(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
2019年10月10日(10.10.2019)

WIPO | PCT

(10) 国際公開番号
WO 2019/193888 A1

(51) 国際特許分類:
*C08L 15/00* (2006.01)
*B60C 1/00* (2006.01)
*C08K 3/013* (2018.01)
*C08K 3/04* (2006.01)
*C08K 3/36* (2006.01)
*C08K 5/54* (2006.01)
*C08L 9/00* (2006.01)
*C08L 9/06* (2006.01)
*C08L 71/00* (2006.01)

(21) 国際出願番号： PCT/JP2019/008263

(22) 国際出願日： 2019年3月4日(04.03.2019)

(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 2018-070910 | 2018年4月2日(02.04.2018) | JP |
| 特願 2018-070911 | 2018年4月2日(02.04.2018) | JP |
| 特願 2018-070912 | 2018年4月2日(02.04.2018) | JP |
| 特願 2018-070913 | 2018年4月2日(02.04.2018) | JP |
| 特願 2018-070914 | 2018年4月2日(02.04.2018) | JP |

(71) 出願人: 住友ゴム工業株式会社 (**SUMITOMO RUBBER INDUSTRIES, LTD.**) [JP/JP]; 〒6510072 兵庫県神戸市中央区脇浜町３丁目６番９号 Hyogo (JP).

(72) 発明者: 北王 彩加(**KITAOU, Ayaka**); 〒6510072 兵庫県神戸市中央区脇浜町３丁目６番９号 住友ゴム工業株式会社内 Hyogo (JP). 富崎 由佳理(**TOMISAKI, Yukari**); 〒6510072 兵庫県神戸市中央区脇浜町３丁目６番９号 住友ゴム工業株式会社内 Hyogo (JP). 三木 尚之(**MIKI, Naoyuki**); 〒6510072 兵庫県神戸市中央区脇浜町３丁目６番９号 住友ゴム工業株式会社内 Hyogo (JP). 中畑 祥子(**NAKAHATA, Shoko**); 〒6510072 兵庫県神戸市中央区脇浜町３丁目６番９号 住友ゴム工業株式会社内 Hyogo (JP).

(74) 代理人: 特許業務法人 安富国際特許事務所 (**YASUTOMI & Associates**); 〒5320003 大阪府大阪市淀川区宮原３丁目５番３６号 Osaka (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, JO, 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, ST, SV, SY, TH, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, 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, 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,

(54) **Title:** RUBBER COMPOSITION FOR TIRE, AND PNEUMATIC TIRE

(54) 発明の名称： タイヤ用ゴム組成物および空気入りタイヤ

(57) **Abstract:** The present invention provides a rubber composition having good silica dispersion and fuel-efficiency, and a pneumatic tire that is obtained using this composition. The present invention relates to a rubber composition for tires. The rubber composition comprises: a rubber component containing ≥ 30% by mass of styrene-butadiene rubber having an SiOR group (R is a hydrogen atom or hydrocarbon group); ≥50 mass parts of silica having a nitrogen adsorption specific area of ≥ 210 $m^2/g$ per 100 mass parts of the rubber component; and at least one surfactant selected from the group consisting of polyoxyalkylene alkenyl ether sulfate ester salts and polyoxyalkylene alkyl ether sulfate ester salts.

(57) 要約：本発明は、良好なシリカの分散性、低燃費性能を有するゴム組成物、及びこれを用いた空気入りタイヤを提供する。本発明は、ＳｉＯＲ基（Ｒは、水素原子又は炭化水素基）を有するスチレンブタジエンゴムを３０質量％以上含むゴム成分と、窒素吸着比表面積が２１０$m^2$／ｇ以上のシリカをゴム成分１００質量部に対して５０質量部以上と、ポリオキシアルキレンアルケニルエーテル硫酸エステル塩、ポリオキシアルキレンアルキルエーテル硫酸エステル塩からなる群より選択される少なくとも１種の界面活性剤とを含むタイヤ用ゴム組成物に関する。

WO 2019/193888 A1

［続葉有］

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)）

# 明　細　書

## 発明の名称 ： タイヤ用ゴム組成物および空気入りタイヤ

## 技術分野

[0001] 本発明は、タイヤ用ゴム組成物および空気入りタイヤに関する。

## 背景技術

[0002] 従来より、タイヤには良好な低燃費性能が要求されており、該要求を満たすために、充填剤として、シリカが使用されている。

[0003] 例えば、特許文献１には、シリカを含有することにより、低燃費性能を改善できることが開示されているが、まだ改善の余地があり、また他の技術の開発も望まれている。

## 先行技術文献

## 特許文献

[0004] 特許文献1：特開２００７－１７７２２１号公報

## 発明の概要

## 発明が解決しようとする課題

[0005] 本発明者は鋭意検討した結果、従来の技術ではシリカの分散性、低燃費性能に改善の余地があること、特に、シリカとして、窒素吸着比表面積の大きな微粒子シリカを用いた場合に、シリカの分散性、低燃費性能に改善の余地があることが判明した。

そこで、本発明は、良好なシリカの分散性、低燃費性能を有するゴム組成物、及びこれを用いた空気入り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] 第一の本発明は、ＳｉＯＲ基（Ｒは、水素原子又は炭化水素基）を有するスチレンブタジエンゴムを３０質量％以上含むゴム成分と、窒素吸着比表面積が２１０$m^2$／ｇ以上のシリカをゴム成分１００質量部に対して５０質量部以上と、ポリオキシアルキレンアルケニルエーテル硫酸エステル塩、ポリオキシアルキレンアルキルエーテル硫酸エステル塩からなる群より選択される少

なくとも１種の界面活性剤とを含むタイヤ用ゴム組成物に関する。

[0007] 上記界面活性剤の含有量Ｘ（質量部）と、シランカップリング剤の含有量Ｙ（質量部）の比率Ｘ／Ｙが０．０５～２０であることが好ましい。

[0008] 上記シリカの含有量Ｚ（質量部）と、上記界面活性剤の含有量Ｘ（質量部）と、シランカップリング剤の含有量Ｙ（質量部）の比率Ｚ／（Ｘ＋Ｙ）が３～３０であることが好ましい。

[0009] 上記界面活性剤が、ポリオキシアルキレンアルケニルエーテル硫酸エステル塩であることが好ましい。

[0010] 第一の本発明はまた、上記ゴム組成物を用いて作製したタイヤ部材を有する空気入りタイヤに関する。

[0011] 第二の本発明は、ＳｉＯＲ基（Ｒは、水素原子又は炭化水素基）を有するスチレンブタジエンゴムを３０質量％以上含み、ゴム成分１００質量％中のスチレンブタジエンゴムの合計含有量が７０～９０質量％、ブタジエンゴムの含有量が１０～３０質量％であるゴム成分と、窒素吸着比表面積が２１０$m^2$／ｇ以上のシリカをゴム成分１００質量部に対して５０質量部以上と、ポリオキシアルキレンアルケニルエーテル硫酸エステル塩、ポリオキシアルキレンアルキルエーテル硫酸エステル塩からなる群より選択される少なくとも１種の界面活性剤とを含むタイヤ用ゴム組成物に関する。

[0012] 上記界面活性剤の含有量Ｘ（質量部）と、シランカップリング剤の含有量Ｙ（質量部）の比率Ｘ／Ｙが０．０５～２０であることが好ましい。

[0013] 上記シリカの含有量Ｚ（質量部）と、上記界面活性剤の含有量Ｘ（質量部）と、シランカップリング剤の含有量Ｙ（質量部）の比率Ｚ／（Ｘ＋Ｙ）が３～３０であることが好ましい。

[0014] 上記界面活性剤が、ポリオキシアルキレンアルケニルエーテル硫酸エステル塩であることが好ましい。

[0015] 第二の本発明はまた、上記ゴム組成物を用いて作製したタイヤ部材を有する空気入りタイヤに関する。

[0016] 第三の本発明は、ＳｉＯＲ基（Ｒは、水素原子又は炭化水素基）を有するス

チレンブタジエンゴムを３０質量％以上含むゴム成分と、窒素吸着比表面積が２１０ｍ$^2$／ｇ以上のシリカをゴム成分１００質量部に対して７０～１３０質量部と、ポリオキシアルキレンアルケニルエーテル硫酸エステル塩、ポリオキシアルキレンアルキルエーテル硫酸エステル塩からなる群より選択される少なくとも１種の界面活性剤とを含むタイヤ用ゴム組成物に関する。

[0017] 上記界面活性剤の含有量Ｘ（質量部）と、シランカップリング剤の含有量Ｙ（質量部）の比率Ｘ／Ｙが０．０５～２０であることが好ましい。

[0018] 上記シリカの含有量Ｚ（質量部）と、上記界面活性剤の含有量Ｘ（質量部）と、シランカップリング剤の含有量Ｙ（質量部）の比率Ｚ／（Ｘ＋Ｙ）が３～３０であることが好ましい。

[0019] 上記界面活性剤が、ポリオキシアルキレンアルケニルエーテル硫酸エステル塩であることが好ましい。

[0020] 第三の本発明はまた、上記ゴム組成物を用いて作製したタイヤ部材を有する空気入りタイヤに関する。

[0021] 第四の本発明は、ＳｉＯＲ基（Ｒは、水素原子又は炭化水素基）を有するスチレンブタジエンゴムを３０質量％以上含むゴム成分と、窒素吸着比表面積が２１０ｍ$^2$／ｇ以上のシリカをゴム成分１００質量部に対して５０質量部以上と、ポリオキシアルキレンアルケニルエーテル硫酸エステル塩、ポリオキシアルキレンアルキルエーテル硫酸エステル塩からなる群より選択される少なくとも１種の界面活性剤とを含み、上記シリカと上記界面活性剤とが、同一の時期にゴムと混練りされる、タイヤ用ゴム組成物に関する。

[0022] 上記界面活性剤の含有量Ｘ（質量部）と、シランカップリング剤の含有量Ｙ（質量部）の比率Ｘ／Ｙが０．０５～２０であることが好ましい。

[0023] 上記シリカの含有量Ｚ（質量部）と、上記界面活性剤の含有量Ｘ（質量部）と、シランカップリング剤の含有量Ｙ（質量部）の比率Ｚ／（Ｘ＋Ｙ）が３～３０であることが好ましい。

[0024] 上記界面活性剤が、ポリオキシアルキレンアルケニルエーテル硫酸エステル塩であることが好ましい。

[0025] 第四の本発明はまた、上記ゴム組成物を用いて作製したタイヤ部材を有する空気入りタイヤに関する。

[0026] 第五の本発明は、ＳｉＯＲ基（Ｒは、水素原子又は炭化水素基）を有するスチレンブタジエンゴムを３０質量％以上含むゴム成分と、窒素吸着比表面積が２１０ｍ$^2$／ｇ以上のシリカをゴム成分１００質量部に対して５０質量部以上と、カーボンブラックをゴム成分１００質量部に対して２質量部以上と、ポリオキシアルキレンアルケニルエーテル硫酸エステル塩、ポリオキシアルキレンアルキルエーテル硫酸エステル塩からなる群より選択される少なくとも１種の界面活性剤とを含むタイヤ用ゴム組成物に関する。

[0027] 上記界面活性剤の含有量Ｘ（質量部）と、シランカップリング剤の含有量Ｙ（質量部）の比率Ｘ／Ｙが０．０５～２０であることが好ましい。

[0028] 上記シリカの含有量Ｚ（質量部）と、上記界面活性剤の含有量Ｘ（質量部）と、シランカップリング剤の含有量Ｙ（質量部）の比率Ｚ／（Ｘ＋Ｙ）が３～３０であることが好ましい。

[0029] 上記カーボンブラックの含有量Ａ（質量部）と、上記シリカの含有量Ｚ（質量部）の比率Ａ／Ｚが０．０１～１２０であることが好ましい。

[0030] 上記界面活性剤が、ポリオキシアルキレンアルケニルエーテル硫酸エステル塩であることが好ましい。

[0031] 第五の本発明はまた、上記ゴム組成物を用いて作製したタイヤ部材を有する空気入りタイヤに関する。

## 発明の効果

[0032] 第一の本発明によれば、ＳｉＯＲ基（Ｒは、水素原子又は炭化水素基）を有するスチレンブタジエンゴムを３０質量％以上含むゴム成分と、窒素吸着比表面積が２１０ｍ$^2$／ｇ以上のシリカをゴム成分１００質量部に対して５０質量部以上と、ポリオキシアルキレンアルケニルエーテル硫酸エステル塩、ポリオキシアルキレンアルキルエーテル硫酸エステル塩からなる群より選択される少なくとも１種の界面活性剤とを含むタイヤ用ゴム組成物であるので、良好なシリカの分散性、低燃費性能を有する。

[0033] 第二の本発明によれば、ＳｉＯＲ基（Ｒは、水素原子又は炭化水素基）を有するスチレンブタジエンゴムを３０質量％以上含み、ゴム成分１００質量％中のスチレンブタジエンゴムの合計含有量が７０～９０質量％、ブタジエンゴムの含有量が１０～３０質量％であるゴム成分と、窒素吸着比表面積が２１０ｍ$^2$／ｇ以上のシリカをゴム成分１００質量部に対して５０質量部以上と、ポリオキシアルキレンアルケニルエーテル硫酸エステル塩、ポリオキシアルキレンアルキルエーテル硫酸エステル塩からなる群より選択される少なくとも１種の界面活性剤とを含むタイヤ用ゴム組成物であるので、良好なシリカの分散性、低燃費性能を有する。

[0034] 第三の本発明によれば、ＳｉＯＲ基（Ｒは、水素原子又は炭化水素基）を有するスチレンブタジエンゴムを３０質量％以上含むゴム成分と、窒素吸着比表面積が２１０ｍ$^2$／ｇ以上のシリカをゴム成分１００質量部に対して７０～１３０質量部と、ポリオキシアルキレンアルケニルエーテル硫酸エステル塩、ポリオキシアルキレンアルキルエーテル硫酸エステル塩からなる群より選択される少なくとも１種の界面活性剤とを含むタイヤ用ゴム組成物であるので、良好なシリカの分散性、低燃費性能を有する。

[0035] 第四の本発明によれば、ＳｉＯＲ基（Ｒは、水素原子又は炭化水素基）を有するスチレンブタジエンゴムを３０質量％以上含むゴム成分と、窒素吸着比表面積が２１０ｍ$^2$／ｇ以上のシリカをゴム成分１００質量部に対して５０質量部以上と、ポリオキシアルキレンアルケニルエーテル硫酸エステル塩、ポリオキシアルキレンアルキルエーテル硫酸エステル塩からなる群より選択される少なくとも１種の界面活性剤とを含み、上記シリカと上記界面活性剤とが、同一の時期にゴムと混練りされる、タイヤ用ゴム組成物であるので、良好なシリカの分散性、低燃費性能を有する。

[0036] 第五の本発明によれば、ＳｉＯＲ基（Ｒは、水素原子又は炭化水素基）を有するスチレンブタジエンゴムを３０質量％以上含むゴム成分と、窒素吸着比表面積が２１０ｍ$^2$／ｇ以上のシリカをゴム成分１００質量部に対して５０質量部以上と、カーボンブラックをゴム成分１００質量部に対して２質量部以

上と、ポリオキシアルキレンアルケニルエーテル硫酸エステル塩、ポリオキシアルキレンアルキルエーテル硫酸エステル塩からなる群より選択される少なくとも１種の界面活性剤とを含むタイヤ用ゴム組成物であるので、良好なシリカの分散性、低燃費性能を有する。

## 発明を実施するための形態

[0037] （第一の本発明）

第一の本発明のタイヤ用ゴム組成物は、ＳｉＯＲ基（Ｒは、水素原子又は炭化水素基）を有するスチレンブタジエンゴムを３０質量％以上含むゴム成分と、窒素吸着比表面積が２１０ｍ$^2$／ｇ以上のシリカをゴム成分１００質量部に対して５０質量部以上と、ポリオキシアルキレンアルケニルエーテル硫酸エステル塩、ポリオキシアルキレンアルキルエーテル硫酸エステル塩からなる群より選択される少なくとも１種の界面活性剤とを含む。

[0038] 上記ゴム組成物によって良好なシリカの分散性、低燃費性能が得られる理由は必ずしも明らかではないが、以下のように推察される。

[0039] ＳｉＯＲ基を有するスチレンブタジエンゴム（変性ＳＢＲ）は、ＳｉＯＲ基がシリカ表面に存在する水酸基と相互作用することにより、シリカ同士の凝集を抑制でき、シリカの分散性を改善できる。更に、上記界面活性剤は、ポリオキシアルキレン部分の存在及び硫酸部分の存在により、親水性を呈するシリカ表面に好適に吸着し、分子末端に存在するアルケニル基やアルキル基によりシリカ表面を疎水化することにより、シリカ同士の凝集を抑制でき、シリカの分散性を改善できると共に、加硫促進剤のシリカへの吸着も防止できる。そして、上記変性ＳＢＲと上記界面活性剤とを併用することにより、シリカの分散性の改善が相乗的に進み、従来技術に比べてより良好なシリカの分散性、低燃費性能が得られる。これは、上記界面活性剤の存在により、シリカと上記変性ＳＢＲとの親和性が向上しているためと推測される。そして、この効果は、特に、窒素吸着比表面積が２１０ｍ$^2$／ｇ以上のシリカをゴム成分１００質量部に対して５０質量部以上と、微粒子シリカを比較的多量配合したゴム組成物において顕著に発揮される。これは、微粒子シリカはシ

リカの凝集力の強さに起因して凝集しやすいものの、上記変性ＳＢＲと上記界面活性剤とを併用することにより、微粒子シリカの分散性の改善が相乗的に進みやすく、分散性の改善効果が発揮されやすいためと推測される。

よって、本願発明では、窒素吸着比表面積が２１０ｍ$^2$／ｇ以上のシリカをゴム成分１００質量部に対して５０質量部以上と、微粒子シリカを比較的多量配合した場合であっても、良好なシリカの分散性、低燃費性能を有するゴム組成物を提供できるものと推察される。

また、本願発明では、良好なシリカの分散性、低燃費性能に加えて、良好な加工性能、耐摩耗性能、グリップ性能も得られる。

また、ＳｉＯＲ基（Ｒは、水素原子又は炭化水素基）を有するスチレンブタジエンゴムと、上記界面活性剤とを併用することにより、シリカの分散性、低燃費性能を相乗的に改善できる。

