

(19) 日本国特許庁(JP)

(12) 公表特許公報(A)

(11) 特許出願公表番号

**特表2005-511845****(P2005-511845A)**(43) 公表日 **平成17年4月28日(2005.4.28)**(51) Int.Cl.<sup>7</sup>**C08L 101/00****C08K 3/04**

F I

C O 8 L 101/00

C O 8 K 3/04

テーマコード (参考)

4 J O O 2

審査請求 未請求 予備審査請求 有 (全 24 頁)

(21) 出願番号 特願2003-551204 (P2003-551204)  
 (86) (22) 出願日 平成14年11月21日 (2002.11.21)  
 (85) 翻訳文提出日 平成16年6月7日 (2004.6.7)  
 (86) 国際出願番号 PCT/US2002/037439  
 (87) 国際公開番号 W02003/050182  
 (87) 国際公開日 平成15年6月19日 (2003.6.19)  
 (31) 優先権主張番号 10/010,764  
 (32) 優先日 平成13年12月7日 (2001.12.7)  
 (33) 優先権主張国 米国 (US)

(71) 出願人 391010758  
 キャボット コーポレイション  
 CABOT CORPORATION  
 アメリカ合衆国, マサチューセッツ O2  
 210-2019, ボストン, トゥー シ  
 ーポート レーン, スイート 1300  
 (74) 代理人 100099759  
 弁理士 青木 篤  
 (74) 代理人 100077517  
 弁理士 石田 敬  
 (74) 代理人 100087413  
 弁理士 古賀 哲次  
 (74) 代理人 100111903  
 弁理士 永坂 友康

最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 エラストマー複合物、エラストマー配合物及び方法

## (57) 【要約】

改善性質を有するエラストマー複合物及びエラストマー配合物だけでなく、選択されたストラクチャー値及び表面積値を有する微粒子状充填剤を含むエラストマー複合物及びエラストマー配合物も開示される。エラストマー複合物及びエラストマー配合物を作製及び使用する方法もまた開示される。

## 【特許請求の範囲】

## 【請求項 1】

エラストマー複合物であって、エラストマーと、該エラストマー中に分散された微粒子状充填剤とを含み、しかも該微粒子状充填剤が、式  $CDBP \quad (BET \div 2.9)$  を満たすストラクチャー値及び表面積値を有する少なくとも 1 種のカーボンブラックを含むエラストマー複合物。

## 【請求項 2】

少なくとも 60 phr の微粒子状充填剤を含む、請求項 1 に記載のエラストマー複合物。

## 【請求項 3】

少なくとも 60 phr の、式  $CDBP \quad (BET \div 2.9)$  を満たすカーボンブラックを含む、請求項 1 に記載のエラストマー複合物。

## 【請求項 4】

微粒子状充填剤が、式  $CDBP \quad (BET \div 2.9)$  を満たさないストラクチャー値及び表面積値を有する少なくとも 1 種の追加の充填剤物質を更に含む、請求項 1 に記載のエラストマー複合物。

## 【請求項 5】

エラストマーが、天然ゴム、ブタジエン、スチレン、イソプレン、イソブチレン、2, 3 - ジアルキル - 1, 3 - ブタジエン (ここで、アルキル基は C1 から C3 のアルキルである)、アクリロニトリル、エチレン又はプロピレンのホモポリマー、コポリマー又はターポリマーから選択される、請求項 1 に記載のエラストマー複合物。

## 【請求項 6】

エラストマーが、天然ゴムを含む、請求項 1 に記載のエラストマー複合物。

## 【請求項 7】

オゾン亀裂防止剤、酸化防止剤、可塑剤、加工助剤、樹脂、難燃剤、エキステンダー油、滑剤及びそれらの組合わせから選択された少なくとも 1 種の添加剤を更に含む、請求項 1 に記載のエラストマー複合物。

## 【請求項 8】

エラストマー複合物が、ダイ C を用いての ASTM - D 624 試験方法により測定される場合の少なくとも約 160 N/mm の引裂き強さを有する、請求項 1 に記載のエラストマー複合物。

## 【請求項 9】

エラストマー複合物であって、汎用ゴムと、該汎用ゴム中に分散された微粒子状充填剤とを含み、しかも該微粒子状充填剤が、ダイ C を用いての ASTM - D 624 試験方法により測定される場合の少なくとも約 160 N/mm の引裂き強さを達成するために、該汎用ゴム中の有効な少なくとも 1 種のカーボンブラックの量を含むエラストマー複合物。

## 【請求項 10】

エラストマー複合物であって、エラストマーと、該エラストマー中に分散された微粒子状充填剤とを含み、しかも該エラストマー複合物が

ASTM - D 1415 試験方法に従って測定して約 65 より大きいショアー A 硬度、  
ASTM - D 412 試験方法に従って測定して 30 メガパスカルより大きい引張り強さ、  
及び

ASTM - D 412 試験方法に従って測定して少なくとも約 600 % の破断点伸びを有し、該微粒子状充填剤は、式  $CDBP \quad (BET \div 2.9)$  を満たすストラクチャー値及び表面積値を有するカーボンブラックを含むエラストマー複合物。

## 【請求項 11】

ASTM D - 624 試験方法により測定される場合の少なくとも 160 N/mm の引裂き強さを有する、請求項 10 に記載のエラストマー複合物。

## 【請求項 12】

エラストマー複合物であって、汎用ゴムと、該汎用ゴム中に分散された微粒子状充填剤

10

20

30

40

50

とを含み、しかも該微粒子状充填剤が、

A S T M - D 1 4 1 5 試験方法に従って測定して約 6 5 より大きいショアー A 硬度、

A S T M - D 4 1 2 試験方法に従って測定して 3 0 メガパスカルより大きい引張り強さ、及び

A S T M - D 4 1 2 試験方法に従って測定して少なくとも約 6 0 0 % の破断点伸びを達成するために、該汎用ゴム中の有効な少なくとも 1 種のカーボンブラックの量を含むエラストマー複合物。

【請求項 1 3】

カーボンブラックが、式  $C D B P \quad (B E T \div 2.9)$  を満たすストラクチャー値及び表面積値を有する、請求項 1 2 に記載のエラストマー複合物。

10

【請求項 1 4】

エラストマーが、ダイ C を用いての A S T M - D 6 2 4 試験方法により測定される場合の少なくとも約 1 6 0 N / m m の引裂き強さを有する、請求項 1 2 に記載のエラストマー複合物。

【請求項 1 5】

微粒子状充填剤が、式  $C D B P \quad (B E T \div 2.9) - X$  (ここで、X は約 5 である) を満たすストラクチャー値及び表面積値を有する少なくとも 1 種のカーボンブラックを含む、請求項 1 に記載のエラストマー複合物。

