - 8 リムクッション

請求の範囲

[請求項1]

変性共役ジエン系ゴム（A 1）を含むゴム成分（A）と、シリカ（B）と、熱可塑性樹脂及びオイルからなる群より選択される少なくとも1種からなる軟化剤（C）とを含有し、

前記変性共役ジエン系ゴム（A 1）が、下記式（1）及び下記式（2）を満たし、且つ、窒素原子、ケイ素原子及びそれに隣接する酸素原子を含む変性基を有する、共役ジエン系ゴムであり、

前記ゴム成分（A）中の前記変性共役ジエン系ゴム（A 1）の割合が、25質量%以上であり、

前記ゴム成分（A）全体のガラス転移温度が、 -80°C 超 -45°C 以下であり、

前記ゴム成分（A）100質量部に対する前記シリカ（B）の含有量が、80質量部以上160質量部以下であり、

前記ゴム成分（A）100質量部に対する前記熱可塑性樹脂の含有量が、30質量部以上80質量部未満であり、

前記熱可塑性樹脂と前記オイルとの合計に対する前記熱可塑性樹脂の割合が、50質量%以上である、タイヤ用ゴム組成物。

$$|Vw_{10\%}| \leq 3.1 \times 10^{-6} \times Mw_{10\%} - 2.77 \quad (1)$$

$$St + Vn \leq 50 \quad (2)$$

式（1）中の $Mw_{10\%}$ 及び $|Vw_{10\%}|$ については以下のとおりである。

変性共役ジエン系ゴムについて示差屈折率検出器及び粘度検出器を検出器とするゲルパーミエーションクロマトグラフィー測定を行う。示差屈折率検出器によるクロマトグラムのピークのうち、ピーク全体の面積の10%の面積となる高分子量側の部分を用いて求められた重量平均分子量を $Mw_{10\%}$ とする。また、粘度検出器によるクロマトグラムのピークのうち、ピーク全体の面積の10%の面積となる高分子量側の部分を用いて求められた重量平均固有粘度を $|Vw_{10\%}|$ とする

。ただし、重量平均固有粘度の単位は dL/g である。

式(2)中、 S_t は、変性共役ジエン系ゴム全体に対するスチレンに由来する繰り返し単位の割合(質量%)を表し、 V_n は、変性共役ジエン系ゴム全体に対する共役ジエンに由来する1,2-ビニル構造の繰り返し単位の割合(質量%)を表す。

[請求項2] 前記変性共役ジエン系ゴム(A1)が、

3分岐以上の星形構造を有し、前記星形構造の少なくとも1つの分岐鎖がアルコキシシリル基又はハロシリル基を含むビニル系単量体に由来する部分を有し、

前記部分において、さらなる主鎖分岐構造を有する、請求項1に記載のタイヤ用ゴム組成物。

[請求項3] 前記熱可塑性樹脂が、テルペン系樹脂、C5/C9系樹脂、C9系樹脂、DCPD系樹脂、DCPD/C9系樹脂、水添C5/C9系樹脂、水添C9系樹脂、水添DCPD系樹脂、及び、水添DCPD/C9系樹脂からなる群より選択される少なくとも1種を含む、請求項1に記載のタイヤ用ゴム組成物。

[請求項4] さらに、前記ゴム成分(A)100質量部に対して、チウラム系加硫促進剤0.2質量部以上3.0質量部以下を含有する、請求項1に記載のタイヤ用ゴム組成物。

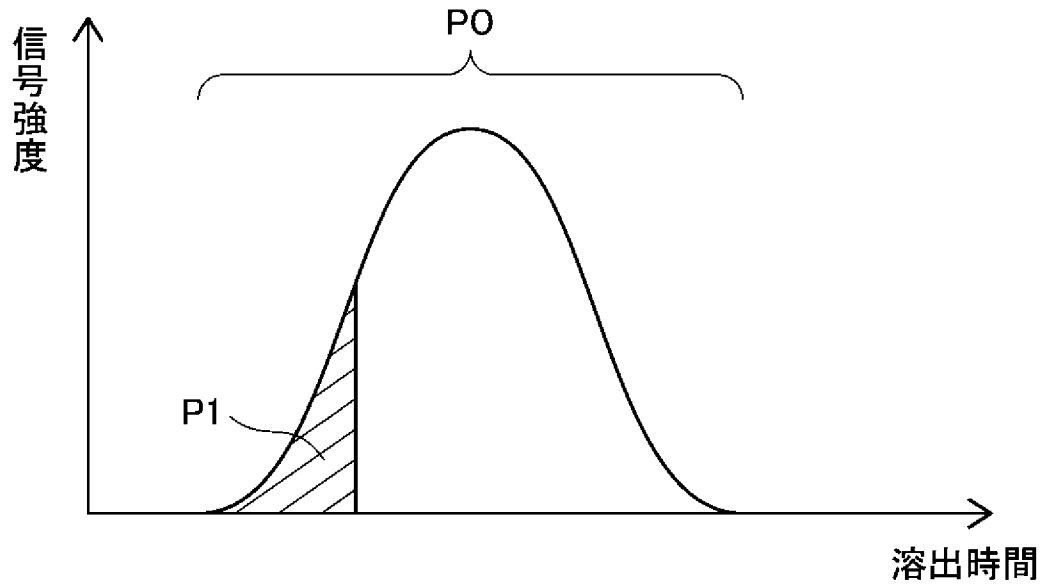
[請求項5] 前記ゴム成分(A)100質量部に対する前記熱可塑性樹脂の含有量が、50質量部以上80質量部未満であり、