[0040] 上記ゴム組成物はゴム成分として、ＳｉＯＲ基（Ｒは、水素原子又は炭化水素基）を有するスチレンブタジエンゴム（変性ＳＢＲ）を含む。

[0041] 変性ＳＢＲとしては、ＳｉＯＲ基を有するＳＢＲであればよく、例えば、ＳＢＲの少なくとも一方の末端を、ＳｉＯＲ基を有する化合物（変性剤）で変性された末端変性ＳＢＲ（末端にＳｉＯＲ基を有する末端変性ＳＢＲ）や、主鎖にＳｉＯＲ基を有する主鎖変性ＳＢＲや、主鎖及び末端にＳｉＯＲ基を有する主鎖末端変性ＳＢＲ（例えば、主鎖にＳｉＯＲ基を有し、少なくとも一方の末端を上記変性剤で変性された主鎖末端変性ＳＢＲ）等が挙げられる。また、変性ＳＢＲは、更に、スズ化合物などの多官能化合物によりカップリングされていてもよい。これらは単独で用いてもよく、２種以上を組み合わせて用いてもよい。

[0042] Ｒの炭化水素基としては、直鎖状、分岐状、環状のいずれでもよく、脂肪族炭化水素基、脂環式炭化水素基、芳香族炭化水素基、これらの組み合わせ等が挙げられる。なかでも、脂肪族炭化水素基が好ましい。また、直鎖状が好ましい。炭化水素基の炭素数は、効果がより良好に得られるという理由から、好ましくは１以上であり、好ましくは２０以下、より好ましくは１２以下

、更に好ましくは６以下、特に好ましくは３以下である。

[0043] 脂肪族炭化水素基としては、炭素数１以上のものが好ましく、また、炭素数２０以下のものが好ましく、１２以下のものがより好ましく、６以下のものが更に好ましく、３以下のものが特に好ましい。好ましい例として、上記炭素数のアルキル基が挙げられ、具体的には、例えば、メチル基、エチル基、ｎ－プロピル基、イソプロピル基、ｎ－ブチル基、イソブチル基、ｓｅｃ－ブチル基、ｔｅｒｔ－ブチル基、ペンチル基、ヘキシル基、ヘプチル基、２－エチルヘキシル基、オクチル基、ノニル基、デシル基、ウンデシル基、ドデシル基、トリデシル基、テトラデシル基、ペンタデシル基、オクタデシル基等が挙げられる。なかでも、効果がより良好に得られるという理由から、メチル基、エチル基、ｎ－プロピル基、イソプロピル基が好ましく、メチル基、エチル基がより好ましい。

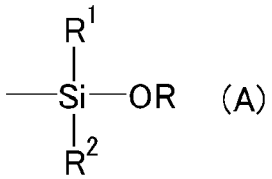
[0044] 脂環式炭化水素基としては、シクロプロピル基、シクロブチル基、シクロペンチル基、シクロヘキシル基、シクロヘプチル基、シクロオクチル基、シクロプロペニル基、シクロブテニル基、シクロペンテニル基、シクロヘキセニル基、シクロヘプテニル基、シクロオクテニル基等が挙げられる。

[0045] 芳香族炭化水素基としては、フェニル基、ベンジル基、フェネチル基、トリル（ｔｏｌｙｌ）基、キシリル（ｘｙｌｙｌ）基、ナフチル基等が挙げられる。なお、トリル基及びキシリル基におけるベンゼン環上のメチル基の置換位置は、オルト位、メタ位、パラ位のいずれの位置でもよい。

[0046] Ｒとしては、効果がより良好に得られるという理由から、水素原子、上記炭素数の脂肪族炭化水素基が好ましく、水素原子、上記炭素数のアルキル基がより好ましい。

[0047] ＳｉＯＲ基は、通常、下記式（Ａ）で表される基である。

[化1]




(A)

（式（Ａ）中、Ｒ$^{1}$及びＲ$^{2}$は、同一若しくは異なって、水素原子、炭化水素基、又はＯＲ基（Ｒは、水素原子又は炭化水素基）を表す。）

[0048] Ｒ$^{1}$及びＲ$^{2}$の炭化水素基は、Ｒの炭化水素基と同様の基が挙げられ、好適な態様も同様である。なお、ＯＲ基は、ＳｉＯＲ基で説明した基（ＳｉＯＲ基中のＯＲ基）と同様の基が挙げられ、好適な態様も同様である。

Ｒ$^{1}$及びＲ$^{2}$は、効果がより好適に得られるという理由から、共にＯＲ基であることが好ましい。すなわち、ＳｉＯＲ基は、Ｓｉ（ＯＲ）$_{3}$基であることが好ましい。

[0049] 変性ＳＢＲは、ＳｉＯＲ基に加えて、更に他の官能基を有していてもよい。上記官能基としては、例えば、アミノ基、アミド基、イソシアネート基、イミノ基、イミダゾール基、ウレア基、エーテル基、カルボニル基、オキシカルボニル基、メルカプト基、スルフィド基、ジスルフィド基、スルホニル基、スルフィニル基、チオカルボニル基、アンモニウム基、イミド基、ヒドラゾ基、アゾ基、ジアゾ基、カルボキシル基、ニトリル基、ピリジル基、アルコキシ基、水酸基、オキシ基、エポキシ基等が挙げられる。なお、これらの官能基は、置換基を有していてもよい。なかでも、効果がより好適に得られるという理由から、アミノ基（好ましくはアミノ基が有する水素原子が炭素数１～６のアルキル基に置換されたアミノ基）、アルコキシ基（好ましくは炭素数１～６のアルコキシ基）が好ましい。

[0050] 変性ＳＢＲとしては、乳化重合スチレンブタジエンゴム（Ｅ－ＳＢＲ）、溶液重合スチレンブタジエンゴム（Ｓ－ＳＢＲ）のいずれでもよい。これらは、単独で用いてもよく、２種以上を併用してもよい。

[0051] 変性ＳＢＲの重量平均分子量（Ｍｗ）は、好ましくは２０万以上であり、より好ましくは３０万以上、更に好ましくは５０万以上である。また、該Ｍｗの上限は特に限定されないが、好ましくは２００万以下、より好ましくは１５０万以下、更に好ましくは１００万以下である。上記範囲内であると、効果が良好に得られる傾向がある。

なお、本明細書において、ゴム成分の重量平均分子量（Ｍｗ）は、ゲルパー

ミエーションクロマトグラフィー（ＧＰＣ）（東ソー（株）製ＧＰＣ－８０００シリーズ、検出器：示差屈折計、カラム：東ソー（株）製のＴＳＫＧＥＬ　ＳＵＰＥＲＭＵＬＴＩＰＯＲＥ　ＨＺ－Ｍ）による測定値を基に標準ポリスチレン換算により求めることができる。

[0052] 変性ＳＢＲのスチレン量は、好ましくは１０質量％以上、より好ましくは１５質量％以上、更に好ましくは２０質量％以上である。また、該スチレン量は、好ましくは５０質量％以下、より好ましくは４０質量％以下、更に好ましくは３０質量％以下、特に好ましくは２５質量％以下である。上記範囲内であると、効果が良好に得られる傾向がある。

なお、本明細書において、ＳＢＲのスチレン量は、$H^1$－ＮＭＲ測定により算出される。

[0053] 変性ＳＢＲのビニル量は、好ましくは５質量％以上、より好ましくは１０質量％以上、更に好ましくは２０質量％以上、特に好ましくは３０質量％以上、最も好ましくは４０質量％以上である。また、該ビニル量は、好ましくは７０質量％以下、より好ましくは６０質量％以下である。上記範囲内であると、効果が良好に得られる傾向がある。

なお、本明細書において、ビニル量（１，２－結合ブタジエン単位量）は、赤外吸収スペクトル分析法によって測定できる。

[0054] 変性ＳＢＲとしては、例えば、住友化学（株）、ＪＳＲ（株）、旭化成（株）、日本ゼオン（株）、ダウ社等により製造・販売されているＳＢＲを使用できる。

[0055] ゴム成分１００質量％中の変性ＳＢＲの含有量は、３０質量％以上であり、好ましくは５０質量％以上、より好ましくは６０質量％以上であり、上限は１００質量％であってもよいが、他のゴムを含有する場合は、好ましくは９０質量％以下、より好ましくは８０質量％以下である。上記範囲内であると、効果が良好に得られる傾向がある。

[0056] 変性ＳＢＲ以外に上記ゴム組成物に使用できるゴム成分としては、上記変性ＳＢＲ以外のＳＢＲ、ブタジエンゴム（ＢＲ）、イソプレン系ゴム、アクリ

ロニトリルブタジエンゴム（ＮＢＲ）、クロロプレンゴム（ＣＲ）、ブチルゴム（ＩＩＲ）、スチレン－イソプレン－ブタジエン共重合ゴム（ＳＩＢＲ）等のジエン系ゴムが挙げられる。これらは単独で用いてもよく、２種以上を組み合わせて用いてもよい。

[0057] 上記変性ＳＢＲ以外のＳＢＲ（第２のＳＢＲ）としては、官能基を有さない非変性ＳＢＲが好ましい。

[0058] 第２のＳＢＲの好ましい重量平均分子量（Ｍｗ）、スチレン量、ビニル量は、変性ＳＢＲの好ましい重量平均分子量（Ｍｗ）、スチレン量、ビニル量と同様である。

[0059] 第２のＳＢＲとしては、例えば、住友化学（株）、ＪＳＲ（株）、旭化成（株）、日本ゼオン（株）、ダウ社等により製造・販売されているＳＢＲを使用できる。

[0060] ゴム成分１００質量％中のＳＢＲの合計含有量（変性ＳＢＲ及び第２のＳＢＲの合計含有量）は、好ましくは３０質量％以上であり、より好ましくは５０質量％以上、更に好ましくは７０質量％以上であり、上限は１００質量％であってもよいが、ＳＢＲ以外のゴムを含有する場合は、好ましくは９０質量％以下、より好ましくは８０質量％以下である。上記範囲内であると、効果が良好に得られる傾向がある。

[0061] ＢＲとしては特に限定されず、例えば、高シス含量のＢＲ、シンジオタクチックポリブタジエン結晶を含有するＢＲ、希土類元素系触媒を用いて合成されたブタジエンゴム（希土類系ＢＲ）等を使用できる。これらは単独で用いてもよく、２種以上を組み合わせて用いてもよい。なかでも、高シス含量のＢＲが好ましい。

[0062] ＢＲは、非変性ＢＲでもよいし、変性ＢＲでもよい。これらは単独で用いてもよく、２種以上を組み合わせて用いてもよい。

変性ＢＲとしては、上述の変性ＳＢＲと同様の官能基が導入された変性ＢＲが挙げられる。

[0063] ＢＲのシス含量は、好ましくは９０質量％以上、より好ましくは９３質量％

以上、更に好ましくは９５質量％以上である。下限以上にすることで、良好な耐摩耗性能が得られる傾向がある。

なお、本明細書においてゴム成分のシス含量は、赤外吸収スペクトル分析法によって測定できる。

[0064] ＢＲとしては、例えば、宇部興産（株）、ＪＳＲ（株）、旭化成（株）、日本ゼオン（株）、Ｌａｎｘｅｓｓ（株）等の製品を使用できる。

[0065] ゴム成分１００質量％中のＢＲの含有量は、好ましくは５質量％以上、より好ましくは１０質量％以上であり、好ましくは５０質量％以下、より好ましくは４０質量％以下、更に好ましくは３０質量％以下である。上記範囲内であると、効果が良好に得られる傾向がある。

[0066] ゴム成分１００質量％中のＳＢＲ（変性ＳＢＲ及び第２のＳＢＲ）、ＢＲの合計含有量は、好ましくは６０質量％以上、より好ましくは８０質量％以上、更に好ましくは９０質量％以上であり、１００質量％であってもよい。上記範囲内であると、効果が良好に得られる傾向がある。

[0067] イソプレン系ゴムとしては、天然ゴム（ＮＲ）、イソプレンゴム（ＩＲ）、改質ＮＲ、変性ＮＲ、変性ＩＲ等が挙げられる。ＮＲとしては、例えば、ＳＩＲ２０、ＲＳＳ＃３、ＴＳＲ２０等、タイヤ工業において一般的なものを使用できる。ＩＲとしては、特に限定されず、例えば、ＩＲ２２００等、タイヤ工業において一般的なものを使用できる。改質ＮＲとしては、脱タンパク質天然ゴム（ＤＰＮＲ）、高純度天然ゴム（ＵＰＮＲ）等、変性ＮＲとしては、エポキシ化天然ゴム（ＥＮＲ）、水素添加天然ゴム（ＨＮＲ）、グラフト化天然ゴム等、変性ＩＲとしては、エポキシ化イソプレンゴム、水素添加イソプレンゴム、グラフト化イソプレンゴム等、が挙げられる。これらは、単独で用いてもよく、２種以上を併用してもよい。ゴム成分１００質量％中のイソプレン系ゴムの含有量は、効果を阻害しない範囲であれば特に限定されず、好ましくは５質量％以上であり、好ましくは２０質量％以下である。

[0068] 上記ゴム組成物は窒素吸着比表面積が２１０ｍ$^2$／ｇ以上のシリカをゴム成分

１００質量部に対して５０質量部以上含む。

シリカとしては、例えば、乾式法シリカ（無水ケイ酸）、湿式法シリカ（含水ケイ酸）等が挙げられるが、シラノール基が多いという理由から、湿式法シリカが好ましい。これらは単独で用いてもよく、２種以上を組み合わせて用いてもよい。

[0069] 上記シリカの窒素吸着比表面積（$N_2SA$）は、２２０$m^2$／ｇ以上が好ましく、２３０$m^2$／ｇ以上がより好ましく、２４０$m^2$／ｇ以上が更に好ましい。また、該$N_2SA$は、３００$m^2$／ｇ以下が好ましく、２７０$m^2$／ｇ以下がより好ましい。上記範囲内であると、効果が良好に得られる傾向がある。

なお、シリカの窒素吸着比表面積は、ＡＳＴＭ　Ｄ３０３７－８１に準じてＢＥＴ法で測定される値である。

[0070] 上記シリカとしては、例えば、デグッサ社、ローディア社、東ソー・シリカ（株）、ソルベイジャパン（株）、（株）トクヤマ等の製品を使用できる。

[0071] 上記シリカの含有量は、ゴム成分１００質量部に対して、５０質量部以上であり、好ましくは６０質量部以上、より好ましくは７０質量部以上である。また、該含有量は、好ましくは１５０質量部以下、より好ましくは１３０質量部以下、更に好ましくは１２０質量部以下、特に好ましくは１００質量部以下である。上記範囲内であると、効果が良好に得られる傾向がある。

[0072] 上記ゴム組成物は上記シリカと共に、上記シリカ以外のシリカ（第２のシリカ）を配合してもよい。この場合、シリカの合計含有量は、上記シリカを単独で用いる場合の含有量と同様の量とすればよい。

[0073] 上記ゴム組成物は、ポリオキシアルキレンアルケニルエーテル硫酸エステル塩、ポリオキシアルキレンアルキルエーテル硫酸エステル塩からなる群より選択される少なくとも１種の界面活性剤を含む。これらは、単独で用いてもよく、２種以上を併用してもよい。

[0074] 上記界面活性剤は、エチレンオキサイド構造及び／又はプロピレンオキサイド構造を有することが好ましい。親水基として、エチレンオキサイド構造及び／又はプロピレンオキサイド構造を有するものは、シリカとの親和性を高

めることができ、効果がより好適に得られる。なかでも、エチレンオキサイド構造を有するものが好ましい。また、エチレンオキサイド構造及び／又はプロピレンオキサイド構造を有する場合、エチレンオキサイド（ＥＯ）及びプロピレンオキサイド（ＰＯ）の平均付加モル数（ＥＯ及びＰＯの平均付加モル数の合計）が１０以上であることが好ましく、１３以上であることがより好ましい。また、該平均付加モル数は、好ましくは８０以下、より好ましくは６０以下、更に好ましくは４０以下である。この場合、シリカとの親和性がより高められ、効果がより好適に得られる。

[0075] また、ポリオキシアルキレンアルケニルエーテル硫酸エステル塩におけるアルケニル基の炭素数、ポリオキシアルキレンアルキルエーテル硫酸エステル塩におけるアルキル基の炭素数は、８以上であることが好ましく、１０以上であることがより好ましい。また、該炭素数は、好ましくは２０以下、より好ましくは１８以下、更に好ましくは１５以下である。この場合、シリカの分散性がより高められ、効果がより好適に得られる。

[0076] 上記界面活性剤の塩形態としては、特に限定されず、カリウム、ナトリウム等のアルカリ金属の塩；マグネシウム、カルシウム等のアルカリ土類金属の塩；モノエタノールアミン、ジエタノールアミン、トリエタノールアミン等のアミン類の塩；アンモニウム塩等が挙げられる。なかでも、効果がより好適に得られるという理由から、アルカリ金属塩、アンモニウム塩が好ましく、ナトリウム塩、アンモニウム塩がより好ましい。

[0077] 上記界面活性剤のＨＬＢ値（グリフィン法で算出）は、好ましくは１２以上、より好ましくは１３以上である。また、該ＨＬＢ値は、好ましくは１９以下、より好ましくは１７以下である。上記範囲内であると、効果が良好に得られる傾向がある。

[0078] ポリオキシアルキレンアルケニルエーテル硫酸エステル塩、ポリオキシアルキレンアルキルエーテル硫酸エステル塩としては、ポリオキシアルキレンアルケニルエーテル硫酸エステル塩が好ましい。

[0079] ポリオキシアルキレンアルケニルエーテル硫酸エステル塩としては、ポリオ

キシエチレンアルケニルエーテル硫酸エステル塩が好ましく、ポリオキシエチレンアルケニルエーテル硫酸アンモニウムがより好ましい。

[0080] ポリオキシアルキレンアルキルエーテル硫酸エステル塩としては、ポリオキシエチレンアルキルエーテル硫酸エステル塩が好ましく、ポリオキシエチレンアルキルエーテル硫酸ナトリウムがより好ましい。

[0081] 上記界面活性剤としては、例えば、花王（株）、ライオン（株）、ライオン・スペシャリティ・ケミカルズ（株）等の製品を使用できる。

[0082] 上記界面活性剤の含有量は、ゴム成分１００質量部に対して、好ましくは０．５質量部以上、より好ましくは１質量部以上、更に好ましくは２質量部以上である。また、該含有量は、好ましくは３０質量部以下、より好ましくは２０質量部以下、更に好ましくは１０質量部以下である。上記範囲内であると、効果が良好に得られる傾向がある。