【請求項 1 6】

微粒子状充填剤が、式  $C D B P \quad (B E T \div 2.9) - X$  (ここで、X は約 1 0 である) を満たすストラクチャー値及び表面積値を有する少なくとも 1 種のカーボンブラックを含む、請求項 1 に記載のエラストマー複合物。

20

【請求項 1 7】

エラストマー配合物であって、少なくとも 1 種のエラストマー物質と配合されたエラストマー複合物を含み、しかも該エラストマー複合物が、第 1 エラストマーと、第 1 エラストマー中に分散された微粒子状充填剤とを含み、該微粒子状充填剤は、式  $C D B P \quad (B E T \div 2.9) - X$  を満たすストラクチャー値及び表面積値を有する少なくとも 1 種のカーボンブラックを含むエラストマー配合物。

【請求項 1 8】

エラストマー物質が、第 1 エラストマーとは異なるエラストマーを含む、請求項 1 7 に記載のエラストマー配合物。

30

【請求項 1 9】

配合する前のエラストマー複合物が、ダイ C を用いての A S T M - D 6 2 4 試験方法により測定される場合の少なくとも約 1 6 0 N / m m の引裂き強さを有する、請求項 1 7 に記載のエラストマー配合物。

【請求項 2 0】

配合する前のエラストマー複合物が、

A S T M - D 1 4 1 5 試験方法に従って測定して約 6 5 より大きいショアー A 硬度、

A S T M - D 4 1 2 試験方法に従って測定して 3 0 メガパスカルより大きい引張り強さ、及び

A S T M - D 4 1 2 試験方法に従って測定して少なくとも約 6 0 0 % の破断点伸びを有する、請求項 1 7 に記載のエラストマー配合物。

40

【請求項 2 1】

エラストマーと、該エラストマー中に分散された微粒子状充填剤とを含むエラストマー複合物を製造する方法であって、

エラストマーラテックスを含む第 1 流体の連続流を混合帯域に供給し、そして

微粒子状充填剤を含む第 2 流体の連続流を加圧下で該混合帯域に供給して混合物を形成させ、しかも該混合帯域内の第 1 流体と第 2 流体の混合が、該エラストマーラテックスを該微粒子状充填剤で実質的に完全に凝固させるのに十分に強力である

ことを含み、しかも該微粒子状充填剤が、式  $C D B P \quad (B E T \div 2.9) - X$  を満たす

50

ストラクチャー値及び表面積値を有する少なくとも１種のカーボンブラックを含む方法。

【請求項 22】

エラストマー複合物が、ダイ C を用いての ASTM - D 624 試験方法により測定される場合の少なくとも 160 N/mm の引裂き強さを有する、請求項 21 に記載の方法。

【請求項 23】

エラストマー複合物をエラストマー物質と配合してエラストマー配合物を形成させることを更に含む、請求項 21 に記載の方法。

【請求項 24】

エラストマー複合物をエラストマー物質と配合することが、該エラストマー複合物を該エラストマー物質と乾式混合することを含む、請求項 23 に記載の方法。

10

【請求項 25】

エラストマー物質が、追加の充填剤を含む、請求項 23 に記載の方法。

【請求項 26】

エラストマー複合物を追加の充填剤と配合することを更に含む、請求項 21 に記載の方法。

【請求項 27】

エラストマー複合物が、ダイ C を用いての ASTM - D 624 試験方法により測定される場合の少なくとも 160 N/mm の引裂き強さを有する、請求項 21 に記載の方法。

【請求項 28】

エラストマー複合物が、  
ASTM D 1415 試験方法により測定される場合の少なくとも 65 のショアー A 硬度

20

、  
ASTM D 412 試験方法により測定される場合の少なくとも 30 メガパスカルの引張り強さ、及び

ASTM D 412 試験方法により測定される場合の少なくとも 600 % の伸び  
を有する、請求項 21 に記載の方法。

【請求項 29】

微粒子状充填剤が、約 43 から 45 mL / 100 g の CDBP 値及び約 260 から 264 m<sup>2</sup> / g の BET 値を有する少なくとも１種のカーボンブラックを含む、請求項 1 に記載のエラストマー複合物。

30

【請求項 30】

少なくとも１種のカーボンブラックが、エラストマー複合物中のエラストマーの重量を基準として約 50 から 110 phr の充填レベルにて存在する、請求項 29 に記載のエラストマー複合物。

【発明の詳細な説明】

【技術分野】

【0001】

本発明の或る側面は、エラストマー複合物及びエラストマー配合物に関する。他の側面は、エラストマー複合物及びエラストマー配合物を作製する新規方法に関する。

【背景技術】

40

【0002】

微粒子状充填剤が様々な合成エラストマー、天然ゴム又はエラストマー配合物中に分散されているエラストマー組成物から、商業的に重要な数多くの製品が形成される。たとえば、カーボンブラックは、天然ゴム及び他のエラストマー中において、強化剤として広範に用いられる。或るグレードの商業的に入手できるカーボンブラックが用いられ、しかしそれらは単位重量当たりの表面積及びストラクチャーの両方について変動するが、しかし慣用のゴム回分加工技法により制限されてきた。かかるエラストマー組成物から、たとえば自動車用タイヤ、エンジンマウントブッシュ、コンベヤーベルト、風防ガラス用ワイパー、等を含めて、商業的に重要な数多くの製品が形成される。現在利用できる物質及び製造技法を用いて広範な性能特性が達成され得るけれども、改善性質を有するエラストマ

50

一組成物、特に効率的にかつ経済的に製造され得るエラストマー組成物を開発すべき長年のニーズが、当業界に存在してきた。

【発明の開示】

【0003】

本発明の第1の側面によれば、エラストマー複合物であって、エラストマーと、該エラストマー中に分散された微粒子状充填剤とを含むエラストマー複合物が提供される。微粒子状充填剤は、式  $CDBP (BET \div 2.9) - X$  (ここで、 $X$  は0より大きいか又は等しい) を満たすストラクチャー値及び表面積値を有する少なくとも1種のカーボンブラックを含む。かかるカーボンブラックは、以下におけるいくつかの場合において超高表面積/ローストラクチャーカーボンブラックと称される。好ましくは、エラストマーは、天然ゴムである。所望の性能特性、加工特性、等を達成するように、追加成分、たとえばエラストマー複合物に用いるのに知られた数多くの添加剤及び他の充填剤のいずれかが、本エラストマー複合物中に含められ得る。

10

【0004】

本発明の別の側面によれば、エラストマー複合物であって、エラストマーと、該エラストマー中に分散された微粒子状充填剤とを含み、しかもたとえばダイCを用いてのASTM-D624試験方法により測定される場合の、約160N/mmより大きい一層好ましくは約165N/mmより大きい最も好ましくは約170N/mmより大きい引裂き強さを有するエラストマー複合物が提供される。