前記熱可塑性樹脂と前記オイルとの合計に対する前記熱可塑性樹脂の割合が、80質量%以上である、請求項1に記載のタイヤ用ゴム組成物。

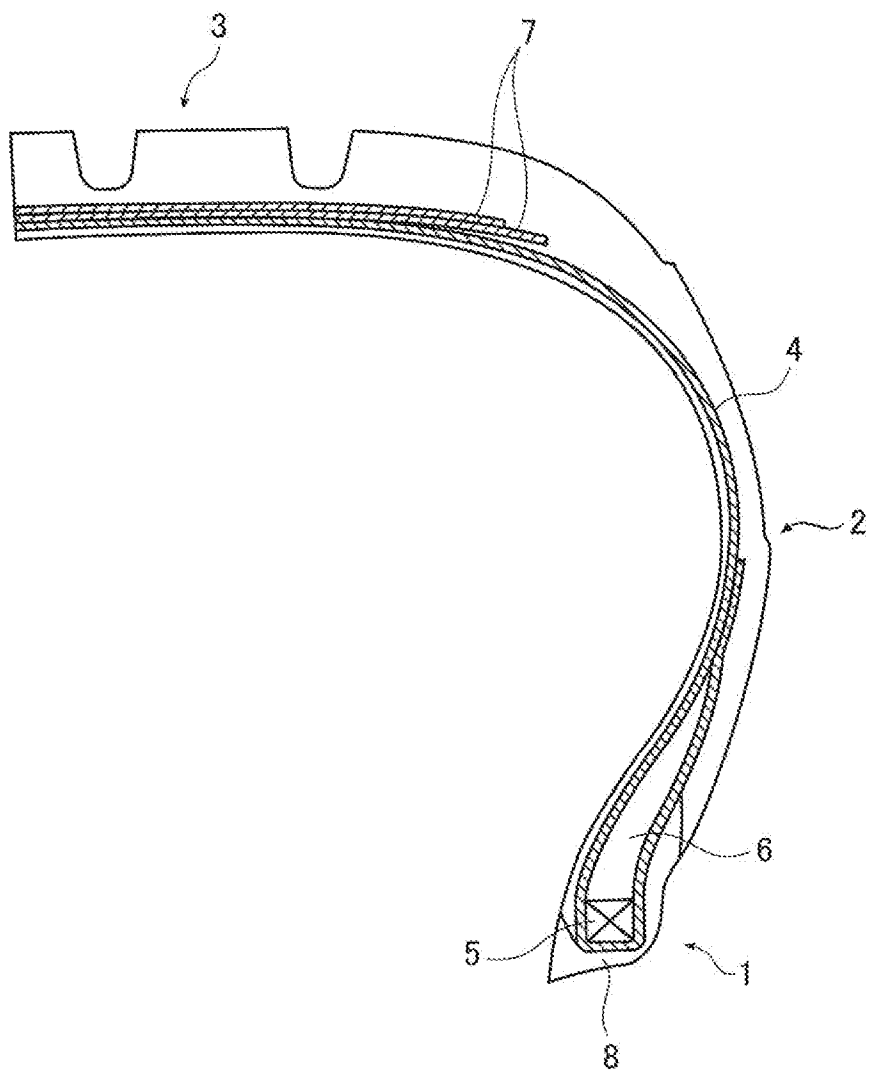
[請求項6] 前記軟化剤(C)が、熱可塑性樹脂を2種以上含む、請求項1に記載のタイヤ用ゴム組成物。

[請求項7] 請求項1～6のいずれか1項に記載のタイヤ用ゴム組成物を用いて製造された、タイヤ。

[図1]



[図2]



INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2024/023162

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER <i>C08L 15/00</i> (2006.01)i; <i>C08C 19/25</i> (2006.01)i; <i>C08C 19/28</i> (2006.01)i; <i>C08K 3/36</i> (2006.01)i; <i>C08K 5/36</i> (2006.01)i; <i>C08L 57/02</i> (2006.01)i; <i>C08L 91/00</i> (2006.01)i; <i>C08L 101/00</i> (2006.01)i FI: C08L15/00; C08K3/36; C08L101/00; C08L57/02; C08K5/36; C08C19/25; C08C19/28; C08L91/00 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) C08L15/00; C08C19/25; C08C19/28; C08K3/36; C08K5/36; C08L57/02; C08L91/00; C08L101/00 Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched Published examined utility model applications of Japan 1922-1996 Published unexamined utility model applications of Japan 1971-2024 Registered utility model specifications of Japan 1996-2024 Published registered utility model applications of Japan 1994-2024 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.
A	JP 2021-165370 A (ASAHI KASEI KABUSHIKI KAISHA) 14 October 2021 (2021-10-14)	1-7
A	WO 2018/164053 A1 (ASAHI KASEI KABUSHIKI KAISHA) 13 September 2018 (2018-09-13)	1-7
A	WO 2021/205932 A1 (ZS ELASTOMERS CO., LTD.) 14 October 2021 (2021-10-14)	1-7
A	JP 2023-085200 A (THE YOKOHAMA RUBBER CO., LTD.) 20 June 2023 (2023-06-20)	1-7
A	JP 2019-065238 A (THE YOKOHAMA RUBBER CO., LTD.) 25 April 2019 (2019-04-25)	1-7
☐ Further documents are listed in the continuation of Box C. ☒ See patent family annex.		
* Special categories of cited documents: “A” document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance “D” document cited by the applicant in the international application “E” earlier application or patent but published on or after the international filing date “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) “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 “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 “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 “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 “&” document member of the same patent family		
Date of the actual completion of the international search 13 August 2024		Date of mailing of the international search report 27 August 2024
Name and mailing address of the ISA/JP Japan Patent Office (ISA/JP) 3-4-3 Kasumigaseki, Chiyoda-ku, Tokyo 100-8915 Japan		Authorized officer Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT
Information on patent family members

International application No.
PCT/JP2024/023162

Patent document cited in search report			Publication date (day/month/year)	Patent family member(s)		Publication date (day/month/year)
JP	2021-165370	A	14 October 2021	US	2023/0159687	A1
				EP	4130050	A1
				CN	113493542	A
				KR	10-2021-0124053	A
				KR	10-2022-0143890	A
				CN	115348975	A
WO	2018/164053	A1	13 September 2018	US	2020/0031975	A1
				EP	3594251	A1
				KR	10-2019-0095481	A
				CN	110325556	A
				KR	10-2021-0066021	A
WO	2021/205932	A1	14 October 2021	US	2023/0130221	A1
				EP	4134244	A1
				CN	115362185	A
				KR	10-2022-0164705	A
JP	2023-085200	A	20 June 2023	(Family: none)		
JP	2019-065238	A	25 April 2019	(Family: none)		

A. 発明の属する分野の分類（国際特許分類（IPC））

C08L 15/00(2006.01)i; C08C 19/25(2006.01)i; C08C 19/28(2006.01)i; C08K 3/36(2006.01)i;
C08K 5/36(2006.01)i; C08L 57/02(2006.01)i; C08L 91/00(2006.01)i; C08L 101/00(2006.01)i
FI: C08L15/00; C08K3/36; C08L101/00; C08L57/02; C08K5/36; C08C19/25; C08C19/28; C08L91/00

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））

C08L15/00; C08C19/25; C08C19/28; C08K3/36; C08K5/36; C08L57/02; C08L91/00; C08L101/00

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 1971-2024年
日本国実用新案登録公報 1996-2024年
日本国登録実用新案公報 1994-2024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
A	JP 2021-165370 A（旭化成株式会社）14.10.2021（2021-10-14）	1-7
A	WO 2018/164053 A1（旭化成株式会社）13.09.2018（2018-09-13）	1-7
A	WO 2021/205932 A1（ZSエラストマー株式会社）14.10.2021（2021-10-14）	1-7
A	JP 2023-085200 A（横浜ゴム株式会社）20.06.2023（2023-06-20）	1-7
A	JP 2019-065238 A（横浜ゴム株式会社）25.04.2019（2019-04-25）	1-7

☐ 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
“A” 特に関連のある文献ではなく、一般的技术水準を示すもの
“D” 国際出願で出願人が先行技術文献として記載した文献
“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
“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）
“O” 口頭による開示、使用、展示等に言及する文献
“P” 国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願の日の後に公表された文献

“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抵触するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの
“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
“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
“&” 同一パテントファミリー文献

国際調査を完了した日
13.08.2024

国際調査報告の発送日
27.08.2024

名称及びあて先
日本国特許庁(ISA/JP)
〒100-8915
日本国
東京都千代田区霞が関三丁目4番3号

権限のある職員（特許庁審査官）

中落 臣諭 4W 1202

電話番号 03-3581-1101 内線 3457

国際調査報告
パテントファミリーに関する情報

国際出願番号

PCT/JP2024/023162

引用文献			公表日	パテントファミリー文献			公表日
JP	2021-165370	A	14.10.2021	US	2023/0159687	A1	
				EP	4130050	A1	
				CN	113493542	A	
				KR	10-2021-0124053	A	
				KR	10-2022-0143890	A	
				CN	115348975	A	

WO	2018/164053	A1	13.09.2018	US	2020/0031975	A1	
				EP	3594251	A1	
				KR	10-2019-0095481	A	
				CN	110325556	A	
				KR	10-2021-0066021	A	

WO	2021/205932	A1	14.10.2021	US	2023/0130221	A1	
				EP	4134244	A1	
				CN	115362185	A	
				KR	10-2022-0164705	A	

JP	2023-085200	A	20.06.2023	(ファミリーなし)			

JP	2019-065238	A	25.04.2019	(ファミリーなし)			