[0083] 上記ゴム組成物は上記界面活性剤と共に、上記界面活性剤以外の界面活性剤（第２の界面活性剤）を配合してもよい。この場合、界面活性剤の合計含有量は、上記界面活性剤を単独で用いる場合の含有量と同様の量とすればよい。

[0084] 上記ゴム組成物は、更にシランカップリング剤を含有することが好ましい。シランカップリング剤としては、特に限定されず、例えば、ビス（３－トリエトキシシリルプロピルジスルフィド）、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（２－トリエトキシシリルエチル）テトラスルフィド、ビス（４－トリエトキシシリルブチル）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、ビス（２－トリエトキシシリルエチル）トリスルフィド、ビス（４－トリメトキシシリルブチル）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）ジスルフィド、ビス（４－トリエトキシシリルブチル）ジスルフィド、ビス（３－トリメトキシシリルプロピル）ジスルフィド、ビス（２－トリメトキシシリルエチル）ジスルフィド、ビス（４－

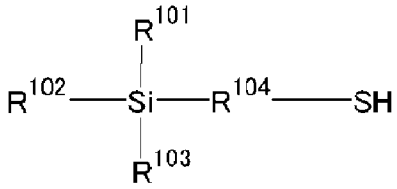
トリメトキシシリルブチル）ジスルフィド、３－トリメトキシシリルプロピル－Ｎ，Ｎ－ジメチルチオカルバモイルテトラスルフィド、２－トリエトキシシリルエチル－Ｎ，Ｎ－ジメチルチオカルバモイルテトラスルフィド、３－トリエトキシシリルプロピルメタクリレートモノスルフィド、などのスルフィド系、３－メルカプトプロピルトリメトキシシラン、２－メルカプトエチルトリエトキシシラン、Ｍｏｍｅｎｔｉｖｅ社製のＮＸＴ、ＮＸＴ－Ｚなどのメルカプト系、ビニルトリエトキシシラン、ビニルトリメトキシシランなどのビニル系、３－アミノプロピルトリエトキシシラン、３－アミノプロピルトリメトキシシランなどのアミノ系、γ－グリシドキシプロピルトリエトキシシラン、γ－グリシドキシプロピルトリメトキシシラン、などのグリシドキシ系、３－ニトロプロピルトリメトキシシラン、３－ニトロプロピルトリエトキシシランなどのニトロ系、３－クロロプロピルトリメトキシシラン、３－クロロプロピルトリエトキシシランなどのクロロ系などがあげられる。これらは、単独で用いてもよく、２種以上を併用してもよい。なかでも、効果が良好に得られる傾向がある点から、スルフィド系シランカップリング剤、メルカプト系シランカップリング剤が好ましく、メルカプト系シランカップリング剤がより好ましい。

なお、本明細書において、メルカプト系シランカップリング剤とは、メルカプト基（－ＳＨ）を有するシランカップリング剤に限定されず、メルカプト基の誘導体基（例えば、カルボニルチオ基（－Ｓ－Ｃ（＝Ｏ）－））を有するシランカップリング剤をも含む概念である。ここで、メルカプト基の誘導体基とは、メルカプト基（－ＳＨ）から合成反応により直接誘導される基に限定されず、メルカプト基（－ＳＨ）の水素原子が他の原子または原子団に置換された構造を有する基をも含む概念である。

[0085] メルカプト系シランカップリング剤としては、メルカプト基（－ＳＨ）を有するシランカップリング剤が好ましく、下記式（１）で表される化合物、及び／又は下記式（２）で示される結合単位Ａと下記式（３）で示される結合単位Ｂとを含む化合物がより好ましく、下記式（２）で示される結合単位Ａ

と下記式（３）で示される結合単位Ｂとを含む化合物が更に好ましい。これにより、効果がより好適に得られる。

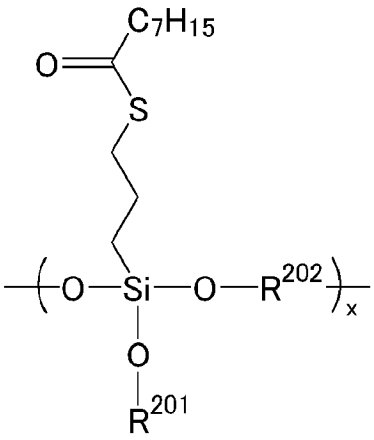
[化2]



(1)

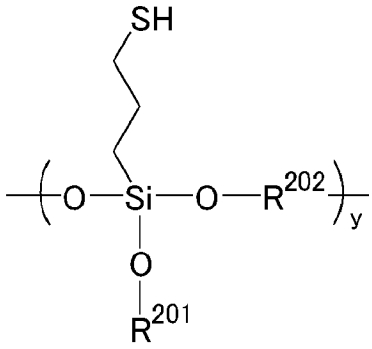
（式（１）中、Ｒ$^{101}$～Ｒ$^{103}$は、分岐若しくは非分岐の炭素数１～１２のアルキル基、分岐若しくは非分岐の炭素数１～１２のアルコキシ基、又は－Ｏ－（Ｒ$^{111}$－Ｏ）$_z$－Ｒ$^{112}$（ｚ個のＲ$^{111}$は、分岐若しくは非分岐の炭素数１～３０の２価の炭化水素基を表す。ｚ個のＲ$^{111}$はそれぞれ同一でも異なっていてもよい。Ｒ$^{112}$は、分岐若しくは非分岐の炭素数１～３０のアルキル基、分岐若しくは非分岐の炭素数２～３０のアルケニル基、炭素数６～３０のアリール基、又は炭素数７～３０のアラルキル基を表す。ｚは１～３０の整数を表す。）で表される基を表す。Ｒ$^{101}$～Ｒ$^{103}$はそれぞれ同一でも異なっていてもよい。Ｒ$^{104}$は、分岐若しくは非分岐の炭素数１～６のアルキレン基を表す。）

[化3]



(2)

[化4]



(3)

（式（２）及び（３）中、ｘは０以上の整数、ｙは１以上の整数である。Ｒ$^{201}$は水素、ハロゲン、分岐若しくは非分岐の炭素数１～３０のアルキル基、分岐若しくは非分岐の炭素数２～３０のアルケニル基、分岐若しくは非分岐の炭素数２～３０のアルキニル基、又は該アルキル基の末端の水素が水酸基若しくはカルボキシル基で置換されたものを表す。Ｒ$^{202}$は分岐若しくは非分岐の炭素数１～３０のアルキレン基、分岐若しくは非分岐の炭素数２～３０のアルケニレン基、又は分岐若しくは非分岐の炭素数２～３０のアルキニレン基を表す。Ｒ$^{201}$とＲ$^{202}$とで環構造を形成してもよい。）

[0086] 以下、式（１）で表される化合物について説明する。

[0087] 式（１）で表される化合物を使用することで、シリカが良好に分散し、効果がより良好に得られる。

[0088] Ｒ$^{101}$～Ｒ$^{103}$は、分岐若しくは非分岐の炭素数１～１２のアルキル基、分岐若しくは非分岐の炭素数１～１２のアルコキシ基、又は－Ｏ－（Ｒ$^{111}$－Ｏ）$_{z}$－Ｒ$^{112}$で表される基を表す。効果が良好に得られるという点から、Ｒ$^{101}$～Ｒ$^{103}$は、少なくとも１つが－Ｏ－（Ｒ$^{111}$－Ｏ）$_{z}$－Ｒ$^{112}$で表される基であることが好ましく、２つが－Ｏ－（Ｒ$^{111}$－Ｏ）$_{z}$－Ｒ$^{112}$で表される基であり、かつ、１つが分岐若しくは非分岐の炭素数１～１２のアルコキシ基であることがより好ましい。

[0089] Ｒ$^{101}$～Ｒ$^{103}$の分岐若しくは非分岐の炭素数１～１２のアルキル基としては、例えば、メチル基、エチル基、ｎ－プロピル基、イソプロピル基、ｎ－ブチル基、ｉｓｏ－ブチル基、ｓｅｃ－ブチル基、ｔｅｒｔ－ブチル基、ペン

チル基、ヘキシル基、ヘプチル基、２－エチルヘキシル基、オクチル基、ノニル基などがあげられる。

炭素数の上限は、好ましくは５である。

[0090] $R^{101}$～$R^{103}$の分岐若しくは非分岐の炭素数１～１２のアルコキシ基としては、例えば、メトキシ基、エトシキ基、ｎ－プロポキシ基、イソプロポキシ基、ｎ－ブトキシ基、ｉｓｏ－ブトキシ基、ｓｅｃ－ブトシキ基、ｔｅｒｔ－ブトシキ基、ペンチルオキシ基、ヘキシルオキシ基、ヘプチルオキシ基、２－エチルヘキシルオキシ基、オクチルオキシ基、ノニルオキシ基などがあげられる。

炭素数の上限は、好ましくは５である。

[0091] $R^{101}$～$R^{103}$の－Ｏ－（$R^{111}$－Ｏ）$_z$－$R^{112}$において、$R^{111}$は、分岐若しくは非分岐の炭素数１～３０（好ましくは炭素数１～１５、より好ましくは炭素数１～３）の２価の炭化水素基を表す。

該炭化水素基としては、例えば、分岐若しくは非分岐の炭素数１～３０のアルキレン基、分岐若しくは非分岐の炭素数２～３０のアルケニレン基、分岐若しくは非分岐の炭素数２～３０のアルキニレン基、炭素数６～３０のアリーレン基などがあげられる。中でも、分岐若しくは非分岐の炭素数１～３０のアルキレン基が好ましい。

[0092] $R^{111}$の分岐若しくは非分岐の炭素数１～３０のアルキレン基としては、例えば、メチレン基、エチレン基、プロピレン基、ブチレン基、ペンチレン基、ヘキシレン基、ヘプチレン基、オクチレン基、ノニレン基、デシレン基、ウンデシレン基、ドデシレン基、トリデシレン基、テトラデシレン基、ペンタデシレン基、ヘキサデシレン基、ヘプタデシレン基、オクタデシレン基などがあげられる。

炭素数の上限は、好ましくは１５、より好ましくは３である。

[0093] $R^{111}$の分岐若しくは非分岐の炭素数２～３０のアルケニレン基としては、例えば、ビニレン基、１－プロペニレン基、２－プロペニレン基、１－ブテニレン基、２－ブテニレン基、１－ペンテニレン基、２－ペンテニレン基、１

－ヘキセニレン基、２－ヘキセニレン基、１－オクテニレン基などがあげられる。

炭素数の上限は、好ましくは１５、より好ましくは３である。

[0094] Ｒ$^{111}$の分岐若しくは非分岐の炭素数２～３０のアルキニレン基としては、例えば、エチニレン基、プロピニレン基、ブチニレン基、ペンチニレン基、ヘキシニレン基、ヘプチニレン基、オクチニレン基、ノニニレン基、デシニレン基、ウンデシニレン基、ドデシニレン基などがあげられる。

炭素数の上限は、好ましくは１５、より好ましくは３である。

[0095] Ｒ$^{111}$の炭素数６～３０のアリーレン基としては、例えば、フェニレン基、トリレン基、キシリレン基、ナフチレン基などがあげられる。

炭素数の上限は、好ましくは炭素数１５である。

[0096] ｚは１～３０の整数を表す。下限は、好ましくは２、より好ましくは３、さらに好ましくは５であり、上限は、好ましくは２０、より好ましくは７、さらに好ましくは６である。

[0097] Ｒ$^{112}$は、分岐若しくは非分岐の炭素数１～３０のアルキル基、分岐若しくは非分岐の炭素数２～３０のアルケニル基、炭素数６～３０のアリール基又は炭素数７～３０のアラルキル基を表す。中でも、分岐若しくは非分岐の炭素数１～３０のアルキル基が好ましい。

[0098] Ｒ$^{112}$の分岐若しくは非分岐の炭素数１～３０のアルキル基としては、例えば、メチル基、エチル基、ｎ－プロピル基、イソプロピル基、ｎ－ブチル基、ｉｓｏ－ブチル基、ｓｅｃ－ブチル基、ｔｅｒｔ－ブチル基、ペンチル基、ヘキシル基、ヘプチル基、２－エチルヘキシル基、オクチル基、ノニル基、デシル基、ウンデシル基、ドデシル基、トリデシル基、テトラデシル基、ペンタデシル基、オクタデシル基などがあげられる。

炭素数の下限は、好ましくは３、より好ましくは１０であり、炭素数の上限は、好ましくは２５、より好ましくは１５である。

[0099] Ｒ$^{112}$の分岐若しくは非分岐の炭素数２～３０のアルケニル基としては、例えば、ビニル基、１－プロペニル基、２－プロペニル基、１－ブテニル基、２

－ブテニル基、１－ペンテニル基、２－ペンテニル基、１－ヘキセニル基、２－ヘキセニル基、１－オクテニル基、デセニル基、ウンデセニル基、ドデセニル基、トリデセニル基、テトラデセニル基、ペンタデセニル基、オクタデセニル基などがあげられる。

炭素数の下限は、好ましくは３、より好ましくは１０であり、炭素数の上限は、好ましくは２５、より好ましくは１５である。

[0100] $R^{112}$の炭素数６～３０のアリール基としては、例えば、フェニル基、トリル基、キシリル基、ナフチル基、ビフェニル基などがあげられる。

炭素数の下限は、好ましくは１０であり、炭素数の上限は、好ましくは２０である。

[0101] $R^{112}$の炭素数７～３０のアラルキル基としては、ベンジル基、フェネチル基などがあげられる。

炭素数の下限は、好ましくは炭素数１０であり、炭素数の上限は、好ましくは２０である。

[0102] －Ｏ－（$R^{111}$－Ｏ）$_z$－$R^{112}$で表される基の具体例としては、例えば、－Ｏ－（$C_2H_4$－Ｏ）$_5$－$C_{11}H_{23}$、－Ｏ－（$C_2H_4$－Ｏ）$_5$－$C_{12}H_{25}$、－Ｏ－（$C_2H_4$－Ｏ）$_5$－$C_{13}H_{27}$、－Ｏ－（$C_2H_4$－Ｏ）$_5$－$C_{14}H_{29}$、－Ｏ－（$C_2H_4$－Ｏ）$_5$－$C_{15}H_{31}$、－Ｏ－（$C_2H_4$－Ｏ）$_3$－$C_{13}H_{27}$、－Ｏ－（$C_2H_4$－Ｏ）$_4$－$C_{13}H_{27}$、－Ｏ－（$C_2H_4$－Ｏ）$_6$－$C_{13}H_{27}$、－Ｏ－（$C_2H_4$－Ｏ）$_7$－$C_{13}H_{27}$などがあげられる。中でも、－Ｏ－（$C_2H_4$－Ｏ）$_5$－$C_{11}H_{23}$、－Ｏ－（$C_2H_4$－Ｏ）$_5$－$C_{13}H_{27}$、－Ｏ－（$C_2H_4$－Ｏ）$_5$－$C_{15}H_{31}$、－Ｏ－（$C_2H_4$－Ｏ）$_6$－$C_{13}H_{27}$が好ましい。

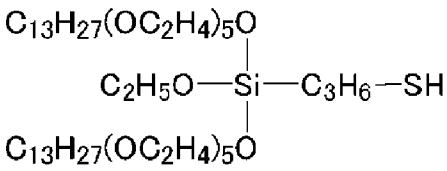
[0103] $R^{104}$の分岐若しくは非分岐の炭素数１～６のアルキレン基としては、例えば、$R^{111}$の分岐若しくは非分岐の炭素数１～３０のアルキレン基と同様の基をあげることができる。

炭素数の上限は、好ましくは５である。

[0104] 上記式（１）で表される化合物としては、例えば、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や、下記式で表される化合物（ＥＶＯＮＩＫ－ＤＥＧＵＳＳＡ社製のＳｉ３６３）などがあげられ、下記式で表される化合物を好適に使用できる。これらは、単独で用いてもよく、２種以上を併用してもよい。

[化5]



[0105] 次に、式（２）で示される結合単位Ａと式（３）で示される結合単位Ｂとを含む化合物について説明する。

[0106] 効果がより良好に得られるという理由から、上記構造のシランカップリング剤において、結合単位Ａの含有量は、好ましくは３０モル％以上、より好ましくは５０モル％以上であり、好ましくは９９モル％以下、より好ましくは９０モル％以下である。また、結合単位Ｂの含有量は、好ましくは１モル％以上、より好ましくは５モル％以上、さらに好ましくは１０モル％以上であり、好ましくは７０モル％以下、より好ましくは６５モル％以下、さらに好ましくは５５モル％以下である。また、結合単位Ａ及びＢの合計含有量は、好ましくは９５モル％以上、より好ましくは９８モル％以上、特に好ましくは１００モル％である。

なお、結合単位Ａ、Ｂの含有量は、結合単位Ａ、Ｂがシランカップリング剤の末端に位置する場合も含む量である。結合単位Ａ、Ｂがシランカップリング剤の末端に位置する場合の形態は特に限定されず、結合単位Ａ、Ｂを示す式（２）、（３）と対応するユニットを形成していればよい。

[0107] $R^{201}$のハロゲンとしては、塩素、臭素、フッ素などがあげられる。

[0108] $R^{201}$の分岐若しくは非分岐の炭素数１～３０のアルキル基としては、メチル基、エチル基、ｎ－プロピル基、イソプロピル基、ｎ－ブチル基、ｉｓｏ－ブチル基、ｓｅｃ－ブチル基、ｔｅｒｔ－ブチル基、ペンチル基、ヘキシル基、ヘプチル基、２－エチルヘキシル基、オクチル基、ノニル基、デシル基

などがあげられる。該アルキル基の炭素数は、好ましくは１～１２である。

[0109] Ｒ$^{201}$の分岐若しくは非分岐の炭素数２～３０のアルケニル基としては、ビニル基、１－プロペニル基、２－プロペニル基、１－ブテニル基、２－ブテニル基、１－ペンテニル基、２－ペンテニル基、１－ヘキセニル基、２－ヘキセニル基、１－オクテニル基などがあげられる。該アルケニル基の炭素数は、好ましくは２～１２である。

[0110] Ｒ$^{201}$の分岐若しくは非分岐の炭素数２～３０のアルキニル基としては、エチニル基、プロピニル基、ブチニル基、ペンチニル基、ヘキシニル基、ヘプチニル基、オクチニル基、ノニニル基、デシニル基、ウンデシニル基、ドデシニル基などがあげられる。該アルキニル基の炭素数は、好ましくは２～１２である。