【0005】

20

本発明の別の側面によれば、エラストマー複合物であって、エラストマーと、該エラストマー中に分散された微粒子状充填剤とを含み、しかもたとえばASTM-D1415試験方法に従って測定される場合の、約65より大きいショアーA硬度、たとえばASTM-D412試験方法に従って測定される場合の、約30メガパスカルより大きい引張り強さ及びたとえばASTM-D412試験方法に従って測定される場合の、約600%より大きい破断点伸びを有するエラストマー複合物が提供される。

【0006】

本発明の別の側面によれば、エラストマー複合物であって、エラストマーと、該エラストマー中に分散された微粒子状充填剤とを含み、しかも該エラストマーがダイCを用いてのASTM-D624試験方法により測定される場合の少なくとも約160N/mmの引裂き強さを有するようになるような量にて、該微粒子状充填剤が少なくとも1種のカーボンブラックを含むエラストマー複合物が提供される。

30

【0007】

本発明の別の側面によれば、エラストマー複合物であって、エラストマーと、該エラストマー中に分散された微粒子状充填剤とを含み、しかも該エラストマーがASTM-D1415試験方法に従って測定される場合の約65より大きいショアーA硬度、ASTM-D412試験方法に従って測定される場合の約30メガパスカルより大きい引張り強さ及びASTM-D412試験方法に従って測定される場合の約600%より大きい破断点伸びを有するようになるような量にて、該微粒子状充填剤が少なくとも1種のカーボンブラックを含むエラストマー複合物が提供される。

40

【0008】

本発明の別の側面によれば、本明細書において連続湿式混合及び凝固と称される方法によりエラストマー中に分散された微粒子状充填剤を含むエラストマー複合物であって、しかもカーボンブラックが式  $CDBP (BET \div 2.9) - X$  (ここで、 $X$  は0より大きいか又は等しい) を満たすストラクチャー値及び表面積値を有するエラストマー複合物が提供される。かかるエラストマー複合物の或る好ましい具体例は、ダイCを用いてのASTM-D624試験方法により測定される場合の少なくとも約160N/mmの引裂き強さを有する。かかるエラストマー複合物の或る他の好ましい具体例は、ASTM-D1415試験方法に従って測定される場合の約65より大きいショアーA硬度、ASTM-D412試験方法に従って測定される場合の約30メガパスカルより大きい引張り強さ及び

50

A S T M - D 4 1 2 試験方法に従って測定される場合の約 6 0 0 % より大きい破断点伸びを有する。

【 0 0 0 9 】

本発明の別の側面によれば、エラストマー物質と配合された上記に開示された少なくとも 1 種のエラストマー複合物を含むエラストマー配合物が提供される。エラストマー物質は、エラストマー複合物中のエラストマーと同じでも異なってもよい少なくとも 1 種のエラストマーを含む。随意に、エラストマー物質は、充填剤、たとえば、エラストマー中に分散されたカーボンブラック、添加剤又は他の充填剤を含む。

【 0 0 1 0 】

本発明の更に別の側面によれば、上記に開示されたエラストマー複合物及びエラストマー配合物を製造する方法が提供される。この方法は、エラストマーと、カーボンブラックを含めて微粒子状充填剤と、随意に他の成分とを配合又は混合することを含む。或る好ましい具体的態様において、該エラストマー複合物は、連続湿式混合及び凝固を含む方法により生成される。同様に、或る好ましい具体的態様において、該エラストマー配合物は、連続湿式混合及び凝固並びにそれに後続してエラストマー複合物中のエラストマーと同じでも異なってもよい少なくとも 1 種のエラストマーを含む追加のエラストマー物質との更なる配合又は混合を含む方法により生成される。随意に、エラストマー物質は、充填剤、たとえば、エラストマー中に分散されたカーボンブラック、添加剤又は他の充填剤を含む。

10

【 0 0 1 1 】

これらの及び他の側面並びに利点は、或る好ましい具体的態様の以下の詳細な論考を考慮すると更に理解されよう。

20

【 0 0 1 2 】

或る好ましい具体的態様の詳細な説明

本明細書に開示されたエラストマー複合物を生成させるための好ましい方法及び装置は、共通に譲渡された米国特許の第 6 , 0 7 5 , 0 8 4 号明細書、第 6 , 0 4 8 , 9 2 3 号明細書及び第 6 , 0 4 0 , 3 6 4 号明細書に記載されており、しかしてそれらの各々の全開示は、これにより、あらゆる目的のために参照することによって本明細書に組み込まれる。かかる方法は、本明細書においていくつかの場合連続湿式混合及び凝固と称される。エラストマー複合物を生成させるための好ましい方法は、エラストマーラテックスを含む第 1 流体の連続流を凝塊反応器の混合帯域（該凝塊反応器は、該混合帯域から排出端まで延在する細長い凝塊帯域を画定する）に供給し、そして微粒子状充填剤を含む第 2 流体の連続流を加圧下で該凝塊反応器の該混合帯域に供給して該エラストマーラテックスとの混合物を形成させることを含む。この混合物は連続流として凝塊反応器の排出端まで進み、そして微粒子状充填剤はエラストマーラテックスを凝固するのに効果がある。一層特定的には、第 2 流体は、凝塊反応器の排出端の前にてエラストマーラテックスを微粒子状充填剤で実質的に完全に凝固させるのに十分に強力に、混合帯域内の第 1 流体と反対方向にて供給される。エラストマー複合物の実質的に連続的な流れが、排出端から排出される。上記に記されたように、これらの方法は、下記においていくつかの場合連続湿式混合及び凝固と称される。

30

40

【 0 0 1 3 】

或る好ましい具体的態様において、微粒子状充填剤スラリーが混合帯域に好ましくは注入流体の連続高速噴流として供給される一方、ラテックス流体は典型的には比較的低速度にて供給される。充填剤スラリーの高速度、流量及び微粒子濃度は、ラテックス流体の混合及び高剪断、凝塊帯域の少なくとも上流部内でのこの混合物の乱流、並びに排出端の前におけるエラストマーラテックスの実質的に完全な凝固を引き起こすのに十分である。かくして、実質的に完全な凝固が、酸又は塩凝固剤を用いる必要なしに、好ましい具体的態様に従って達成され得る。エラストマー複合物を生成させるための好ましい連続流法は、ラテックス流体及び充填剤スラリーを凝塊反応器の混合帯域に連続的にかつ同時に供給して、凝塊帯域においてラテックスと充填剤スラリーの混合物の連続した半制限流を確立さ