[0111] Ｒ$^{202}$の分岐若しくは非分岐の炭素数１～３０のアルキレン基としては、エチレン基、プロピレン基、ブチレン基、ペンチレン基、ヘキシレン基、ヘプチレン基、オクチレン基、ノニレン基、デシレン基、ウンデシレン基、ドデシレン基、トリデシレン基、テトラデシレン基、ペンタデシレン基、ヘキサデシレン基、ヘプタデシレン基、オクタデシレン基などがあげられる。該アルキレン基の炭素数は、好ましくは１～１２である。

[0112] Ｒ$^{202}$の分岐若しくは非分岐の炭素数２～３０のアルケニレン基としては、ビニレン基、１－プロペニレン基、２－プロペニレン基、１－ブテニレン基、２－ブテニレン基、１－ペンテニレン基、２－ペンテニレン基、１－ヘキセニレン基、２－ヘキセニレン基、１－オクテニレン基などがあげられる。該アルケニレン基の炭素数は、好ましくは２～１２である。

[0113] Ｒ$^{202}$の分岐若しくは非分岐の炭素数２～３０のアルキニレン基としては、エチニレン基、プロピニレン基、ブチニレン基、ペンチニレン基、ヘキシニレン基、ヘプチニレン基、オクチニレン基、ノニニレン基、デシニレン基、ウンデシニレン基、ドデシニレン基などがあげられる。該アルキニレン基の炭素数は、好ましくは２～１２である。

[0114] 式（２）で示される結合単位Ａと式（３）で示される結合単位Ｂとを含む化

合物において、結合単位Ａの繰り返し数（ｘ）と結合単位Ｂの繰り返し数（ｙ）の合計の繰り返し数（ｘ＋ｙ）は、３～３００の範囲が好ましい。この範囲内であると、結合単位Ｂのメルカプトシランを、結合単位Ａの－$C_7H_{15}$が覆うため、スコーチタイムが短くなることを抑制できるとともに、シリカやゴム成分との良好な反応性を確保することができる。

[0115] 式（２）で示される結合単位Ａと式（３）で示される結合単位Ｂとを含む化合物としては、例えば、Ｍｏｍｅｎｔｉｖｅ社製のＮＸＴ－Ｚ３０、ＮＸＴ－Ｚ４５、ＮＸＴ－Ｚ６０などを使用することができる。これらは、単独で用いてもよく、２種以上を併用してもよい。

[0116] シランカップリング剤としては、例えば、デグッサ社、Ｍｏｍｅｎｔｉｖｅ社、信越シリコーン（株）、東京化成工業（株）、アヅマックス（株）、東レ・ダウコーニング（株）等の製品を使用できる。

[0117] シランカップリング剤の含有量は、シリカ１００質量部に対して、３質量部以上が好ましく、５質量部以上がより好ましい。また、上記含有量は、２０質量部以下が好ましく、１５質量部以下がより好ましい。上記範囲内であると、効果が良好に得られる傾向がある。

[0118] 上記界面活性剤の含有量Ｘ（質量部）と、シランカップリング剤の含有量Ｙ（質量部）の比率Ｘ／Ｙが０．０５～２０であることが好ましい。上記範囲内であると、効果が良好に得られる傾向がある。ここで、含有量は、ゴム成分１００質量部に対する含有量を意味する。

Ｘ／Ｙの下限は、好ましくは０．１、より好ましくは０．２、更に好ましくは０．２５であり、Ｘ／Ｙの上限は、好ましくは１０、より好ましくは５、更に好ましくは２、最も好ましくは１である。

[0119] 窒素吸着比表面積が２１０$m^2$／ｇ以上のシリカの含有量Ｚ（質量部）と、上記界面活性剤の含有量Ｘ（質量部）と、シランカップリング剤の含有量Ｙ（質量部）の比率Ｚ／（Ｘ＋Ｙ）が３～３０であることが好ましい。上記範囲内であると、効果が良好に得られる傾向がある。ここで、含有量は、ゴム成分１００質量部に対する含有量を意味する。

Ｚ／（Ｘ＋Ｙ）の下限は、好ましくは４、より好ましくは５であり、Ｚ／（Ｘ＋Ｙ）の上限は、好ましくは２０、より好ましくは１５、更に好ましくは１２、特に好ましくは１０、最も好ましくは８である。

[0120] 上記ゴム組成物は、カーボンブラックを含有することが好ましい。これにより、効果が好適に得られる。

カーボンブラックとしては、特に限定されないが、Ｎ１３４、Ｎ１１０、Ｎ２２０、Ｎ２３４、Ｎ２１９、Ｎ３３９、Ｎ３３０、Ｎ３２６、Ｎ３５１、Ｎ５５０、Ｎ７６２等が挙げられる。これらは、単独で用いてもよく、２種以上を併用してもよい。

[0121] カーボンブラックの窒素吸着比表面積（$N_2SA$）は、７０$m^2$／ｇ以上が好ましく、８０$m^2$／ｇ以上がより好ましく、１００$m^2$／ｇ以上が更に好ましい。また、上記$N_2SA$は、３００$m^2$／ｇ以下が好ましく、２５０$m^2$／ｇ以下がより好ましく、２００$m^2$／ｇ以下が更に好ましく、１６０$m^2$／ｇ以下が特に好ましい。上記範囲内であると、効果が良好に得られる傾向がある。なお、カーボンブラックの窒素吸着比表面積は、ＪＩＳ　Ｋ　６２１７－２：２００１によって求められる。

[0122] カーボンブラックとしては、例えば、旭カーボン（株）、キャボットジャパン（株）、東海カーボン（株）、三菱化学（株）、ライオン（株）、新日化カーボン（株）、コロンビアカーボン社等の製品を使用できる。

[0123] カーボンブラックの含有量は、ゴム成分１００質量部に対して、好ましくは２質量部以上、より好ましくは３質量部以上である。また、該含有量は、好ましくは１００質量部以下、より好ましくは６０質量部以下、更に好ましくは３０質量部以下、特に好ましくは２０質量部以下、最も好ましくは１０質量部以下である。上記範囲内であると、効果が良好に得られる傾向がある。

[0124] カーボンブラックの含有量Ａ（質量部）と、窒素吸着比表面積が２１０$m^2$／ｇ以上のシリカの含有量Ｚ（質量部）の比率Ａ／Ｚが０．０１～１２０であることが好ましい。上記範囲内であると、効果が良好に得られる傾向がある。ここで、含有量は、ゴム成分１００質量部に対する含有量を意味する。

Ａ／Ｚの下限は、好ましくは０．０２、より好ましくは０．０３であり、Ａ／Ｚの上限は、好ましくは２０、より好ましくは１、更に好ましくは０．５、特に好ましくは０．２である。

[0125] 上記ゴム組成物は、オイルを含有してもよい。

オイルとしては、例えば、プロセスオイル、植物油脂、又はその混合物が挙げられる。プロセスオイルとしては、例えば、パラフィン系プロセスオイル、アロマ系プロセスオイル、ナフテン系プロセスオイルなどを用いることができる。植物油脂としては、ひまし油、綿実油、あまに油、なたね油、大豆油、パーム油、やし油、落花生油、ロジン、パインオイル、パインタール、トール油、コーン油、こめ油、べに花油、ごま油、オリーブ油、ひまわり油、パーム核油、椿油、ホホバ油、マカデミアナッツ油、桐油等が挙げられる。これらは、単独で用いてもよく、２種以上を併用してもよい。なかでも、アロマ系プロセスオイルが好ましい。

[0126] オイルとしては、例えば、出光興産（株）、三共油化工業（株）、（株）ジャパンエナジー、オリソイ社、Ｈ＆Ｒ社、豊国製油（株）、昭和シェル石油（株）、富士興産（株）等の製品を使用できる。

[0127] オイルの含有量は、ゴム成分１００質量部に対して、好ましくは５質量部以上、より好ましくは１０質量部以上、更に好ましくは２０質量部以上である。また、上記含有量は、好ましくは７０質量部以下、より好ましくは５０質量部以下である。上記範囲内であると、効果が良好に得られる傾向がある。なお、オイルの含有量には、ゴム（油展ゴム）に含まれるオイルの量も含まれる。

[0128] 上記ゴム組成物は、硫黄を含むことが好ましい。

硫黄としては、ゴム工業において一般的に用いられる粉末硫黄、沈降硫黄、コロイド硫黄、不溶性硫黄、高分散性硫黄、可溶性硫黄などが挙げられる。これらは、単独で用いてもよく、２種以上を併用してもよい。

[0129] 硫黄としては、例えば、鶴見化学工業（株）、軽井沢硫黄（株）、四国化成工業（株）、フレクシス社、日本乾溜工業（株）、細井化学工業（株）等の

製品を使用できる。

[0130] 硫黄の含有量は、ゴム成分１００質量部に対して、好ましくは０．５質量部以上、より好ましくは１質量部以上である。また、上記含有量は、好ましくは１０質量部以下、より好ましくは５質量部以下、更に好ましくは３質量部以下である。上記範囲内であると、効果が良好に得られる傾向がある。

[0131] 上記ゴム組成物は、加硫促進剤を含むことが好ましい。

加硫促進剤としては、２－メルカプトベンゾチアゾール（ＭＢＴ）、ジベンゾチアジルジスルフィド（ＭＢＴＳ）、等のチアゾール系加硫促進剤；テトラメチルチウラムジスルフィド（ＴＭＴＤ）、テトラベンジルチウラムジスルフィド（ＴＢｚＴＤ）、テトラキス（２－エチルヘキシル）チウラムジスルフィド（ＴＯＴ－Ｎ）等のチウラム系加硫促進剤；Ｎ－ｔｅｒｔ－ブチル－２－ベンゾチアゾリルスルフェンアミド（ＴＢＢＳ）、Ｎ－シクロヘキシル－２－ベンゾチアゾリルスルフェンアミド（ＣＢＳ）、Ｎ－オキシエチレン－２－ベンゾチアゾールスルフェンアミド、Ｎ－オキシエチレン－２－ベンゾチアゾールスルフェンアミド、Ｎ，Ｎ’－ジイソプロピル－２－ベンゾチアゾールスルフェンアミド等のスルフェンアミド系加硫促進剤；１，３－ジフェニルグアニジン（ＤＰＧ）、ジオルトトリルグアニジン、オルトトリルビグアニジン等のグアニジン系加硫促進剤を挙げることができる。これらは、単独で用いてもよく、２種以上を併用してもよい。なかでも、効果がより好適に得られるという理由から、チアゾール系加硫促進剤、スルフェンアミド系加硫促進剤、グアニジン系加硫促進剤が好ましい。また、スルフェンアミド系加硫促進剤、グアニジン系加硫促進剤の併用、チアゾール系加硫促進剤、グアニジン系加硫促進剤の併用も好ましい。

また、チアゾール系加硫促進剤、スルフェンアミド系加硫促進剤、グアニジン系加硫促進剤としては、それぞれ、ＭＢＴ、ＭＢＴＳ；ＴＢＢＳ、ＣＢＳ；ＤＰＧが好ましい。

[0132] 加硫促進剤の含有量は、ゴム成分１００質量部に対して、好ましくは０．５質量部以上、より好ましくは１質量部以上である。また、上記含有量は、好

ましくは１０質量部以下、より好ましくは７質量部以下である。上記範囲内であると、効果が良好に得られる傾向がある。

[0133] 上記ゴム組成物は、樹脂を含有していてもよい。

樹脂としては、タイヤ工業で汎用されているものであれば特に限定されず、ロジン系樹脂、クマロンインデン樹脂、α－メチルスチレン系樹脂、テルペン系樹脂、ｐ－ｔ－ブチルフェノールアセチレン樹脂、アクリル系樹脂、Ｃ５樹脂、Ｃ９樹脂等が挙げられる。市販品としては、丸善石油化学（株）、住友ベークライト（株）、ヤスハラケミカル（株）、東ソー（株）、Ｒｕｔｇｅｒｓ　Ｃｈｅｍｉｃａｌｓ社、ＢＡＳＦ社、アリゾナケミカル社、日塗化学（株）、（株）日本触媒、ＪＸエネルギー（株）、荒川化学工業（株）、田岡化学工業（株）、東亞合成（株）等の製品を使用できる。これらは、単独で用いてもよく、２種以上を併用してもよい。

[0134] 樹脂の含有量は、前記性能バランスの観点から、ゴム成分１００質量部に対して、好ましくは０．３質量部以上、より好ましくは０．５質量部以上であり、好ましくは１００質量部以下、より好ましくは５０質量部以下である。

[0135] 上記ゴム組成物は、老化防止剤を含有していてもよい。

老化防止剤としては、例えば、フェニル－α－ナフチルアミン等のナフチルアミン系老化防止剤；オクチル化ジフェニルアミン、４，４’－ビス（α，α’－ジメチルベンジル）ジフェニルアミン等のジフェニルアミン系老化防止剤；Ｎ－イソプロピル－Ｎ’－フェニル－ｐ－フェニレンジアミン、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、Ｎ，Ｎ’－ジ－２－ナフチル－ｐ－フェニレンジアミン等のｐ－フェニレンジアミン系老化防止剤；２，２，４－トリメチル－１，２－ジヒドロキノリンの重合物等のキノリン系老化防止剤；２，６－ジ－ｔ－ブチル－４－メチルフェノール、スチレン化フェノール等のモノフェノール系老化防止剤；テトラキス－［メチレン－３－（３’，５’－ジ－ｔ－ブチル－４’－ヒドロキシフェニル）プロピオネート］メタン等のビス、トリス、ポリフェノール系老化防止剤などが挙げられる。これらは単独で用いてもよいし、２種類以

上を組み合わせて用いてもよい。なかでも、ｐ－フェニレンジアミン系老化防止剤、キノリン系老化防止剤が好ましく、ｐ－フェニレンジアミン系老化防止剤がより好ましい。

[0136] 老化防止剤としては、例えば、精工化学（株）、住友化学（株）、大内新興化学工業（株）、フレクシス社等の製品を使用できる。

[0137] 老化防止剤の含有量は、ゴム成分１００質量部に対して、好ましくは０．５質量部以上、より好ましくは１質量部以上である。また、上記含有量は、好ましくは１０質量部以下、より好ましくは５質量部以下である。上記範囲内であると、効果が良好に得られる傾向がある。

[0138] 上記ゴム組成物は、ワックスを含有していてもよい。

ワックスとしては、特に限定されず、パラフィンワックス、マイクロクリスタリンワックス等の石油系ワックス；植物系ワックス、動物系ワックス等の天然系ワックス；エチレン、プロピレン等の重合物等の合成ワックスなどが挙げられる。これらは単独で用いてもよく、２種以上を組み合わせて用いてもよい。なかでも、石油系ワックスが好ましく、パラフィンワックスがより好ましい。

[0139] ワックスとしては、例えば、大内新興化学工業（株）、日本精蝋（株）、精工化学（株）等の製品を使用できる。

[0140] ワックスの含有量は、前記性能バランスの観点から、ゴム成分１００質量部に対して、好ましくは０．３質量部以上、より好ましくは０．５質量部以上であり、好ましくは２０質量部以下、より好ましくは１０質量部以下である。

[0141] 上記ゴム組成物は、脂肪酸を含有することが好ましい。

脂肪酸としては、従来公知のものを使用でき、例えば、ステアリン酸、オレイン酸、パルミチン酸等が挙げられ、効果が良好に得られる傾向があるという点から、ステアリン酸が好ましい。これらは、単独で用いてもよく、２種以上を併用してもよい。

脂肪酸としては、日油（株）、ＮＯＦ社、花王（株）、和光純薬工業（株）

、千葉脂肪酸（株）等の製品を使用できる。

[0142] 脂肪酸の含有量は、ゴム成分１００質量部に対して、好ましくは０．５質量部以上、より好ましくは１質量部以上である。また、上記含有量は、好ましくは１０質量部以下、より好ましくは５質量部以下である。上記範囲内であると、効果が良好に得られる傾向がある。

[0143] 上記ゴム組成物は、酸化亜鉛を含有することが好ましい。

酸化亜鉛としては、従来公知のものを使用でき、例えば、三井金属鉱業（株）、東邦亜鉛（株）、ハクスイテック（株）、正同化学工業（株）、堺化学工業（株）等の製品を使用できる。

[0144] 酸化亜鉛の含有量は、ゴム成分１００質量部に対して、好ましくは０．５質量部以上、より好ましくは１質量部以上である。また、上記含有量は、好ましくは１０質量部以下、より好ましくは５質量部以下である。上記数値範囲内であると、効果がより良好に得られる傾向がある。

[0145] 上記ゴム組成物には、前記成分の他、タイヤ工業において一般的に用いられている添加剤を配合することができ、有機過酸化物、硫酸マグネシウムなどの充填剤等を例示できる。これら充填剤の各含有量は、ゴム成分１００質量部に対して、好ましくは０．１質量部以上であり、好ましくは２００質量部以下である。

[0146] 上記ゴム組成物は、例えば、前記各成分をオープンロール、バンバリーミキサーなどのゴム混練装置を用いて混練し、その後加硫する方法等により製造できる。

[0147] 混練条件としては、架橋剤（加硫剤）及び加硫促進剤以外の添加剤を混練するベース練り工程では、混練温度は、通常１００～１８０℃、好ましくは１２０～１７０℃である。加硫剤、加硫促進剤を混練する仕上げ練り工程では、混練温度は、通常１２０℃以下、好ましくは８５～１１０℃である。また、加硫剤、加硫促進剤を混練した組成物は、通常、プレス加硫などの加硫処理が施される。加硫温度としては、通常１４０～１９０℃、好ましくは１５０～１８５℃である。

[0148] 上記ゴム組成物は、良好な低燃費性能を有するため、例えば、トレッド（キャップトレッド）、サイドウォール、ベーストレッド、アンダートレッド、クリンチ、ビードエイペックス、ブレーカークッションゴム、カーカスコード被覆用ゴム、インスレーション、チェーファー、インナーライナー等や、ランフラットタイヤのサイド補強層などのタイヤ部材に用いることができる。なかでも、トレッドに好適に用いられる。

[0149] （空気入りタイヤ）

本発明の空気入りタイヤは、上記ゴム組成物を用いて通常の方法で製造される。すなわち、上記成分を配合したゴム組成物を、未加硫の段階でトレッドなどの各タイヤ部材の形状にあわせて押出し加工し、他のタイヤ部材とともに、タイヤ成型機上にて通常の方法で成形することにより、未加硫タイヤを形成する。この未加硫タイヤを加硫機中で加熱加圧することによりタイヤを得る。

[0150] 上記空気入りタイヤは、乗用車用タイヤ、大型乗用車用、大型ＳＵＶ用タイヤ、トラック・バス用タイヤ、競技用タイヤ、スタッドレスタイヤ（冬用タイヤ）、２輪車用タイヤ、ランフラットタイヤ、航空機用タイヤ、鉱山用タイヤ等に好適に使用可能である。

[0151] （第二の本発明）

以下において、第二の本発明について説明するが、主として第一の本発明と異なる点を中心に説明し、何ら言及がない場合は、第一の本発明と同様である。

第二の本発明のタイヤ用ゴム組成物は、ＳｉＯＲ基（Ｒは、水素原子又は炭化水素基）を有するスチレンブタジエンゴムを３０質量％以上含み、ゴム成分１００質量％中のスチレンブタジエンゴムの合計含有量が７０～９０質量％、ブタジエンゴムの含有量が１０～３０質量％であるゴム成分と、窒素吸着比表面積が２１０$m^2$／ｇ以上のシリカをゴム成分１００質量部に対して５０質量部以上と、ポリオキシアルキレンアルケニルエーテル硫酸エステル塩、ポリオキシアルキレンアルキルエーテル硫酸エステル塩からなる群より選

択される少なくとも１種の界面活性剤とを含む。

[0152] 上記ゴム組成物によって良好なシリカの分散性、低燃費性能が得られる理由は必ずしも明らかではないが、以下のように推察される。

[0153] ＳｉＯＲ基を有するスチレンブタジエンゴム（変性ＳＢＲ）は、ＳｉＯＲ基がシリカ表面に存在する水酸基と相互作用することにより、シリカ同士の凝集を抑制でき、シリカの分散性を改善できる。更に、上記界面活性剤は、ポリオキシアルキレン部分の存在及び硫酸部分の存在により、親水性を呈するシリカ表面に好適に吸着し、分子末端に存在するアルケニル基やアルキル基によりシリカ表面を疎水化することにより、シリカ同士の凝集を抑制でき、シリカの分散性を改善できると共に、加硫促進剤のシリカへの吸着も防止できる。そして、上記変性ＳＢＲと上記界面活性剤とを併用することにより、シリカの分散性の改善が相乗的に進み、従来技術に比べてより良好なシリカの分散性、低燃費性能が得られる。これは、上記界面活性剤の存在により、シリカと上記変性ＳＢＲとの親和性が向上しているためと推測される。そして、この効果は、特に、窒素吸着比表面積が２１０ｍ$^2$／ｇ以上のシリカをゴム成分１００質量部に対して５０質量部以上と、微粒子シリカを比較的多量配合したゴム組成物において顕著に発揮される。これは、微粒子シリカはシリカの凝集力の強さに起因して凝集しやすいものの、上記変性ＳＢＲと上記界面活性剤とを併用することにより、微粒子シリカの分散性の改善が相乗的に進みやすく、分散性の改善効果が発揮されやすいためと推測される。

よって、本願発明では、窒素吸着比表面積が２１０ｍ$^2$／ｇ以上のシリカをゴム成分１００質量部に対して５０質量部以上と、微粒子シリカを比較的多量配合した場合であっても、良好なシリカの分散性、低燃費性能を有するゴム組成物を提供できるものと推察される。

更に、本願発明では、ゴム成分１００質量％中のスチレンブタジエンゴムの合計含有量が７０～９０質量％、ブタジエンゴムの含有量が１０～３０質量％であり、ゴム同士の相溶性が非常に高いゴムによりゴム成分が構成されているため、上記変性ＳＢＲと上記界面活性剤とを併用する効果が十分に得ら

れると共に、ブタジエンゴム層においてもシリカが良好に分散され、良好な耐摩耗性能が得られる。

また、本願発明では、良好なシリカの分散性、低燃費性能に加えて、良好な加工性能、耐摩耗性能、グリップ性能も得られる。

また、ＳｉＯＲ基（Ｒは、水素原子又は炭化水素基）を有するスチレンブタジエンゴムと、上記界面活性剤とを併用することにより、シリカの分散性、低燃費性能を相乗的に改善できる。

[0154] ゴム成分１００質量％中の変性ＳＢＲの含有量は、３０質量％以上であり、好ましくは５０質量％以上、より好ましくは６０質量％以上であり、好ましくは９０質量％以下、より好ましくは８０質量％以下である。上記範囲内であると、効果が良好に得られる傾向がある。

[0155] ゴム成分１００質量％中のＳＢＲの合計含有量（変性ＳＢＲ及び第２のＳＢＲの合計含有量）は、好ましくは７０質量％以上であり、好ましくは９０質量％以下、より好ましくは８０質量％以下である。上記範囲内であると、効果が良好に得られる傾向がある。

[0156] ゴム成分１００質量％中のＢＲの含有量は、好ましくは１０質量％以上、より好ましくは２０質量％以上であり、好ましくは３０質量％以下である。上記範囲内であると、効果が良好に得られる傾向がある。

[0157] ゴム成分１００質量％中のＳＢＲ（変性ＳＢＲ及び第２のＳＢＲ）、ＢＲの合計含有量は、好ましくは８０質量％以上、より好ましくは９０質量％以上であり、１００質量％であってもよい。上記範囲内であると、効果が良好に得られる傾向がある。

[0158] 上記界面活性剤の含有量は、ゴム成分１００質量部に対して、好ましくは０．５質量部以上、より好ましくは１質量部以上、更に好ましくは２質量部以上である。また、該含有量は、好ましくは３０質量部以下、より好ましくは２０質量部以下、更に好ましくは１０質量部以下、特に好ましくは８質量部以下である。上記範囲内であると、効果が良好に得られる傾向がある。

[0159] メルカプト系シランカップリング剤としては、メルカプト基（－ＳＨ）を有

するシランカップリング剤が好ましく、上記式（１）で表される化合物、及び／又は上記式（２）で示される結合単位Ａと上記式（３）で示される結合単位Ｂとを含む化合物がより好ましく、上記式（１）で表される化合物が更に好ましい。これにより、効果がより好適に得られる。

[0160] シランカップリング剤の含有量は、シリカ１００質量部に対して、３質量部以上が好ましく、５質量部以上がより好ましい。また、上記含有量は、２０質量部以下が好ましく、１５質量部以下がより好ましく、１１質量部以下が更に好ましい。上記範囲内であると、効果が良好に得られる傾向がある。

[0161] 上記界面活性剤の含有量Ｘ（質量部）と、シランカップリング剤の含有量Ｙ（質量部）の比率Ｘ／Ｙが０．０５～２０であることが好ましい。上記範囲内であると、効果が良好に得られる傾向がある。ここで、含有量は、ゴム成分１００質量部に対する含有量を意味する。

Ｘ／Ｙの下限は、好ましくは０．１、より好ましくは０．２、更に好ましくは０．２５であり、Ｘ／Ｙの上限は、好ましくは１０、より好ましくは５、更に好ましくは２、最も好ましくは１、より最も好ましくは０．８である。

[0162] 窒素吸着比表面積が２１０ｍ$^2$／ｇ以上のシリカの含有量Ｚ（質量部）と、上記界面活性剤の含有量Ｘ（質量部）と、シランカップリング剤の含有量Ｙ（質量部）の比率Ｚ／（Ｘ＋Ｙ）が３～３０であることが好ましい。上記範囲内であると、効果が良好に得られる傾向がある。ここで、含有量は、ゴム成分１００質量部に対する含有量を意味する。

Ｚ／（Ｘ＋Ｙ）の下限は、好ましくは４、より好ましくは５であり、Ｚ／（Ｘ＋Ｙ）の上限は、好ましくは２０、より好ましくは１５、更に好ましくは１２、特に好ましくは１０である。

[0163] （第三の本発明）

以下において、第三の本発明について説明するが、主として第一の本発明と異なる点を中心に説明し、何ら言及がない場合は、第一の本発明と同様である。

第三の本発明のタイヤ用ゴム組成物は、ＳｉＯＲ基（Ｒは、水素原子又は炭

化水素基）を有するスチレンブタジエンゴムを３０質量％以上含むゴム成分と、窒素吸着比表面積が２１０ｍ$^2$／ｇ以上のシリカをゴム成分１００質量部に対して７０～１３０質量部と、ポリオキシアルキレンアルケニルエーテル硫酸エステル塩、ポリオキシアルキレンアルキルエーテル硫酸エステル塩からなる群より選択される少なくとも１種の界面活性剤とを含む。

[0164] 上記ゴム組成物によって良好なシリカの分散性、低燃費性能が得られる理由は必ずしも明らかではないが、以下のように推察される。

[0165] ＳｉＯＲ基を有するスチレンブタジエンゴム（変性ＳＢＲ）は、ＳｉＯＲ基がシリカ表面に存在する水酸基と相互作用することにより、シリカ同士の凝集を抑制でき、シリカの分散性を改善できる。更に、上記界面活性剤は、ポリオキシアルキレン部分の存在及び硫酸部分の存在により、親水性を呈するシリカ表面に好適に吸着し、分子末端に存在するアルケニル基やアルキル基によりシリカ表面を疎水化することにより、シリカ同士の凝集を抑制でき、シリカの分散性を改善できると共に、加硫促進剤のシリカへの吸着も防止できる。そして、上記変性ＳＢＲと上記界面活性剤とを併用することにより、シリカの分散性の改善が相乗的に進み、従来技術に比べてより良好なシリカの分散性、低燃費性能が得られる。これは、上記界面活性剤の存在により、シリカと上記変性ＳＢＲとの親和性が向上しているためと推測される。そして、この効果は、特に、窒素吸着比表面積が２１０ｍ$^2$／ｇ以上のシリカをゴム成分１００質量部に対して５０質量部以上と、微粒子シリカを比較的多量配合したゴム組成物において顕著に発揮される。これは、微粒子シリカはシリカの凝集力の強さに起因して凝集しやすいものの、上記変性ＳＢＲと上記界面活性剤とを併用することにより、微粒子シリカの分散性の改善が相乗的に進みやすく、分散性の改善効果が発揮されやすいためと推測される。

よって、本願発明では、窒素吸着比表面積が２１０ｍ$^2$／ｇ以上のシリカをゴム成分１００質量部に対して５０質量部以上と、微粒子シリカを比較的多量配合した場合であっても、良好なシリカの分散性、低燃費性能を有するゴム組成物を提供できるものと推察される。

更に、本願発明では、窒素吸着比表面積が２１０ｍ$^2$／ｇ以上のシリカの含有量を７０～１３０質量部とすることにより、上記変性ＳＢＲと上記界面活性剤とを併用する効果がより顕著に得られる。

また、本願発明では、良好なシリカの分散性、低燃費性能に加えて、良好な加工性能、耐摩耗性能、グリップ性能も得られる。

また、ＳｉＯＲ基（Ｒは、水素原子又は炭化水素基）を有するスチレンブタジエンゴムと、上記界面活性剤とを併用することにより、シリカの分散性、低燃費性能を相乗的に改善できる。

[0166] 上記ゴム組成物は窒素吸着比表面積が２１０ｍ$^2$／ｇ以上のシリカを含む。シリカとしては、例えば、乾式法シリカ（無水ケイ酸）、湿式法シリカ（含水ケイ酸）等が挙げられるが、シラノール基が多いという理由から、湿式法シリカが好ましい。これらは単独で用いてもよく、２種以上を組み合わせて用いてもよい。

[0167] 上記シリカの含有量は、ゴム成分１００質量部に対して、好ましくは７０質量部以上である。また、該含有量は、好ましくは１３０質量部以下、更に好ましくは１２０質量部以下、特に好ましくは１００質量部以下である。上記範囲内であると、効果が良好に得られる傾向がある。

[0168] 上記ゴム組成物は、更にシランカップリング剤を含有することが好ましい。シランカップリング剤としては、特に限定されず、第一の発明と同様のものを使用できるが、なかでも、効果が良好に得られる傾向がある点から、スルフィド系シランカップリング剤、メルカプト系シランカップリング剤が好ましく、スルフィド系シランカップリング剤がより好ましい。

[0169] シランカップリング剤の含有量は、シリカ１００質量部に対して、３質量部以上が好ましく、５質量部以上がより好ましい。また、上記含有量は、２０質量部以下が好ましく、１５質量部以下がより好ましく、１１質量部以下が更に好ましい。上記範囲内であると、効果が良好に得られる傾向がある。

[0170] 窒素吸着比表面積が２１０ｍ$^2$／ｇ以上のシリカの含有量Ｚ（質量部）と、上記界面活性剤の含有量Ｘ（質量部）と、シランカップリング剤の含有量Ｙ（

質量部）の比率Ｚ／（Ｘ＋Ｙ）が３～３０であることが好ましい。上記範囲内であると、効果が良好に得られる傾向がある。ここで、含有量は、ゴム成分１００質量部に対する含有量を意味する。

Ｚ／（Ｘ＋Ｙ）の下限は、好ましくは４、より好ましくは５であり、Ｚ／（Ｘ＋Ｙ）の上限は、好ましくは２０、より好ましくは１５、更に好ましくは１２、特に好ましくは１０である。

[0171]（第四の本発明）

以下において、第四の本発明について説明するが、主として第一の本発明と異なる点を中心に説明し、何ら言及がない場合は、第一の本発明と同様である。

第四の本発明のタイヤ用ゴム組成物は、ＳｉＯＲ基（Ｒは、水素原子又は炭化水素基）を有するスチレンブタジエンゴムを３０質量％以上含むゴム成分と、窒素吸着比表面積が２１０ｍ$^2$／ｇ以上のシリカをゴム成分１００質量部に対して５０質量部以上と、ポリオキシアルキレンアルケニルエーテル硫酸エステル塩、ポリオキシアルキレンアルキルエーテル硫酸エステル塩からなる群より選択される少なくとも１種の界面活性剤とを含み、上記シリカと上記界面活性剤とが、同一の時期にゴムと混練りされる。

[0172] 上記ゴム組成物によって良好なシリカの分散性、低燃費性能が得られる理由は必ずしも明らかではないが、以下のように推察される。

[0173] ＳｉＯＲ基を有するスチレンブタジエンゴム（変性ＳＢＲ）は、ＳｉＯＲ基がシリカ表面に存在する水酸基と相互作用することにより、シリカ同士の凝集を抑制でき、シリカの分散性を改善できる。更に、上記界面活性剤は、ポリオキシアルキレン部分の存在及び硫酸部分の存在により、親水性を呈するシリカ表面に好適に吸着し、分子末端に存在するアルケニル基やアルキル基によりシリカ表面を疎水化することにより、シリカ同士の凝集を抑制でき、シリカの分散性を改善できると共に、加硫促進剤のシリカへの吸着も防止できる。そして、上記変性ＳＢＲと上記界面活性剤とを併用することにより、シリカの分散性の改善が相乗的に進み、従来技術に比べてより良好なシリカ

の分散性、低燃費性能が得られる。これは、上記界面活性剤の存在により、シリカと上記変性ＳＢＲとの親和性が向上しているためと推測される。そして、この効果は、特に、窒素吸着比表面積が２１０ｍ$^2$／ｇ以上のシリカをゴム成分１００質量部に対して５０質量部以上と、微粒子シリカを比較的多量配合したゴム組成物において顕著に発揮される。これは、微粒子シリカはシリカの凝集力の強さに起因して凝集しやすいものの、上記変性ＳＢＲと上記界面活性剤とを併用することにより、微粒子シリカの分散性の改善が相乗的に進みやすく、分散性の改善効果が発揮されやすいためと推測される。

よって、本願発明では、窒素吸着比表面積が２１０ｍ$^2$／ｇ以上のシリカをゴム成分１００質量部に対して５０質量部以上と、微粒子シリカを比較的多量配合した場合であっても、良好なシリカの分散性、低燃費性能を有するゴム組成物を提供できるものと推察される。

更に、本願発明では、上記シリカと上記界面活性剤とが、同一の時期にゴムと混練りされるため、上記変性ＳＢＲと上記界面活性剤とを併用する効果がより顕著に得られる。

また、本願発明では、良好なシリカの分散性、低燃費性能に加えて、良好な加工性能、耐摩耗性能、グリップ性能も得られる。

また、ＳｉＯＲ基（Ｒは、水素原子又は炭化水素基）を有するスチレンブタジエンゴムと、上記界面活性剤とを併用することにより、シリカの分散性、低燃費性能を相乗的に改善できる。

[0174] 第四の本発明では、上記ゴム組成物は、上記シリカと上記界面活性剤とが、同一の時期にゴムと混練りされる製法により得られる。ここで、同一の時期にゴムと混練りとは、同一の練り工程において、上記シリカと上記界面活性剤が混練機に投入、混練されることを意味する。例えば、ベース練り工程において、両者を混練機に投入、混練すればよい。また、ベース練り工程が複数の工程から構成される場合は、複数の工程のうち一の工程において、両者を混練機に投入、混練すればよい。

[0175] ゴム組成物に配合される上記シリカのうち、好ましくは８０質量％以上、よ

り好ましくは９０質量％以上、更に好ましくは９５質量％以上、最も好ましくは１００質量％の上記シリカが、上記界面活性剤と、同一の時期にゴムと混練りされることが好ましい。これにより、効果がより良好に得られる。

同様に、ゴム組成物に配合される上記界面活性剤のうち、好ましくは８０質量％以上、より好ましくは９０質量％以上、更に好ましくは９５質量％以上、最も好ましくは１００質量％の上記界面活性剤が、上記シリカと、同一の時期にゴムと混練りされることが好ましい。これにより、効果がより良好に得られる。

[0176] （第五の本発明）

以下において、第五の本発明について説明するが、主として第一の本発明と異なる点を中心に説明し、何ら言及がない場合は、第一の本発明と同様である。

第五の本発明のタイヤ用ゴム組成物は、ＳｉＯＲ基（Ｒは、水素原子又は炭化水素基）を有するスチレンブタジエンゴムを３０質量％以上含むゴム成分と、窒素吸着比表面積が２１０ｍ$^2$／ｇ以上のシリカをゴム成分１００質量部に対して５０質量部以上と、カーボンブラックをゴム成分１００質量部に対して２質量部以上と、ポリオキシアルキレンアルケニルエーテル硫酸エステル塩、ポリオキシアルキレンアルキルエーテル硫酸エステル塩からなる群より選択される少なくとも１種の界面活性剤とを含む。

[0177] 上記ゴム組成物によって良好なシリカの分散性、低燃費性能が得られる理由は必ずしも明らかではないが、以下のように推察される。

[0178] ＳｉＯＲ基を有するスチレンブタジエンゴム（変性ＳＢＲ）は、ＳｉＯＲ基がシリカ表面に存在する水酸基と相互作用することにより、シリカ同士の凝集を抑制でき、シリカの分散性を改善できる。更に、上記界面活性剤は、ポリオキシアルキレン部分の存在及び硫酸部分の存在により、親水性を呈するシリカ表面に好適に吸着し、分子末端に存在するアルケニル基やアルキル基によりシリカ表面を疎水化することにより、シリカ同士の凝集を抑制でき、シリカの分散性を改善できると共に、加硫促進剤のシリカへの吸着も防止で