50

せることを含む。凝塊反応器の混合帯域中へのラテックス流及びカーボンブラックスラリーの継続供給と共に、「蠕虫」又は小球の形態のエラストマー複合物団粒が、実質的に一定の流れとして凝塊反応器の排出端から排出される。凝塊反応器の排出端における生成物団粒中に遊離ラテックスがほとんど無かつ未分散カーボンブラックがほとんど無い高歩留まり率を達成するために、凝塊反応器の混合帯域へのラテックス流体及びカーボンブラックスラリーの供給量は、精確に計量供給され得る。凝塊反応器の混合帯域中へのカーボンブラックスラリーの高供給速度、及びラテックス流体供給物に対する差速が、ラテックス流体中への微粒子の十分な混合及び分散並びにラテックスの凝固のために、微粒子状充填剤流体噴流の衝突によるラテックスの十分に強力な剪断を達成する際に重要であると信じられる。上記に挙げられたHeller等の特許明細書及びHagopian等の特許明細書においてような、ラテックスと微粒子状充填剤の予備混合を伴う先行技法は、付随コスト及び廃物処分の不利と共に、ラテックス／微粒子混合物を通常の凝固剤溶液に曝すことなく凝固を達成する可能性を認めない。本明細書に開示された新規エラストマー複合物を生成させるための改変された及び代替の適当な方法は、本開示の恩恵が与えられると、当業者に明らかであろう。

10

#### 【0014】

商業的に入手できるカーボンブラック及びカーボンブラックを含む充填剤を含めて、数多くのカーボンブラックが、本明細書に開示されたエラストマー複合物に用いるのに適している。本明細書に特定の開示されたカーボンブラックに加えて、更なるカーボンブラックは、本開示の恩恵が与えられると、当業者に明らかであろう。

20

#### 【0015】

本発明の一つの側面によれば、エラストマー複合物であって、式(1)

$$CDBP \quad (BET \div 2.9) - X \quad (1)$$

(ここで、Xは0より大きい又は等しい)を満たす表面積値及びストラクチャー値を有するカーボンブラックを含むエラストマー複合物が提供される。好ましくはXは0であり、そしてXが0である場合、式(1)はまた、本明細書において「CDBP (BET ÷ 2.9)」と表され得る。

#### 【0016】

式(1)において、ストラクチャー値CDBPは、試料が粉碎された後のジブチルフタレート吸着数であり、そしてASTM D-3493に記載された試験手順に従って測定される。表面積値BETは窒素吸着表面積であり、そしてASTM D-4820に記載された試験手順に従って測定される。この式を満たすカーボンブラックの例はBP1100であり、しかしてBP1100は約43から45 mL / 100 gのCDBP値及び約260から264 m<sup>2</sup> / gのBET値を有する。式(1)を満たす他の好ましいカーボンブラックは、たとえば、BP1180、BP880及びCSX439を包含する。かかる超高表面積／ローストラクチャーカーボンブラックを含むところの本明細書に開示されたエラストマー複合物の或る好ましい具体例は有利な性能特性及び加工特性を有する、ということが今般見出された。

30

#### 【0017】

或る好ましい具体的態様によれば、式(2)

$$CDBP \quad (BET \div 2.9) - X \quad (2)$$

(ここで、Xは好ましくは約5である)を満たす表面積値及びストラクチャー値を有するカーボンブラックを含むエラストマー複合物が、本明細書に開示される。一層好ましいものは、Xが約10である式(2)を満たす表面積値及びストラクチャー値を有するカーボンブラックである。式(2)を満たすカーボンブラックは、式(1)を満たすカーボンブラックの部分群である、ということが認識される。更なる適当な超高表面積／ローストラクチャーは、本開示の恩恵が与えられると、当業者に明らかであろう。

40

#### 【0018】

好ましくは、エラストマー複合物中に少なくとも約60 phrの超高表面積／ローストラクチャーカーボンブラックが存在する。一層好ましくは、エラストマー複合物中に少な

50

くとも約 65 phr のかかる超高表面積 / ローストラクチャーカーボンブラックたとえば少なくとも約 70 phr のかかる超高表面積 / ローストラクチャーカーボンブラックが存在する。連続湿式混合及び凝固により製造されたかかるエラストマー複合物、並びに連続湿式混合及び凝固並びに追加のエラストマー及び / 又は他の充填剤、添加剤、等との後続乾式混合により製造されたエラストマー配合物が、特に好ましい。たとえば高引張り強さ（たとえば、160 N/mm を越える引張り強さ）並びに良好な硬度、引張り強さ及び伸びのような、本明細書に開示された有利なエラストマー複合物性質は、伝統的な強化用カーボンブラックを用いる場合得られない。

#### 【0019】

連続湿式混合及び凝固により製造されたところの超高表面積 / ローストラクチャーカーボンブラックたとえばカーボンブラック BP 1100 を含む天然ゴムエラストマー複合物の引裂き強さは、同じ処方物のしかし乾式混合により生成された天然ゴムエラストマー複合物の引裂き強さ（ダイ C を用いての ASTM - D 624 試験方法により測定される場合）を越える。BP 1100 を含む連続湿式混合及び凝固エラストマー複合物の少なくとも或る好ましい具体例は、約 65 phr 未満の充填剤において 160 N/mm の値を達成する及びより高い充填レベルにおいて 160 N/mm を越える、ということが今般見出された。カーボンブラック BP 1100 は Cabot Corporation から商業的に入手でき、そして上記に記されたように、式 CDBP (BET ÷ 2.9) を満たす表面積値及びストラクチャー値を有する。一層特定的には、上記に記載されたように、BP 1100 は、約 260 から 264 m<sup>2</sup>/g の BET 表面積値及び 43 から 45 mL/100 g の CDBP ストラクチャー値を有する。また、かかる BP 1100 連続湿式混合及び凝固エラストマー複合物の引裂き強さは、式 CDBP (BET ÷ 2.9) を満たさない他の商業的に入手できるカーボンブラックとの乾式混合により生成された比較し得る処方のエラストマー複合物の引裂き強さを有意に越える、ということが今般見出された。

#### 【0020】

超高表面積 / ローストラクチャーカーボンブラック BP 1100 を含みかつ連続湿式混合及び凝固により生成されたエラストマー複合物の引裂き強さが、非超高表面積 / ローストラクチャーカーボンブラックであるカーボンブラック V7H を含みかつ乾式混合により生成された比較し得るエラストマー複合物の引裂き強さを越える、ということも比較引裂き強さデータが示す。BP 1100 を含みかつ連続湿式混合及び凝固により生成されたエラストマー複合物の引裂き強さが、50 と 110 phr の間の被験物充填レベルにおいて、BP 1100 を含むがしかし乾式混合により生成された比較し得るエラストマー複合物の引裂き強さを越える、ということも比較引裂き強さデータが示す。