きる。そして、上記変性ＳＢＲと上記界面活性剤とを併用することにより、シリカの分散性の改善が相乗的に進み、従来技術に比べてより良好なシリカの分散性、低燃費性能が得られる。これは、上記界面活性剤の存在により、シリカと上記変性ＳＢＲとの親和性が向上しているためと推測される。そして、この効果は、特に、窒素吸着比表面積が２１０ｍ$^2$／ｇ以上のシリカをゴム成分１００質量部に対して５０質量部以上と、微粒子シリカを比較的多量配合したゴム組成物において顕著に発揮される。これは、微粒子シリカはシリカの凝集力の強さに起因して凝集しやすいものの、上記変性ＳＢＲと上記界面活性剤とを併用することにより、微粒子シリカの分散性の改善が相乗的に進みやすく、分散性の改善効果が発揮されやすいためと推測される。

よって、本願発明では、窒素吸着比表面積が２１０ｍ$^2$／ｇ以上のシリカをゴム成分１００質量部に対して５０質量部以上と、微粒子シリカを比較的多量配合した場合であっても、良好なシリカの分散性、低燃費性能を有するゴム組成物を提供できるものと推察される。

更に、本願発明では、特定量のカーボンブラックが配合されるため、上記変性ＳＢＲと上記界面活性剤とを併用する効果がより顕著に得られる。

また、本願発明では、良好なシリカの分散性、低燃費性能に加えて、良好な加工性能、耐摩耗性能、グリップ性能も得られる。

また、ＳｉＯＲ基（Ｒは、水素原子又は炭化水素基）を有するスチレンブタジエンゴムと、上記界面活性剤とを併用することにより、シリカの分散性、低燃費性能を相乗的に改善できる。

[0179] 上記シリカの含有量は、ゴム成分１００質量部に対して、５０質量部以上であり、好ましくは６０質量部以上、より好ましくは７０質量部以上である。また、該含有量は、好ましくは１５０質量部以下、より好ましくは１３０質量部以下、更に好ましくは１２０質量部以下である。上記範囲内であると、効果が良好に得られる傾向がある。

[0180] 上記ゴム組成物は、老化防止剤を含有していてもよい。

老化防止剤としては、特に限定されず、上記と同様のものが挙げられるが、

なかでも、ｐ－フェニレンジアミン系老化防止剤、キノリン系老化防止剤が好ましく、ｐ－フェニレンジアミン系老化防止剤がより好ましい。ｐ－フェニレンジアミン系老化防止剤、キノリン系老化防止剤を併用することも好ましい。

## 実施例

[0181] 実施例に基づいて、本発明を具体的に説明するが、本発明はこれらのみに限定されるものではない。

[0182] （第一の本発明）

（製造例１）

窒素置換されているオートクレーブ反応器に、シクロヘキサン、テトラヒドロフラン、スチレン、及び１，３－ブタジエンを仕込む。反応器の内容物の温度を２０℃に調整後、ｎ－ブチルリチウムを添加して重合を開始する。断熱条件で重合し、最高温度は８５℃に達する。重合転化率が９９％に達する時点でブタジエンを追加し、更に５分重合後、３－ジメチルアミノプロピルトリメトキシシランを変性剤として加えて１５分間反応を行う。重合反応終了後、２，６－ジ－ｔｅｒｔ－ブチル－ｐ－クレゾールを添加する。次いで、スチームストリッピングにより脱溶媒を行い、１１０℃に調温されている熱ロールにより乾燥して変性スチレンブタジエンゴム（変性ＳＢＲ）を得る。

[0183] （製造例２）

変性剤を加えない点を除いて、製造例１と同様に行い、非変性スチレンブタジエンゴム（非変性ＳＢＲ）を得る。

[0184] 上記製造例で得られるＳＢＲについて以下の評価を行う。

[0185] （重量平均分子量（Ｍｗ））

ゲルパーミエーションクロマトグラフィー（ＧＰＣ）（東ソー（株）製ＧＰＣ－８０００シリーズ、検出器：示差屈折計、カラム：東ソー（株）製のＴＳＫＧＥＬ　ＳＵＰＥＲＭＵＬＴＩＰＯＲＥ　ＨＺ－Ｍ）による測定値を基に標準ポリスチレン換算により算出する。

[0186]（スチレン量）

ＳＢＲのスチレン量は、Ｈ$^{1}$－ＮＭＲ測定により算出する。

[0187]（ビニル量）

ＳＢＲのビニル量は、赤外吸収スペクトル分析法によって測定する。

[0188]実施例及び比較例で使用する各種薬品について、まとめて説明する。

変性ＳＢＲ：変性ＳＢＲ（上記製造例１で調製するＳＢＲ、スチレン量：２１質量％、ビニル量：５５質量％、Ｍｗ：８５万）

非変性ＳＢＲ：非変性ＳＢＲ（上記製造例２で調製するＳＢＲ、スチレン量：２１質量％、ビニル量：５５質量％、Ｍｗ：８５万）

ＢＲ：宇部興産（株）製のＢＲ１５０Ｂ（シス含量：９７質量％）

シリカ１：エボニックデグッサ社製のウルトラシルＶＮ３（$N_2$ＳＡ：１８０$m^2$／ｇ）

シリカ２：エボニックデグッサ社製の９０００ＧＲ（$N_2$ＳＡ：２３０$m^2$／ｇ）

シリカ３：東ソー（株）製のＮｉｐｓｉｌ　ＶＮ３（$N_2$ＳＡ：２７０$m^2$／ｇ）

カーボンブラック：キャボットジャパン（株）製のショウブラックＮ１３４（$N_2$ＳＡ：１４８$m^2$／ｇ）

界面活性剤１：花王（株）製のラムテルＰＤ－１０４（ポリオキシアルキレンアルケニルエーテル硫酸アンモニウム）

界面活性剤２：花王（株）製のエマールＥ－２７Ｃ（ポリオキシエチレンラウリルエーテル硫酸ナトリウム、アルキル基の炭素数：１２）

シランカップリング剤：Ｍｏｍｅｎｔｉｖｅ社製のＮＸＴ－Ｚ４５（結合単位Ａ及び結合単位Ｂを含む化合物（結合単位Ａ：５５モル％、結合単位Ｂ：４５モル％））

オイル：（株）出光興産（株）製のダイアナプロセスＡＨ－２４（アロマ系プロセスオイル）

老化防止剤：住友化学（株）製のアンチゲン６Ｃ（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）

ワックス：日本精鑞（株）製のオゾエース０３５５

ステアリン酸：日油（株）製の椿

酸化亜鉛：三井金属鉱業（株）製の酸化亜鉛２種

硫黄：細井化学工業（株）製のＨＫ－２００－５（５質量％オイル含有粉末硫黄）

加硫促進剤１：大内新興化学工業（株）製のノクセラーＣＺ（Ｎ－シクロヘキシル－２－ベンゾチアゾリルスルフェンアミド）

加硫促進剤２：大内新興化学工業（株）製のノクセラーＤ（１，３－ジフェニルグアニジン）

[0189]（実施例及び比較例）

表１に示す配合処方にしたがい、（株）神戸製鋼所製の１．７Ｌバンバリーミキサーを用いて、硫黄及び加硫促進剤以外の薬品を設定温度１５０℃の条件下で５分間混練りし、混練り物を得る。次に、得られる混練り物に硫黄及び加硫促進剤を添加し、オープンロールを用いて、１００℃の条件下で５分間練り込み、未加硫ゴム組成物を得る。得られる未加硫ゴム組成物を１７０℃で２０分間プレス加硫して加硫ゴム組成物（加硫ゴムシート）を得る。

[0190] 上記のようにして得られる未加硫ゴム組成物、加硫ゴム組成物を使用して、下記の評価を行うことで、表１またはそれに近い値が得られる。

[0191]（ムーニー粘度（加工性能））

ＪＩＳ　Ｋ　６３００－１「未加硫ゴム－物理特性－第１部：ムーニー粘度計による粘度及びスコーチタイムの求め方」に準じて、ムーニー粘度試験機を用いて、１分間の予熱によって熱せられる１３０℃の温度条件にて、小ローターを回転させ、４分間経過する時点での上記未加硫ゴム組成物のムーニー粘度（$ML_{1+4}$／１３０℃）を測定する。測定結果を比較例１の結果を１００とし、下記計算式により、各配合のムーニー粘度を指数表示する。指数が大きいほど粘度が低く、加工性能に優れることを示す。

（ムーニー粘度指数）＝（比較例１のムーニー粘度）／（各配合のムーニー

粘度）×１００

[0192]（ペイン効果（シリカの分散性））

アルファーテクノロジー社製ＲＰＡ２０００を用いて、測定温度１１０℃（予熱１分）、周波数６ｃｐｍ、振幅０．２８～１０％の条件で、上記加硫ゴム組成物の貯蔵弾性率の歪依存性を測定し、歪量０．５６％時の貯蔵弾性率の値を求める。結果は、比較例１の値を１００として指数表示する（分散性指数）。指数が大きいほどフィラーの分散不良塊が少なく、フィラーの分散性が良好であることを示す。本実施例では、フィラー中に占めるシリカの割合が大きいため、ペイン効果指数は、主にシリカの分散性を示している。

[0193]（低燃費性能）

（株）岩本製作所製の粘弾性スペクトロメーターを用いて、温度５０℃、初期歪み１０％、動歪み２％、周波数１０Ｈｚの条件下で、加硫ゴムシートの損失正接（ｔａｎδ）を測定し、比較例１のｔａｎδを１００として、下記計算式により低燃費性能指数を算出する。低燃費性能指数が大きいほど、低燃費性能に優れることを示す。

（低燃費性能指数）＝（比較例１のｔａｎδ）／（各配合のｔａｎδ）×１００

[0194]（耐摩耗性能）

ＬＡＴ試験機（Ｌａｂｏｒａｔｅｒｙ　Ａｂｒａｔｉｏｎ　ａｎ　Ｓｋｉｄ　Ｔｅｓｔｅｒ）を用い、荷重４０Ｎ、速度２０ｋｍ／ｈ、スリップアングル５°の条件にて、各加硫ゴム組成物の容積損失量を測定する。比較例１の容積損失量を１００とし、下記計算式によりＬＡＴ摩耗指数を算出する。指数が大きいほど耐摩耗性能に優れることを示す。

（耐摩耗性能指数）＝（比較例１の容積損失量）／（各配合の容積損失量）×１００

[0195]

[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 |
|---|---|---|---|---|---|---|---|---|---|---|
| 配合量（質量部） | 変性SBR | 100 | | | | 100 | 40 | 40 | 40 | 40 |
| | 非変性SBR | | 70 | 100 | 100 | | 30 | 30 | 30 | 30 |
| | BR | | 30 | | | | 30 | 30 | 30 | 30 |
| | シリカ1（$N_2SA$：180$m^2$/g） | | 60 | | | | | | | |
| | シリカ2（$N_2SA$：230$m^2$/g） | 60 | | 60 | 60 | 60 | 60 | | 110 | 60 |
| | シリカ3（$N_2SA$：270$m^2$/g） | | | | | | | 60 | | |
| | カーボンブラック | 5 | 5 | 5 | 5 | 5 | 5 | 5 | 5 | 5 |
| | 界面活性剤1 | | | 5 | | 5 | 5 | 5 | 5 | |
| | 界面活性剤2 | | | | | | | | | 5 |
| | シランカップリング剤 | 6.4 | 6.4 | 6.4 | 6.4 | 6.4 | 6.4 | 6.4 | 11.7 | 6.4 |
| | オイル | 35 | 35 | 35 | 35 | 35 | 35 | 35 | 35 | 35 |
| | 老化防止剤 | 2 | 2 | 2 | 2 | 2 | 2 | 2 | 2 | 2 |
| | ワックス | 2 | 2 | 2 | 2 | 2 | 2 | 2 | 2 | 2 |
| | ステアリン酸 | 1 | 1 | 1 | 1 | 1 | 1 | 1 | 1 | 1 |
| | 酸化亜鉛 | 2 | 2 | 2 | 2 | 2 | 2 | 2 | 2 | 2 |
| | 硫黄 | 2 | 2 | 2 | 2 | 2 | 2 | 2 | 2 | 2 |
| | 加硫促進剤1 | 1.5 | 1.5 | 1.5 | 1.5 | 1.5 | 1.5 | 1.5 | 1.5 | 1.5 |
| | 加硫促進剤2 | 0.5 | 0.5 | 0.5 | 0.5 | 0.5 | 0.5 | 0.5 | 0.5 | 0.5 |
| 界面活性剤量X/シランカップリング剤量Y | | 0 | 0 | 0.78 | 0 | 0.78 | 0.78 | 0.78 | 0.43 | 0.78 |
| シリカ量Z／（界面活性剤量X＋シランカップリング剤量Y） | | | | | | 5.26 | 5.26 | 5.26 | 6.59 | 5.26 |
| カーボンブラック量A/シリカ量Z | | | | | | 0.08 | 0.08 | 0.08 | 0.05 | 0.08 |
| 評価結果 | 加工性能（未加硫粘度） | 100 | 110 | 105 | 105 | 110 | 120 | 115 | 105 | 120 |
| | 分散性指数（⊿G*（ペイン効果）） | 100 | 85 | 105 | 95 | 112 | 108 | 108 | 105 | 108 |
| | 低燃費性能（tan δ） | 100 | 90 | 90 | 85 | 109 | 105 | 105 | 105 | 105 |
| | 耐摩耗性能 | 100 | 105 | 95 | 95 | 108 | 110 | 123 | 125 | 110 |

[0196]（第二の本発明）

以下において、第二の本発明の実施例について説明するが、主として第一の本発明と異なる点を中心に説明し、何ら言及がない場合は、第一の本発明と同様である。

（製造例３）

窒素置換されているオートクレーブ反応器に、シクロヘキサン、テトラヒドロフラン、スチレン、及び１，３－ブタジエンを仕込む。反応器の内容物の温度を２０℃に調整後、ｎ－ブチルリチウムを添加して重合を開始する。断熱条件で重合し、最高温度は８５℃に達する。重合転化率が９９％に達する時点でブタジエンを追加し、更に５分重合後、３－ジメチルアミノプロピルトリエトキシシランを変性剤として加えて１５分間反応を行う。重合反応終了後、２，６－ジ－ｔｅｒｔ－ブチル－ｐ－クレゾールを添加する。次いで、スチームストリッピングにより脱溶媒を行い、１１０℃に調温されている熱ロールにより乾燥して変性スチレンブタジエンゴム（変性ＳＢＲ）を得る。

[0197]（製造例４）

変性剤を加えない点を除いて、製造例３と同様に行い、非変性スチレンブタジエンゴム（非変性ＳＢＲ）を得る。

[0198] 実施例及び比較例で使用する各種薬品について、まとめて説明する。

変性ＳＢＲ：変性ＳＢＲ（上記製造例３で調製するＳＢＲ、スチレン量：２１質量％、ビニル量：５５質量％、Ｍｗ：８５万）

非変性ＳＢＲ：非変性ＳＢＲ（上記製造例４で調製するＳＢＲ、スチレン量：２１質量％、ビニル量：５５質量％、Ｍｗ：８５万）

ＢＲ：宇部興産（株）製のＢＲ１５０Ｂ（シス含量：９７質量％）

シリカ１：エボニックデグッサ社製の９０００ＧＲ（$N_2$ＳＡ：２３０$m^2$／ｇ）

シリカ２：東ソー（株）製のＮｉｐｓｉｌ　ＶＮ３（$N_2$ＳＡ：２７０$m^2$／ｇ）

カーボンブラック：キャボットジャパン（株）製のショウブラックＮ２２０（$N_2SA$：１１４$m^2$／ｇ）

界面活性剤１：花王（株）製のラムテルＰＤ－１０４（ポリオキシアルキレンアルケニルエーテル硫酸アンモニウム）

界面活性剤２：花王（株）製のエマールＥ－２７Ｃ（ポリオキシエチレンラウリルエーテル硫酸ナトリウム、アルキル基の炭素数：１２）

シランカップリング剤：ＥＶＯＮＩＫ－ＤＥＧＵＳＳＡ社製のＳｉ３６３

オイル：（株）出光興産（株）製のダイアナプロセスＡＨ－２４（アロマ系プロセスオイル）

老化防止剤：住友化学（株）製のアンチゲン６Ｃ（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）

ワックス：日本精鑞（株）製のオゾエース０３５５

ステアリン酸：日油（株）製の椿

酸化亜鉛：三井金属鉱業（株）製の酸化亜鉛２種

硫黄：細井化学工業（株）製のＨＫ－２００－５（５質量％オイル含有粉末硫黄）

加硫促進剤１：大内新興化学工業（株）製のノクセラーＣＺ（Ｎ－シクロヘキシル－２－ベンゾチアゾリルスルフェンアミド）

加硫促進剤２：大内新興化学工業（株）製のノクセラーＤ（１，３－ジフェニルグアニジン）

[0199] （実施例及び比較例）

表２に示す配合処方にしたがい、（株）神戸製鋼所製の１．７Ｌバンバリーミキサーを用いて、硫黄及び加硫促進剤以外の薬品を設定温度１５０℃の条件下で５分間混練りし、混練り物を得る。次に、得られる混練り物に硫黄及び加硫促進剤を添加し、オープンロールを用いて、１００℃の条件下で５分間練り込み、未加硫ゴム組成物を得る。得られる未加硫ゴム組成物を１７０℃で２０分間プレス加硫して加硫ゴム組成物（加硫ゴムシート）を得る。

[0200] 上記のようにして得られる未加硫ゴム組成物、加硫ゴム組成物を使用して、

上記の評価を行うことで、表２またはそれに近い値が得られる。

[0201]

[表2]

| | | 実施例1 | 実施例2 | 実施例3 | 実施例4 | 実施例5 | 比較例1 | 比較例2 | 比較例3 | 比較例4 |
|---|---|---|---|---|---|---|---|---|---|---|
| 配合量（質量部） | 変性SBR | 70 | 90 | 70 | 70 | 70 | 70 | 90 | | |
| | 非変性SBR | | | | | | | | 70 | 70 |
| | BR | 30 | 10 | 30 | 30 | 30 | 30 | 10 | 30 | 30 |
| | カーボンブラック | 5 | 5 | 5 | 5 | 5 | 5 | 5 | 5 | 5 |
| | シリカ1（$N_2SA$:230$m^2$/g） | 90 | 90 | | 70 | 90 | 90 | 90 | 90 | 90 |
| | シリカ2（$N_2SA$:270$m^2$/g） | | | 90 | | | | | | |
| | シランカップリング剤 | 7.2 | 7.2 | 7.2 | 5.6 | 7.2 | 7.2 | 7.2 | 7.2 | 7.2 |
| | 界面活性剤1 | 2 | 2 | 2 | 2 | | | | 2 | |
| | 界面活性剤2 | | | | | 2 | | | | |
| | 老化防止剤 | 3 | 3 | 3 | 3 | 3 | 3 | 3 | 3 | 3 |
| | ワックス | 2 | 2 | 2 | 2 | 2 | 2 | 2 | 2 | 2 |
| | ステアリン酸 | 2 | 2 | 2 | 2 | 2 | 2 | 2 | 2 | 2 |
| | 酸化亜鉛 | 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 |
| | 加硫促進剤1 | 2 | 2 | 2 | 2 | 2 | 2 | 2 | 2 | 2 |
| | 加硫促進剤2 | 2 | 2 | 2 | 2 | 2 | 2 | 2 | 2 | 2 |
| 界面活性剤量X/シランカップリング剤量Y | | 0.28 | 0.28 | 0.28 | 0.36 | 0.28 | 0 | 0 | 0.28 | 0 |
| シリカ量Z／（界面活性剤量X＋シランカップリング剤量Y） | | 9.78 | 9.78 | 9.78 | 9.21 | 9.78 | | | | |
| カーボンブラック量A/シリカ量Z | | 0.06 | 0.06 | 0.06 | 0.07 | 0.06 | | | | |
| 評価結果 | 加工性能（未加硫粘度） | 112 | 115 | 122 | 118 | 111 | 100 | 104 | 101 | 101 |
| | 分散性指数（⊿G*（ペイン効果）） | 120 | 121 | 120 | 122 | 118 | 100 | 99 | 99 | 85 |
| | 低燃費性能 | 118 | 110 | 108 | 115 | 118 | 100 | 82 | 80 | 75 |
| | 耐摩耗性能 | 115 | 101 | 117 | 113 | 114 | 100 | 85 | 95 | 98 |

[0202]（第三の本発明）

以下において、第三の本発明の実施例について説明するが、主として第一の本発明と異なる点を中心に説明し、何ら言及がない場合は、第一の本発明と同様である。

（製造例５）

窒素置換されているオートクレーブ反応器に、シクロヘキサン、テトラヒドロフラン、スチレン、及び１，３－ブタジエンを仕込む。反応器の内容物の温度を２０℃に調整後、ｎ－ブチルリチウムを添加して重合を開始する。断熱条件で重合し、最高温度は８５℃に達する。重合転化率が９９％に達する時点でブタジエンを追加し、更に５分重合後、３－ジエチルアミノプロピルトリエトキシシランを変性剤として加えて１５分間反応を行う。重合反応終了後、２，６－ジ－ｔｅｒｔ－ブチル－ｐ－クレゾールを添加する。次いで、スチームストリッピングにより脱溶媒を行い、１１０℃に調温されている熱ロールにより乾燥して変性スチレンブタジエンゴム（変性ＳＢＲ）を得る。

[0203]（製造例６）

変性剤を加えない点を除いて、製造例５と同様に行い、非変性スチレンブタジエンゴム（非変性ＳＢＲ）を得る。

[0204] 実施例及び比較例で使用する各種薬品について、まとめて説明する。

変性ＳＢＲ：変性ＳＢＲ（上記製造例５で調製するＳＢＲ、スチレン量：２１質量％、ビニル量：５５質量％、Ｍｗ：８５万）

非変性ＳＢＲ：非変性ＳＢＲ（上記製造例６で調製するＳＢＲ、スチレン量：２１質量％、ビニル量：５５質量％、Ｍｗ：８５万）

ＢＲ：宇部興産（株）製のＢＲ１５０Ｂ（シス含量：９７質量％）

シリカ１：エボニックデグッサ社製の９０００ＧＲ（$N_2$ＳＡ：２３０$m^2$／ｇ）

シリカ２：東ソー（株）製のＮｉｐｓｉｌ　ＶＮ３（$N_2$ＳＡ：２７０$m^2$／ｇ）

カーボンブラック：キャボットジャパン（株）製のショウブラックＮ２２０（$N_2$ＳＡ：１１４$m^2$／ｇ）

界面活性剤１：花王（株）製のラムテルＰＤ－１０４（ポリオキシアルキレンアルケニルエーテル硫酸アンモニウム）

界面活性剤２：花王（株）製のエマールＥ－２７Ｃ（ポリオキシエチレンラウリルエーテル硫酸ナトリウム、アルキル基の炭素数：１２）

シランカップリング剤：エボニックデグッサ社製のシランカップリング剤Ｓｉ２６６（ビス（３－トリエトキシシリルプロピルジスルフィド））

オイル：（株）出光興産（株）製のダイアナプロセスＡＨ－２４（アロマ系プロセスオイル）

老化防止剤：住友化学（株）製のアンチゲン６Ｃ（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）

ワックス：日本精鑞（株）製のオゾエース０３５５

ステアリン酸：日油（株）製の椿

酸化亜鉛：三井金属鉱業（株）製の酸化亜鉛２種

硫黄：細井化学工業（株）製のＨＫ－２００－５（５質量％オイル含有粉末硫黄）

加硫促進剤１：大内新興化学工業（株）製のノクセラーＣＺ（Ｎ－シクロヘキシル－２－ベンゾチアゾリルスルフェンアミド）

加硫促進剤２：大内新興化学工業（株）製のノクセラーＤ（１，３－ジフェニルグアニジン）

[0205] （実施例及び比較例）

表３に示す配合処方にしたがい、（株）神戸製鋼所製の１．７Ｌバンバリーミキサーを用いて、硫黄及び加硫促進剤以外の薬品を設定温度１５０℃の条件下で５分間混練りし、混練り物を得る。次に、得られる混練り物に硫黄及び加硫促進剤を添加し、オープンロールを用いて、１００℃の条件下で５分間練り込み、未加硫ゴム組成物を得る。得られる未加硫ゴム組成物を１７０℃で２０分間プレス加硫して加硫ゴム組成物（加硫ゴムシート）を得る。

[0206] 上記のようにして得られる加硫ゴム組成物を使用して、上記及び下記の評価を行うことで、表３またはそれに近い値が得られる。

[0207] （グリップ性能）

（株）岩本製作所製の粘弾性スペクトロメーターを用いて、温度０℃、初期歪み１０％、動歪み２％、周波数１０Ｈｚの条件下で、加硫ゴムシートの損失正接（ｔａｎδ）を測定し、比較例１のｔａｎδを１００として、グリップ性能指数を算出する。グリップ性能指数が大きいほど、グリップ性能に優れることを示す。

[0208]

[表3]

| | | 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 |
|---|---|---|---|---|---|---|---|---|---|
| 配合量（質量部） | 変性SBR | 100 | 100 | | | 100 | 100 | 100 | 100 |
| | 非変性SBR | | | 100 | 100 | | | | |
| | カーボンブラック | 7 | 7 | 7 | 7 | 7 | 7 | 7 | 7 |
| | シリカ1（$N_2SA$：230$m^2$/g） | 90 | 140 | 90 | 90 | 90 | | 120 | 90 |
| | シリカ2（$N_2SA$：270$m^2$/g） | | | | | | 90 | | |
| | 界面活性剤1 | | | 5 | | 5 | 5 | 5 | |
| | 界面活性剤2 | | | | | | | | 5 |
| | シランカップリング剤 | 7.2 | 11.2 | 7.2 | 7.2 | 7.2 | 7.2 | 9.6 | 7.2 |
| | オイル | 35 | 35 | 35 | 35 | 35 | 35 | 35 | 35 |
| | 老化防止剤 | 2 | 2 | 2 | 2 | 2 | 2 | 2 | 2 |
| | ワックス | 2 | 2 | 2 | 2 | 2 | 2 | 2 | 2 |
| | ステアリン酸 | 1 | 1 | 1 | 1 | 1 | 1 | 1 | 1 |
| | 酸化亜鉛 | 2 | 2 | 2 | 2 | 2 | 2 | 2 | 2 |
| | 硫黄 | 2 | 2 | 2 | 2 | 2 | 2 | 2 | 2 |
| | 加硫促進剤1 | 1.5 | 1.5 | 1.5 | 1.5 | 1.5 | 1.5 | 1.5 | 1.5 |
| | 加硫促進剤2 | 0.5 | 0.5 | 0.5 | 0.5 | 0.5 | 0.5 | 0.5 | 0.5 |
| 界面活性剤量X/シランカップリング剤量Y | | 0 | 0 | 0.69 | 0 | 0.69 | 0.69 | 0.52 | 0.69 |
| シリカ量Z／（界面活性剤量X＋シランカップリング剤量Y） | | | | | | 7.38 | 7.38 | 8.22 | 7.38 |
| カーボンブラック量A/シリカ量Z | | | | | | 0.08 | 0.08 | 0.06 | 0.08 |
| 結果評価 | 分散性指数（⊿G*（ペイン効果）） | 100 | 90 | 100 | 90 | 112 | 108 | 107 | 108 |
| | 低燃費性能 | 100 | 80 | 90 | 85 | 110 | 108 | 105 | 108 |
| | グリップ性能 | 100 | 120 | 110 | 115 | 100 | 110 | 110 | 115 |

[0209]（第四の本発明）

以下において、第四の本発明の実施例について説明するが、主として第一の本発明と異なる点を中心に説明し、何ら言及がない場合は、第一の本発明と同様である。

（製造例７）

窒素置換されているオートクレーブ反応器に、シクロヘキサン、テトラヒドロフラン、スチレン、及び１，３－ブタジエンを仕込む。反応器の内容物の温度を２０℃に調整後、ｎ－ブチルリチウムを添加して重合を開始する。断熱条件で重合し、最高温度は８５℃に達する。重合転化率が９９％に達する時点でブタジエンを追加し、更に５分重合後、３－ジエチルアミノプロピルトリメトキシシランを変性剤として加えて１５分間反応を行う。重合反応終了後、２，６－ジ－ｔｅｒｔ－ブチル－ｐ－クレゾールを添加する。次いで、スチームストリッピングにより脱溶媒を行い、１１０℃に調温されている熱ロールにより乾燥して変性スチレンブタジエンゴム（変性ＳＢＲ）を得る。

[0210]（製造例８）

変性剤を加えない点を除いて、製造例７と同様に行い、非変性スチレンブタジエンゴム（非変性ＳＢＲ）を得る。

[0211] 実施例及び比較例で使用する各種薬品について、まとめて説明する。

変性ＳＢＲ：変性ＳＢＲ（上記製造例７で調製するＳＢＲ、スチレン量：２１質量％、ビニル量：５５質量％、Ｍｗ：８５万）

非変性ＳＢＲ：非変性ＳＢＲ（上記製造例８で調製するＳＢＲ、スチレン量：２１質量％、ビニル量：５５質量％、Ｍｗ：８５万）

ＢＲ：宇部興産（株）製のＢＲ１５０Ｂ（シス含量：９７質量％）

シリカ１：エボニックデグッサ社製のウルトラシルＶＮ３（$N_2$ＳＡ：１８０$m^2$／ｇ）

シリカ２：エボニックデグッサ社製の９０００ＧＲ（$N_2$ＳＡ：２３０$m^2$／ｇ）

シリカ３：東ソー（株）製のＮｉｐｓｉｌ　ＶＮ３（$N_2$ＳＡ：２７０$m^2$／ｇ）

カーボンブラック：キャボットジャパン（株）製のショウブラックＮ１３４（$N_2$ＳＡ：１４８$m^2$／ｇ）

界面活性剤１：花王（株）製のラムテルＰＤ－１０４（ポリオキシアルキレンアルケニルエーテル硫酸アンモニウム）

界面活性剤２：花王（株）製のエマールＥ－２７Ｃ（ポリオキシエチレンラウリルエーテル硫酸ナトリウム、アルキル基の炭素数：１２）

シランカップリング剤：Ｍｏｍｅｎｔｉｖｅ社製のＮＸＴ－Ｚ４５（結合単位Ａ及び結合単位Ｂを含む化合物（結合単位Ａ：５５モル％、結合単位Ｂ：４５モル％））

オイル：（株）出光興産（株）製のダイアナプロセスＡＨ－２４（アロマ系プロセスオイル）

老化防止剤：住友化学（株）製のアンチゲン６Ｃ（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）

ワックス：日本精鑞（株）製のオゾエース０３５５

ステアリン酸：日油（株）製の椿

酸化亜鉛：三井金属鉱業（株）製の酸化亜鉛２種

硫黄：細井化学工業（株）製のＨＫ－２００－５（５質量％オイル含有粉末硫黄）

加硫促進剤１：大内新興化学工業（株）製のノクセラーＣＺ（Ｎ－シクロヘキシル－２－ベンゾチアゾリルスルフェンアミド）

加硫促進剤２：大内新興化学工業（株）製のノクセラーＤ（１，３－ジフェニルグアニジン）

[0212] （実施例及び比較例）

表４に示す配合処方にしたがい、（株）神戸製鋼所製の１．７Ｌバンバリーミキサーを用いて、硫黄及び加硫促進剤以外の薬品を設定温度１５０℃の条件下で５分間混練りし、混練り物を得る。次に、得られる混練り物に硫黄及

び加硫促進剤を添加し、オープンロールを用いて、１００℃の条件下で５分間練り込み、未加硫ゴム組成物を得る。得られる未加硫ゴム組成物を１７０℃で２０分間プレス加硫して加硫ゴム組成物（加硫ゴムシート）を得る。ここで、シリカと界面活性剤は、それぞれ全量を同時に混練機に投入する。

[0213] 上記のようにして得られる未加硫ゴム組成物、加硫ゴム組成物を使用して、上記の評価を行うことで、表４またはそれに近い値が得られる。

[0214]

[表4]

| | | 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 |
|---|---|---|---|---|---|---|---|---|---|---|
| 配合量（質量部） | 変性SBR | 100 | | | | 100 | 40 | 40 | 40 | 40 |
| | 非変性SBR | | 70 | 100 | 100 | | 30 | 30 | 30 | 30 |
| | BR | | 30 | | | | 30 | 30 | 30 | 30 |
| | シリカ1（$N_2SA$：180$m^2/g$） | | 60 | | | | | | | |
| | シリカ2（$N_2SA$：230$m^2/g$） | 60 | | 60 | 60 | 60 | 60 | | 110 | 60 |
| | シリカ3（$N_2SA$：270$m^2/g$） | | | | | | | 60 | | |
| | カーボンブラック | 5 | 5 | 5 | 5 | 5 | 5 | 5 | 5 | 5 |
| | 界面活性剤1 | | | 5 | | 5 | 5 | 5 | 5 | |
| | 界面活性剤2 | | | | | | | | | 5 |
| | シランカップリング剤 | 6.4 | 6.4 | 6.4 | 6.4 | 6.4 | 6.4 | 6.4 | 11.7 | 6.4 |
| | オイル | 35 | 35 | 35 | 35 | 35 | 35 | 35 | 35 | 35 |
| | 老化防止剤 | 2 | 2 | 2 | 2 | 2 | 2 | 2 | 2 | 2 |
| | ワックス | 2 | 2 | 2 | 2 | 2 | 2 | 2 | 2 | 2 |
| | ステアリン酸 | 1 | 1 | 1 | 1 | 1 | 1 | 1 | 1 | 1 |
| | 酸化亜鉛 | 2 | 2 | 2 | 2 | 2 | 2 | 2 | 2 | 2 |
| | 硫黄 | 2 | 2 | 2 | 2 | 2 | 2 | 2 | 2 | 2 |
| | 加硫促進剤1 | 1.5 | 1.5 | 1.5 | 1.5 | 1.5 | 1.5 | 1.5 | 1.5 | 1.5 |
| | 加硫促進剤2 | 0.5 | 0.5 | 0.5 | 0.5 | 0.5 | 0.5 | 0.5 | 0.5 | 0.5 |
| 界面活性剤量X/シランカップリング剤量Y | | 0 | 0 | 0.78 | 0 | 0.78 | 0.78 | 0.78 | 0.43 | 0.78 |
| シリカ量Z／（界面活性剤量X＋シランカップリング剤量Y） | | | | | | 5.26 | 5.26 | 5.26 | 6.59 | 5.26 |
| カーボンブラック量A/シリカ量Z | | | | | | 0.08 | 0.08 | 0.08 | 0.05 | 0.08 |
| 界面活性剤の投入時期 | | | | シリカと同時 | | シリカと同時 | シリカと同時 | シリカと同時 | シリカと同時 | シリカと同時 |
| 評価結果 | 加工性能（未加硫粘度） | 100 | 110 | 105 | 105 | 110 | 120 | 115 | 105 | 120 |
| | 分散性指数（⊿G*（ペイン効果）） | 100 | 85 | 105 | 95 | 112 | 108 | 108 | 105 | 108 |
| | 低燃費性能（tan δ） | 100 | 90 | 90 | 85 | 109 | 105 | 105 | 105 | 105 |
| | 耐摩耗性能 | 100 | 105 | 95 | 95 | 108 | 110 | 123 | 125 | 110 |

[0215]（第五の本発明）

以下において、第五の本発明の実施例について説明するが、主として第一の本発明と異なる点を中心に説明し、何ら言及がない場合は、第一の本発明と同様である。

（製造例９）

窒素置換されているオートクレーブ反応器に、シクロヘキサン、テトラヒドロフラン、スチレン、及び１，３－ブタジエンを仕込む。反応器の内容物の温度を２０℃に調整後、ｎ－ブチルリチウムを添加して重合を開始する。断熱条件で重合し、最高温度は８５℃に達する。重合転化率が９９％に達する時点でブタジエンを追加し、更に５分重合後、３－エチルメチルアミノプロピルトリメトキシシランを変性剤として加えて１５分間反応を行う。重合反応終了後、２，６－ジ－ｔｅｒｔ－ブチル－ｐ－クレゾールを添加する。次いで、スチームストリッピングにより脱溶媒を行い、１１０℃に調温されている熱ロールにより乾燥して変性スチレンブタジエンゴム（変性ＳＢＲ）を得る。