#### 【0021】

本開示による少なくとも或るエラストマー複合物は、追加のエラストマー、充填剤、他の添加剤、等と配合されるのに適している。すなわち、本明細書に開示されたエラストマー複合物の少なくとも或るものは、本発明の追加のエラストマー複合物を含めて、追加のエラストマー及び / 又は充填剤若しくは他の添加剤、等との引き続く乾式混合により配合され得る。本明細書に開示されたエラストマー複合物と配合されるエラストマー物質は、随意に同じ又は異なるエラストマーを含み、また随意にその中にカーボンブラック及び / 又は他の充填剤若しくは他の添加剤が分散されていてもよい。

#### 【0022】

本発明のエラストマー複合物、特に連続湿式混合及び凝固により製造されたものは、追加のエラストマー物質たとえば第 2 エラストマー又は既に充填剤及び / 若しくは添加剤、等を含むエラストマー複合物との引き続く乾式混合を含めて、当該技術において知られた様々な技法を用いて、エラストマー配合物中に組み込まれ得る。乾式混合は、商業的に利用可能な装置及び技法のようないかなる適当な装置及び技法でもって行われ得る。一つの具体的態様において、パンバリーミキサー、等が用いられる。たとえばエキステンダー油、酸化防止剤、硬化活性剤、追加の微粒子状充填剤、硬化剤（たとえば、酸化亜鉛及びステアリン酸）、等を含めて、他の成分もまた、乾式混合中に追加のエラストマーと共に

10

20

30

40

50



添加され得る。追加の充填剤が後続乾式混合中に添加される具体的態様において、かかる追加の充填剤は、エラストマー複合物中の充填剤と同じ又は異なり得る。エラストマー配合物は、随意に、当業者に知られた更なる加工工程を受け得る。

【 0 0 2 3 】

最初に上記に記載されたような連続湿式混合及び凝固によりエラストマー複合物を製造しそして次いで該エラストマー複合物を追加のエラストマー物質と乾式混合してエラストマー配合物を形成させることを含むところの、エラストマー複合物配合物を生成させる好ましい方法は、米国特許第 6, 0 7 5, 0 8 4 号明細書に記載されており、しかしてその全開示は、これにより、あらゆる目的のために参照することによって本明細書に組み込まれる。この方法は、いくつかの場合において、後続乾式混合を伴う連続湿式混合及び凝固と称され得る。上記に記載されたように、本明細書に開示されたエラストマー複合物の少なくとも或る好ましい具体例は連続湿式混合及び凝固により生成され、そしてエラストマー配合物の少なくとも或る好ましい具体例は後続乾式混合を伴う連続湿式混合及び凝固により生成され得る。或る好ましい具体的態様によれば、エラストマー複合物は、かかる連続湿式混合及び凝固の方法及び装置により、酸又は塩のような伝統的凝固剤を用いる必要なしに連続流法にて生成される。

【 0 0 2 4 】

有利な融通性は、後続乾式混合を伴う連続湿式混合及び凝固を含むところの、エラストマー配合物を作製するための本明細書に開示された方法により達成される。特に、融通性は、連続湿式混合及び凝固において用いられるエラストマーの選択に関して並びに引き続く乾式混合工程において用いられるエラストマーの選択に関して与えられる。同じエラストマー又はエラストマーの混合物が湿式及び乾式混合工程において用いられ得、あるいはその代わりに、異なるエラストマーがいかなる適当な相対重量割合にても用いられ得る。更なる融通性が、追加の充填剤及び他の添加剤、等が湿式混合又は乾式混合のどちらか中に随意に添加され得ることにおいて与えられる。乾式混合は多段配合法であり得る、ということが理解されるべきである。かかる追加の物質は、連続湿式混合及び凝固において用いられるものと同じ又は異なり得る。理論により縛られたくないが、少なくとも或る好ましい具体的態様において、多相エラストマー複合物配合物が後続乾式混合を伴う連続湿式混合及び凝固により生成される、ということが現時点では理解される。すなわち、エラストマー工業において現在一般的に用いられている技法を用いて同定又は観察することは困難であるけれども、エラストマー配合物は、連続湿式混合及び凝固により生成された少なくとも 1 つのエラストマー相並びに後続乾式混合により添加又は生成された別のエラストマー相を含むと理解される。これらの二つの相の混合又は配合の度合及びこれらの二つの相間の境界層が多かれ少なかれ識別できる度合は、たとえばエラストマーの相互親和性、充填剤の充填レベル、充填剤の選択、並びに追加の充填剤が乾式混合中に添加されるかどうか、連続湿式混合及び凝固エラストマーと乾式混合エラストマーの相対重量割合、等を含めて、数多くの因子に依存しよう。

【 0 0 2 5 】

本明細書に開示されたエラストマー複合物に用いるのに適した数多くのエラストマーが、商業的に入手できるか又はそうでなければ公知でありそして公知技法に従って製造される。適当なエラストマーは、天然ゴム（これが好ましい）、並びに 1, 3 - ブタジエン、スチレン、イソプレン、イソブチレン、2, 3 - ジメチル - 1, 3 - ブタジエン、アクリロニトリル、エチレン及びプロピレン、等の他のゴム及びポリマー（たとえば、ホモポリマー、コポリマー、ターポリマー、等、別段記載されている又はそうでなければ文脈から明らかであるのでない限り、すべて本明細書において一般にポリマー又はコポリマーと称される）を包含するが、しかしそれらに制限されない。或る好ましい具体的態様によれば、エラストマーは、示差走査熱量測定法（DSC）により測定される場合の約 - 120 から約 0 の範囲のガラス転移温度（T<sub>g</sub>）を有する。それらの例は、天然ゴム及びその誘導体（塩素化ゴムのような）、スチレン - ブタジエンゴム（SBR）、ポリブタジエン、ポリイソプレン、ポリ（スチレン - コ - ブタジエン）、並びにそれらのいずれかの油増

容誘導体を包含するが、しかしそれらに制限されない。前記のもののいずれかの配合物もまた用いられ得る。

【 0 0 2 6 】

連続湿式混合及び凝固を用いる或る好ましい具体的態様において、適当なエラストマーは、ラテックス流体、たとえば天然又は合成エラストマーラテックス及びラテックス配合物として用いられる。ラテックスは、好ましくは、選択された微粒子状充填剤による凝固に適しており、また最終ゴム製品の予定の目的又は用途に適さねばならない。本明細書に開示されたエラストマー複合物を生成させるために連続湿式混合及び凝固に用いるための適当なエラストマーラテックス又はエラストマーラテックスの適当な配合物を選択することは、本開示の恩恵が与えられると、当業者ができる範囲内にある。例示的エラストマーは、天然ゴム、及び上記に列挙されたその他のエラストマーのラテックスを包含するが、しかしそれらに制限されない。ラテックスは、水性担体液体中にあり得る。その代わりに、液体担体は、炭化水素溶媒であり得る。いずれにしても、エラストマーラテックス流体は、適切な速度、圧力及び濃度にて混合帯域中への制御的連続供給に適さねばならない。適当な合成ゴムラテックスは、たとえば、約 10 から約 70 重量%のスチレン及び約 90 から約 30 重量%のブタジエンのコポリマー（19部のスチレン及び81部のブタジエンのコポリマー、30部のスチレン及び70部のブタジエンのコポリマー、43部のスチレン及び57部のブタジエンのコポリマー並びに50部のスチレン及び50部のブタジエンのコポリマーのような）；ポリブタジエン、ポリイソプレン、ポリクロロプレン、等のような共役ジエンのポリマー及びコポリマー；かかる共役ジエンとそれらと共重合可能なエチレン基含有モノマー（スチレン、メチルスチレン、クロロスチレン、アクリロニトリル、2-ビニルピリジン、5-メチル-2-ビニルピリジン、5-エチル-2-ビニルピリジン、2-メチル-5-ビニルピリジン、アルキル置換アクリレート、ビニルケトン、メチルイソプロペニルケトン、メチルビニルエーテル、並びにアルファメチレンカルボン酸並びにそれらのエステル及びアミド（アクリル酸及びジアルキルアクリル酸アミドのような）のような）とのコポリマーを包含する。また、エチレンと他の高級アルファオレフィン（プロピレン、1-ブテン及び1-ペンテンのような）のコポリマーも適している。

【 0 0 2 7 】

本明細書に開示されたエラストマー配合物に用いるのに適したエラストマー、すなわち、開示されたエラストマー複合物への添加に適したエラストマーは、商業的に入手できるか又はそうでなければ公知でありそして公知技法に従って製造される数多くのエラストマーを包含する。例示的エラストマーは、エラストマー複合物に用いるために上記に列挙されたものを包含する。エラストマー配合物特に連続湿式混合及び凝固並びに追加のエラストマーとの後続乾式混合により生成されたものの或る好ましい具体的態様において、乾式混合工程中の追加のエラストマーは、連続湿式混合及び凝固に用いるために上記に列挙されたものを含めて、最終製品の予定の使用又は用途に適したいかなるエラストマー又はエラストマーの混合物でもあり得る。或る好ましい具体的態様によれば、連続湿式混合及び凝固において用いられるエラストマーラテックスは天然ゴムラテックスであり、そして乾式混合工程において用いられる追加のエラストマーはブタジエンゴム（BR）である。かかる好ましい具体的態様において、ブタジエンゴムは、好ましくは、エラストマー複合物配合物の副相又は副成分を形成し、しかして最も好ましくはエラストマー複合物配合物中の総エラストマーの10重量%から50重量%である。或る他の好ましい具体的態様によれば、連続湿式混合及び凝固において用いられるエラストマーラテックスは天然ゴムラテックスであり、そして乾式混合工程において用いられる追加のエラストマーはスチレン-ブタジエンゴム（SBR）である。かかる好ましい具体的態様において、SBRは、好ましくは、エラストマー複合物配合物の主相又は主成分を形成し、しかして最も好ましくはエラストマー複合物配合物中の総エラストマーの50重量%から90重量%である。或る他の好ましい具体的態様によれば、追加のエラストマーは、天然ゴムである。或る他の好ましい具体的態様によれば、連続湿式混合及び凝固において用いられるエラストマーラテックスはブタジエンゴムラテックスであり、そして乾式混合工程において用いられる追加

のエラストマーはSBRである。かかる好ましい具体的態様において、SBRは、好ましくは、エラストマー複合物配合物中の総エラストマーの10重量%から90重量%である。或る他の好ましい具体的態様によれば、連続湿式混合及び凝固において用いられるエラストマーラテックスはブタジエンゴムラテックスであり、そして乾式混合工程において用いられる追加のエラストマーは天然ゴムである。かかる好ましい具体的態様において、天然ゴムは、好ましくは、エラストマー複合物配合物の副成分又は副相であり、しかして最も好ましくはエラストマー複合物配合物中の総エラストマーの10重量%から50重量%である。連続湿式混合及び凝固においてブタジエンゴムラテックスを用いる或る他の好ましい具体的態様によれば、追加のエラストマーは、追加のブタジエンゴムである。或る他の好ましい具体的態様によれば、連続湿式混合及び凝固において用いられるエラストマーラテックスはSBRであり、そして追加のエラストマーはブタジエンゴムである。かかる好ましい具体的態様において、ブタジエンゴムは、好ましくは、エラストマー複合物配合物中の総エラストマーの10重量%から90重量%である。或る他の好ましい具体的態様によれば、連続湿式混合及び凝固において用いられるエラストマーラテックスはSBRであり、そして追加のエラストマーは天然ゴムである。かかる好ましい具体的態様において、天然ゴムは、好ましくは、主成分又は主相であり、しかして最も好ましくはエラストマー複合物配合物中の総エラストマーの50重量%から90重量%である。或る他の好ましい具体的態様において、SBRが湿式混合及び乾式混合工程の両方において用いられ、かくしてエラストマー複合物配合物中のエラストマーの本質的に100%である。

10

20

30

#### 【0028】

連続湿式混合及び凝固において用いられるエラストマーラテックスが天然ゴムラテックスを含む場合、天然ゴムラテックスは、フィールドラテックス又はラテックス濃厚物（たとえば蒸発、遠心分離又はクリーニングにより生成される）を含み得る。かかる具体的態様における天然ゴムラテックスは、好ましくは、カーボンブラックによる凝固に適している。ラテックスは、典型的には、水性担体液体中にて与えられる。その代わりに、液体担体は、炭化水素溶媒であり得る。いずれにしても、天然ゴムラテックス流体は、適切な速度、圧力及び濃度にて混合帯域中への制御的連続供給に適さねばならない。天然ゴムラテックスの周知の不安定性は、有利には、連続湿式混合及び凝固を用いる或る好ましい具体的態様において適応され、しかしてこれらの具体的態様において、天然ゴムラテックスは、凝塊反応器の混合帯域において高い速度及び運動エネルギーのカーボンブラックスラリー供給物流噴流に遭遇して半制限乱流中に連行されるまで、系の全体にわたって比較的低い圧力及び低い剪断に付される。或る好ましい具体的態様において、たとえば、天然ゴムは、約5 psigの圧力において、約3～12 ft毎秒一層好ましくは約4～6 ft毎秒の範囲の供給速度にて混合帯域に供給される。適当なラテックス又はラテックスの配合物の選択は、本開示の恩恵及び当業界において一般的に十分に認識されている選択基準の知識が与えられると、十分に当業者ができる範囲内にある。