[0216]（製造例１０）

変性剤を加えない点を除いて、製造例９と同様に行い、非変性スチレンブタジエンゴム（非変性ＳＢＲ）を得る。

[0217] 実施例及び比較例で使用する各種薬品について、まとめて説明する。

変性ＳＢＲ：変性ＳＢＲ（上記製造例９で調製するＳＢＲ、スチレン量：２１質量％、ビニル量：５５質量％、Ｍｗ：８５万）

非変性ＳＢＲ：非変性ＳＢＲ（上記製造例１０で調製するＳＢＲ、スチレン量：２１質量％、ビニル量：５５質量％、Ｍｗ：８５万）

ＢＲ：宇部興産（株）製のＢＲ１５０Ｂ（シス含量：９７質量％）

シリカ１：エボニックデグッサ社製の９０００ＧＲ（$N_2$ＳＡ：２３０$m^2$／ｇ）

シリカ２：東ソー（株）製のＮｉｐｓｉｌ　ＶＮ３（$N_2$ＳＡ：２７０$m^2$／ｇ）

カーボンブラック：キャボットジャパン（株）製のショウブラックＮ１３４（$N_2SA$：１４８$m^2$／ｇ）

界面活性剤１：花王（株）製のラムテルＰＤ－１０４（ポリオキシアルキレンアルケニルエーテル硫酸アンモニウム）

界面活性剤２：花王（株）製のエマールＥ－２７Ｃ（ポリオキシエチレンラウリルエーテル硫酸ナトリウム、アルキル基の炭素数：１２）

シランカップリング剤：Ｍｏｍｅｎｔｉｖｅ社製のＮＸＴ－Ｚ４５（結合単位Ａ及び結合単位Ｂを含む化合物（結合単位Ａ：５５モル％、結合単位Ｂ：４５モル％））

オイル：（株）出光興産（株）製のダイアナプロセスＡＨ－２４（アロマ系プロセスオイル）

老化防止剤１：住友化学（株）製のアンチゲン６Ｃ（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）

老化防止剤２：大内新興化学工業（株）製のＴＭＱ（２，２，４－トリメチル－１，２－ジヒドロキノリンの重合物）

ワックス：日本精鑞（株）製のオゾエース０３５５

ステアリン酸：日油（株）製の椿

酸化亜鉛：三井金属鉱業（株）製の酸化亜鉛２種

硫黄：細井化学工業（株）製のＨＫ－２００－５（５質量％オイル含有粉末硫黄）

加硫促進剤１：大内新興化学工業（株）製のノクセラーＤ（１，３－ジフェニルグアニジン）

加硫促進剤２：大内新興化学工業（株）製のノクセラーＭ－Ｐ（Ｍ）（２－メルカプトベンゾチアゾール）

加硫促進剤３：大内新興化学工業（株）製のノクセラーＭＢＴＳ（ジベンゾチアジルジスルフィド）

[0218] （実施例及び比較例）

表５に示す配合処方にしたがい、（株）神戸製鋼所製の１．７Ｌバンバリー

ミキサーを用いて、硫黄及び加硫促進剤以外の薬品を設定温度１５０℃の条件下で５分間混練りし、混練り物を得る。次に、得られる混練り物に硫黄及び加硫促進剤を添加し、オープンロールを用いて、１００℃の条件下で５分間練り込み、未加硫ゴム組成物を得る。得られる未加硫ゴム組成物を１７０℃で２０分間プレス加硫して加硫ゴム組成物（加硫ゴムシート）を得る。

[0219] 上記のようにして得られる未加硫ゴム組成物、加硫ゴム組成物を使用して、上記及び下記の評価を行うことで、表５またはそれに近い値が得られる。

[0220] （グリップ性能）

（株）岩本製作所製の粘弾性スペクトロメーターを用いて、温度０℃、初期歪み１０％、動歪み２％、周波数１０Ｈｚの条件下で、加硫ゴムシートの損失正接（ｔａｎδ）を測定し、比較例１のｔａｎδを１００として、グリップ性能指数を算出する。グリップ性能指数が大きいほど、グリップ性能に優れることを示す。

[0221]

[表5]

| | | 比較例1 | 比較例2 | 比較例3 | 実施例1 | 実施例2 | 実施例3 | 実施例4 |
|---|---|---|---|---|---|---|---|---|
| 配合量（質量部） | 非変性SBR | 80 | 80 | | | | | |
| | 変性SBR | | | 80 | 80 | 80 | 80 | 80 |
| | BR | 20 | 20 | 20 | 20 | 20 | 20 | 20 |
| | シリカ1（$N_2SA$：230$m^2/g$） | 80 | 80 | 80 | 80 | | 120 | 80 |
| | シリカ2（$N_2SA$：270$m^2/g$） | | | | | 80 | | |
| | カーボンブラック | 5 | 5 | 5 | 5 | 5 | 5 | 5 |
| | シランカップリング剤 | 8 | 8 | 8 | 8 | 8 | 12 | 8 |
| | 界面活性剤1 | | 8 | | 8 | 8 | 8 | |
| | 界面活性剤2 | | | | | | | 8 |
| | ステアリン酸 | 1 | 1 | 1 | 1 | 1 | 1 | 1 |
| | ワックス | 2 | 2 | 2 | 2 | 2 | 2 | 2 |
| | 老化防止剤1 | 4 | 4 | 4 | 4 | 4 | 4 | 4 |
| | 老化防止剤2 | 0.3 | 0.3 | 0.3 | 0.3 | 0.3 | 0.3 | 0.3 |
| | 酸化亜鉛 | 2.5 | 2.5 | 2.5 | 2.5 | 2.5 | 2.5 | 2.5 |
| | 加硫促進剤1 | 0.8 | 0.8 | 0.8 | 0.8 | 0.8 | 0.8 | 0.8 |
| | 加硫促進剤2 | 0.8 | 0.8 | 0.8 | 0.8 | 0.8 | 0.8 | 0.8 |
| | 加硫促進剤3 | 0.9 | 0.9 | 0.9 | 0.9 | 0.9 | 0.9 | 0.9 |
| | 硫黄 | 1.5 | 1.5 | 1.5 | 1.5 | 1.5 | 1.5 | 1.5 |
| 界面活性剤量X/シランカップリング剤量Y | | 0 | 1 | 0 | 1 | 1 | 0.67 | 1 |
| シリカ量Z／（界面活性剤量X+シランカップリング剤量Y） | | | | | 5 | 5 | 6 | 5 |
| カーボンブラック量A/シリカ量Z | | | | | 0.06 | 0.06 | 0.04 | 0.06 |
| 評価結果 | 加工性能（未加硫粘度） | 100 | 140 | 80 | 135 | 155 | 120 | 130 |
| | 分散性指数（⊿G*（ペイン効果）） | 100 | 105 | 110 | 125 | 130 | 125 | 120 |
| | 低燃費性能（tan δ） | 100 | 105 | 110 | 125 | 120 | 130 | 120 |
| | グリップ性能 | 100 | 95 | 105 | 118 | 110 | 115 | 113 |

# 請求の範囲

[請求項1] ＳｉＯＲ基（Ｒは、水素原子又は炭化水素基）を有するスチレンブタジエンゴムを３０質量％以上含むゴム成分と、窒素吸着比表面積が２１０ｍ$^2$／ｇ以上のシリカをゴム成分１００質量部に対して５０質量部以上と、ポリオキシアルキレンアルケニルエーテル硫酸エステル塩、ポリオキシアルキレンアルキルエーテル硫酸エステル塩からなる群より選択される少なくとも１種の界面活性剤とを含むタイヤ用ゴム組成物。

[請求項2] 前記界面活性剤の含有量Ｘ（質量部）と、シランカップリング剤の含有量Ｙ（質量部）の比率Ｘ／Ｙが０．０５～２０である請求項１記載のタイヤ用ゴム組成物。

[請求項3] 前記シリカの含有量Ｚ（質量部）と、前記界面活性剤の含有量Ｘ（質量部）と、シランカップリング剤の含有量Ｙ（質量部）の比率Ｚ／（Ｘ＋Ｙ）が３～３０である請求項１又は２記載のタイヤ用ゴム組成物。

[請求項4] 前記界面活性剤が、ポリオキシアルキレンアルケニルエーテル硫酸エステル塩である請求項１～３のいずれかに記載のタイヤ用ゴム組成物。

[請求項5] 請求項１～４のいずれかに記載のゴム組成物を用いて作製したタイヤ部材を有する空気入りタイヤ。

[請求項6] ＳｉＯＲ基（Ｒは、水素原子又は炭化水素基）を有するスチレンブタジエンゴムを３０質量％以上含み、ゴム成分１００質量％中のスチレンブタジエンゴムの合計含有量が７０～９０質量％、ブタジエンゴムの含有量が１０～３０質量％であるゴム成分と、窒素吸着比表面積が２１０ｍ$^2$／ｇ以上のシリカをゴム成分１００質量部に対して５０質量部以上と、ポリオキシアルキレンアルケニルエーテル硫酸エステル塩、ポリオキシアルキレンアルキルエーテル硫酸エステル塩からなる群より選択される少なくとも１種の界面活性剤とを含むタイヤ用ゴム

組成物。

[請求項7] 前記界面活性剤の含有量Ｘ（質量部）と、シランカップリング剤の含有量Ｙ（質量部）の比率Ｘ／Ｙが０．０５～２０である請求項６記載のタイヤ用ゴム組成物。

[請求項8] 前記シリカの含有量Ｚ（質量部）と、前記界面活性剤の含有量Ｘ（質量部）と、シランカップリング剤の含有量Ｙ（質量部）の比率Ｚ／（Ｘ＋Ｙ）が３～３０である請求項６又は７記載のタイヤ用ゴム組成物。

[請求項9] 前記界面活性剤が、ポリオキシアルキレンアルケニルエーテル硫酸エステル塩である請求項６～８のいずれかに記載のタイヤ用ゴム組成物。

[請求項10] 請求項６～９のいずれかに記載のゴム組成物を用いて作製したタイヤ部材を有する空気入りタイヤ。

[請求項11] ＳｉＯＲ基（Ｒは、水素原子又は炭化水素基）を有するスチレンブタジエンゴムを３０質量％以上含むゴム成分と、窒素吸着比表面積が２１０ｍ$^2$／ｇ以上のシリカをゴム成分１００質量部に対して７０～１３０質量部と、ポリオキシアルキレンアルケニルエーテル硫酸エステル塩、ポリオキシアルキレンアルキルエーテル硫酸エステル塩からなる群より選択される少なくとも１種の界面活性剤とを含むタイヤ用ゴム組成物。

[請求項12] 前記界面活性剤の含有量Ｘ（質量部）と、シランカップリング剤の含有量Ｙ（質量部）の比率Ｘ／Ｙが０．０５～２０である請求項１１記載のタイヤ用ゴム組成物。

[請求項13] 前記シリカの含有量Ｚ（質量部）と、前記界面活性剤の含有量Ｘ（質量部）と、シランカップリング剤の含有量Ｙ（質量部）の比率Ｚ／（Ｘ＋Ｙ）が３～３０である請求項１１又は１２記載のタイヤ用ゴム組成物。

[請求項14] 前記界面活性剤が、ポリオキシアルキレンアルケニルエーテル硫酸エ

ステル塩である請求項１１～１３のいずれかに記載のタイヤ用ゴム組成物。

[請求項15] 請求項１１～１４のいずれかに記載のゴム組成物を用いて作製したタイヤ部材を有する空気入りタイヤ。

[請求項16] ＳｉＯＲ基（Ｒは、水素原子又は炭化水素基）を有するスチレンブタジエンゴムを３０質量％以上含むゴム成分と、窒素吸着比表面積が２１０ｍ$^2$／ｇ以上のシリカをゴム成分１００質量部に対して５０質量部以上と、ポリオキシアルキレンアルケニルエーテル硫酸エステル塩、ポリオキシアルキレンアルキルエーテル硫酸エステル塩からなる群より選択される少なくとも１種の界面活性剤とを含み、前記シリカと前記界面活性剤とが、同一の時期にゴムと混練りされる、タイヤ用ゴム組成物。

[請求項17] 前記界面活性剤の含有量Ｘ（質量部）と、シランカップリング剤の含有量Ｙ（質量部）の比率Ｘ／Ｙが０．０５～２０である請求項１６記載のタイヤ用ゴム組成物。

[請求項18] 前記シリカの含有量Ｚ（質量部）と、前記界面活性剤の含有量Ｘ（質量部）と、シランカップリング剤の含有量Ｙ（質量部）の比率Ｚ／（Ｘ＋Ｙ）が３～３０である請求項１６又は１７記載のタイヤ用ゴム組成物。

[請求項19] 前記界面活性剤が、ポリオキシアルキレンアルケニルエーテル硫酸エステル塩である請求項１６～１８のいずれかに記載のタイヤ用ゴム組成物。

[請求項20] 請求項１６～１９のいずれかに記載のゴム組成物を用いて作製したタイヤ部材を有する空気入りタイヤ。

[請求項21] ＳｉＯＲ基（Ｒは、水素原子又は炭化水素基）を有するスチレンブタジエンゴムを３０質量％以上含むゴム成分と、窒素吸着比表面積が２１０ｍ$^2$／ｇ以上のシリカをゴム成分１００質量部に対して５０質量部以上と、カーボンブラックをゴム成分１００質量部に対して２質量

部以上と、ポリオキシアルキレンアルケニルエーテル硫酸エステル塩、ポリオキシアルキレンアルキルエーテル硫酸エステル塩からなる群より選択される少なくとも１種の界面活性剤とを含むタイヤ用ゴム組成物。

[請求項22] 前記界面活性剤の含有量Ｘ（質量部）と、シランカップリング剤の含有量Ｙ（質量部）の比率Ｘ／Ｙが０．０５～２０である請求項２１記載のタイヤ用ゴム組成物。

[請求項23] 前記シリカの含有量Ｚ（質量部）と、前記界面活性剤の含有量Ｘ（質量部）と、シランカップリング剤の含有量Ｙ（質量部）の比率Ｚ／（Ｘ＋Ｙ）が３～３０である請求項２１又は２２記載のタイヤ用ゴム組成物。

[請求項24] 前記カーボンブラックの含有量Ａ（質量部）と、前記シリカの含有量Ｚ（質量部）の比率Ａ／Ｚが０．０１～１２０である請求項２１～２３のいずれかに記載のタイヤ用ゴム組成物。

[請求項25] 前記界面活性剤が、ポリオキシアルキレンアルケニルエーテル硫酸エステル塩である請求項２１～２４のいずれかに記載のタイヤ用ゴム組成物。

[請求項26] 請求項２１～２５のいずれかに記載のゴム組成物を用いて作製したタイヤ部材を有する空気入りタイヤ。

# INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.
PCT/JP2019/008263

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER
Int. Cl. C08L15/00(2006.01)i, B60C1/00(2006.01)i, C08K3/013(2018.01)i, C08K3/04(2006.01)i, C08K3/36(2006.01)i, C08K5/54(2006.01)i, C08L9/00(2006.01)i, C08L9/06(2006.01)i, C08L71/00(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)
Int. Cl. C08L15/00, B60C1/00, C08K3/013, C08K3/04, C08K3/36, C08K5/54, C08L9/00, C08L9/06, C08L71/00

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 1971-2019
Registered utility model specifications of Japan 1996-2019
Published registered utility model applications of Japan 1994-2019

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

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

| Category* | Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages | Relevant to claim No. |
|---|---|---|
| A | JP 2016-151017 A (SUMITOMO RUBBER INDUSTRIES, LTD.) 22 August 2016 & US 2018/0030250 A1 & WO 2016/133029 A1 & EP 3255089 A1 & CN 107207795 A | 1-26 |
| A | JP 2016-044201 A (SUMITOMO RUBBER INDUSTRIES, LTD.) 04 April 2016 (Family: none) | 1-26 |
| A | JP 2010-209256 A (JSR CORP.) 24 September 2010 & US 2011/0319519 A1 & WO 2010/104149 A1 & EP 2407507 A1 & KR 10-2011-0131217 A & CN 102348748 A | 1-26 |
| P, A | JP 2018-188567 A (SUMITOMO RUBBER INDUSTRIES, LTD.) 29 November 2018 & EP 3401121 A1 & CN 108864497 A | 1-26 |

☐ 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
"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 | Date of mailing of the international search report |
|---|---|
| 08.05.2019 | 21.05.2019 |
| Name and mailing address of the ISA/<br>Japan Patent Office<br>3-4-3, Kasumigaseki, Chiyoda-ku,<br>Tokyo 100-8915, Japan | Authorized officer<br><br>Telephone No. |

国際調査報告

国際出願番号　ＰＣＴ／ＪＰ２０１９／００８２６３

Ａ．　発明の属する分野の分類（国際特許分類（ＩＰＣ））

Int.Cl.　C08L15/00(2006.01)i, B60C1/00(2006.01)i, C08K3/013(2018.01)i, C08K3/04(2006.01)i, C08K3/36(2006.01)i, C08K5/54(2006.01)i, C08L9/00(2006.01)i, C08L9/06(2006.01)i, C08L71/00(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.　C08L15/00, B60C1/00, C08K3/013, C08K3/04, C08K3/36, C08K5/54, C08L9/00, C08L9/06, C08L71/00

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　１９７１－２０１９年
日本国実用新案登録公報　１９９６－２０１９年
日本国登録実用新案公報　１９９４－２０１９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）

CAplus/REGISTRY (STN)

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 2016-151017 A (住友ゴム工業株式会社) 2016.08.22, & US 2018/0030250 A1 & WO 2016/133029 A1 & EP 3255089 A1 & CN 107207795 A | 1-26 |
| A | JP 2016-044201 A (住友ゴム工業株式会社) 2016.04.04, (ファミリーなし) | 1-26 |

☑　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、一般的技術水準を示すもの
「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
「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
「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 | 国際調査報告の発送日 |
|---|---|
| ０８．０５．２０１９ | ２１．０５．２０１９ |


国際調査機関の名称及びあて先
日本国特許庁（ＩＳＡ／ＪＰ）
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）　４Ｊ　６１９１
横山　法緒
電話番号　０３－３５８１－１１０１　内線　３４５７

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 |
|---|---|---|
| Ａ | JP 2010-209256 A (ＪＳＲ株式会社) 2010.09.24, & US 2011/0319519 A1 & WO 2010/104149 A1 & EP 2407507 A1 & KR 10-2011-0131217 A & CN 102348748 A | 1-26 |
| Ｐ，Ａ | JP 2018-188567 A (住友ゴム工業株式会社) 2018.11.29, & EP 3401121 A1 & CN 108864497 A | 1-26 |