40

50

60

70

80

90

100

110

120

130

140

150

160

170

180

190

200

210

220

230

240

250

260

270

280

290

300

310

320

330

340

350

360

370

380

390

400

410

420

430

440

450

460

470

480

490

500

510

520

530

540

550

560

570

580

590

600

610

620

630

640

650

660

670

680

690

700

710

720

730

740

750

760

770

780

790

800

810

820

830

840

850

860

870

880

890

900

910

920

930

940

950

960

970

980

990

1000

1010

1020

1030

1040

1050

1060

1070

1080

1090

1100

1110

1120

1130

1140

1150

1160

1170

1180

1190

1200

1210

1220

1230

1240

1250

1260

1270

1280

1290

1300

1310

1320

1330

1340

1350

1360

1370

1380

1390

1400

1410

1420

1430

1440

1450

1460

1470

1480

1490

1500

1510

1520

1530

1540

1550

1560

1570

1580

1590

1600

1610

1620

1630

1640

1650

1660

1670

1680

1690

1700

1710

1720

1730

1740

1750

1760

1770

1780

1790

1800

1810

1820

1830

1840

1850

1860

1870

1880

1890

1900

1910

1920

1930

1940

1950

1960

1970

1980

1990

2000

2010

2020

2030

2040

2050

2060

2070

2080

2090

2100

2110

2120

2130

2140

2150

2160

2170

2180

2190

2200

2210

2220

2230

2240

2250

2260

2270

2280

2290

2300

2310

2320

2330

2340

2350

2360

2370

2380

2390

2400

2410

2420

2430

2440

2450

2460

2470

2480

2490

2500

2510

2520

2530

2540

2550

2560

2570

2580

2590

2600

2610

2620

2630

2640

2650

2660

2670

2680

2690

2700

2710

2720

2730

2740

2750

2760

2770

2780

2790

2800

2810

2820

2830

2840

2850

2860

2870

2880

2890

2900

2910

2920

2930

2940

2950

2960

2970

2980

2990

3000

3010

3020

3030

3040

3050

3060

3070

3080

3090

3100

3110

3120

3130

3140

3150

3160

3170

3180

3190

3200

3210

3220

3230

3240

3250

3260

3270

3280

3290

可能なカーボンブラックを含む。或る好ましい具体的態様によれば、本明細書に開示されたエラストマー複合物は、エラストマーと、該エラストマー中に分散された微粒子状充填剤とを含み、しかも該微粒子状充填剤は、

A S T M - D 1 4 1 5 試験方法に従って測定して約 6 5 より大きいショアー A 硬度、

A S T M - D 4 1 2 試験方法に従って測定して 3 0 メガパスカルより大きい引張り強さ、及び

A S T M - D 4 1 2 試験方法に従って測定して少なくとも約 6 0 0 % の破断点伸び

を達成するために、エラストマー中の選択された濃度にて有効な又は十分な少なくとも 1 種のカーボンブラックを含む。

#### 【 0 0 3 1 】

或るかかる好ましい具体的態様において、エラストマー複合物は、エラストマーと、該エラストマー中に分散された微粒子状充填剤とを含み、しかも該エラストマー複合物は、約 6 5 より大きいショアー A 硬度、約 3 0 メガパスカルより大きい引張り強さ及び約 6 0 0 % より大きい破断点伸びを有する。好ましい具体例は、少なくとも 1 種の超高表面積 / ローストラクチャーカーボンブラック、一層好ましくは少なくとも 1 種の超高表面積 / ローストラクチャーカーボンブラックを含む。

#### 【 0 0 3 2 】

随意に、エラストマー複合物において用いられる充填剤は、上記のカーボンブラックに加えて、1 種又はそれ以上の物質を含む。連続湿式混合及び凝固により製造される具体的態様において、並びに連続湿式混合及び凝固並びに後続乾式混合により製造されるところの 20  
本明細書に開示されたエラストマー配合物の具体例について、エラストマー複合物のカーボンブラック充填剤は、本明細書に開示された原理に従ってスラリー化されそして混合帯域に供給され得る他の物質も含み得る。適当な追加の物質は、たとえば、導電性充填剤、強化用充填剤、短繊維（典型的には、4 0 未満の L / D アスペクト比を有する）を含む充填剤、フレーク、等を包含する。かくして、本明細書に開示されたエラストマー複合物において用いられ得る例示的微粒子状充填剤は、たとえば、他のカーボンブラック、フュームドシリカ、沈降シリカ、シリカ被覆カーボンブラックのような被覆カーボンブラック、有機基が結合されているもののような変性カーボンブラック、及び金属処理カーボンブラック（たとえば、ケイ素処理カーボンブラック）を含めて処理カーボンブラックを単独で又は互いに組み合わせてのどちらかにて包含する。適当な変性カーボンブラックは、米 30  
国特許第 5 , 8 5 1 , 2 8 0 号明細書、第 5 , 6 7 2 , 1 9 8 号明細書、第 6 , 0 4 2 , 6 4 3 号明細書、第 5 , 9 0 0 , 0 2 9 号明細書及び第 5 , 5 5 9 , 1 6 9 号明細書並びに米国特許出願公開第 0 9 / 2 5 7 , 2 3 7 号明細書（それらの全開示は、これにより、あらゆる目的のために参照することによって組み込まれる）に開示されたものを包含する。適当な処理カーボンブラック及び被覆カーボンブラックは公知であり、そして米国特許第 5 , 9 1 6 , 9 3 4 号明細書、第 5 , 8 3 0 , 9 3 0 号明細書、第 6 , 0 2 8 , 1 3 7 号明細書、第 6 , 0 0 8 , 2 7 2 号明細書、第 5 , 9 1 9 , 8 4 1 号明細書、第 6 , 0 1 7 , 9 8 0 号明細書、第 5 , 9 0 4 , 7 6 2 号明細書、第 6 , 0 5 7 , 3 8 7 号明細書及び第 6 , 2 1 1 , 2 7 9 号明細書並びに米国特許出願公開第 0 9 / 3 9 2 , 8 0 3 号明細書及び第 0 9 / 8 1 3 , 4 3 9 号明細書（それらの全開示は、これにより、あらゆる目的 40  
のために参照することによって組み込まれる）に開示されたものを包含する。たとえば、該ケイ素処理カーボンブラックにおいて、ケイ素の酸化物又は炭化物のようなケイ素含有種は、該カーボンブラックの本質部としてのカーボンブラック集塊の少なくとも一部に分布されている。また、たとえば、該ケイ素被覆カーボンブラックにおいて、シリカのようなケイ素含有種は、カーボンブラック集塊の表面の少なくとも一部に配されている。本明細書に開示されたエラストマー複合物において上記のカーボンブラックと共に用いられるべき適当な追加の物質及び添加剤は、本開示の恩恵が与えられると、当業者に明らかであろう。

#### 【 0 0 3 3 】

本発明のゴム組成物は、随意に、エラストマー及び充填剤と共に、硬化剤、カップリン

10

20

30

40

50

グ剤並びに場合により様々な加工助剤、油エキステンダー及び抗崩壊剤のような、様々な添加剤を含有し得る。添加剤の例は、オゾン亀裂防止剤、酸化防止剤、可塑剤、樹脂、難燃剤及び滑剤を包含するが、しかしそれらに制限されない。添加剤の組合わせもまた用いられ得る。それに関して、本発明のエラストマー複合物は加硫組成物（VR）、熱可塑性樹脂加硫物（TPV）、熱可塑性エラストマー（TPE）及び熱可塑性ポリオレフィン（TPO）を包含する、ということが理解されるべきである。TPV、TPE及びTPO物質は、性能特性の実質的損失なしに数回押し出され及び成形されるそれらの能力により更に分類される。かくして、エラストマー複合物配合物を作製する又は更に加工する際に、エラストマー組成物の加硫を遂行するために用いられる１種又はそれ以上の硬化剤（たとえば、硫黄、硫黄供与体、活性剤、促進剤、過酸化物及び他の系のような）が用いられ得る。 10

#### 【0034】

連続湿式混合及び凝固により生成されたエラストマー複合物は、随意に、更なる加工を受け得る。たとえば、エラストマー複合物は、連続式配合機のような混合・配合装置において更に加工され得る。適当な連続式配合機は、国際公開第00/62990号パンフレットに記載されており、しかしてその全開示は、これにより、あらゆる目的のために参照することにより組み込まれる。

#### 【0035】

今般、連続湿式混合及び凝固によりエラストマー複合物を製造する際に、有意な利点が認識された。特定的には、硬度を下げるべき油を含むエラストマー複合物においてさえ、優秀な耐摩耗性が達成される。典型的には、エラストマー複合物の硬度は、複合物中の充填剤の量が増加されるにつれて増加する。しばしば、エラストマー複合物の予定使用は、高いカーボンブラック充填量を要求する。しかしながら、エラストマー複合物の予定使用はまた、より低い硬度も要求し得る。エラストマー複合物の硬度を下げるために油を添加することが知られているが、しかし望ましくない硬度を回避するためにエラストマー中の油の量が増加される場合、エラストマー複合物の耐摩耗性は一般に減少される。本明細書に開示されたエラストマー複合物の少なくとも或る好ましい具体例を含めて、連続湿式混合及び凝固により製造されたエラストマー複合物は、高い充填剤含有率、及び硬度を制御するために油の相応して高い量にもかかわらず、高い耐摩耗性を達成する。すなわち、耐摩耗性は、乾式混合された対応するエラストマー複合物においてより高いことが分かる。 20 30

たとえば、50 phr より多いVulcan 7Hの充填レベルでもって連続湿式混合及び凝固により作製された新規エラストマー複合物は、同じ処方物の乾式混合された対応するエラストマー複合物より高い耐摩耗性を有する。耐摩耗性の絶対値は、充填剤及び油の充填レベルだけでなく、充填剤、エラストマー及び油の選択、等にも依存しよう、ということが理解されるべきである。しかしながら、比較し得る処方物について、本明細書に開示されたエラストマー複合物の或る好ましい具体例のような、連続湿式混合及び凝固により生成されたエラストマー複合物は、最良の商業的实施に従って乾式混合技法を用いて製造された同じ処方物の対応するエラストマー複合物より有利なほど高い耐摩耗性を有する。

#### 【0036】

エラストマー複合物が連続湿式混合及び凝固を用いて製造され、そして耐摩耗性について試験された。耐摩耗性は、一般に、充填剤充填量を増加すると共に最大値まで増加しそして次いで減少する、ということが分かった。連続湿式混合及び凝固エラストマー複合物の耐摩耗性は、特に高いカーボンブラック充填レベルにおいて、乾式混合された対応するエラストマー複合物の耐摩耗性より一般に大きい、ということも見られる。たとえば、連続湿式混合及び凝固並びにカーボンブラックBP1100及びH65油を用いて製造された天然ゴムエラストマー複合物の耐摩耗性は、乾式混合法を用いて製造された比較し得るエラストマー複合物の耐摩耗性より大きいことが分かった。50 phrの充填剤充填量において、連続湿式混合及び凝固を用いて製造されたエラストマー複合物は、乾式混合を用いて製造された類似のエラストマー複合物の耐摩耗性に対して200%の耐摩耗性増加を示す。カーボンブラックVulcan 7H及びH65油を用いて連続湿式混合及び凝固によ 40 50

り製造された天然ゴムエラストマー複合物の、一連の充填剤充填レベルにわたっての耐摩耗性は、乾式混合法を用いて製造された比較し得るエラストマー複合物の耐摩耗性より大きいことが分かった。カーボンブラック B P 1 1 0 0 を用いて連続湿式混合及び凝固により製造された天然ゴムエラストマー複合物の、一連の充填剤充填レベルにわたっての耐摩耗性は、乾式混合法を用いて製造された比較し得るエラストマー複合物の耐摩耗性より大きいことが分かった。80 p h r の充填剤充填量において、連続湿式混合及び凝固を用いて製造されたエラストマー複合物は、乾式混合により製造された対応するエラストマー複合物の耐摩耗性より300%大きい耐摩耗性を示す。かくして、特に超高表面積/ローストラクチャーカーボンブラックを用いて、連続湿式混合及び凝固を用いると、高い耐摩耗性を有するエラストマー複合物が生成され得る。

10

## 【0037】

本明細書において用いられる場合、カーボンブラックストラクチャーは、A S T M D 2 4 1 4 に記載された手順に従って、ジブチルフタレート吸着 (D B P A) 値 (カーボンブラック 1 0 0 グラム当たりの D B P A の立方センチメートルとして表して) として測定され得る。カーボンブラック表面積は、A S T M D 3 7 6 5 - 8 5 に記載された手順に従って、カーボンブラック 1 グラム当たりの平方メートルとして表された C T A B として測定され得る。B E T 及び C D B P 値の測定は、先に上記に記載されたとおりである。

## 【0038】

## 実施例

次の例の各々について、フィールドラテックスからの天然ゴム、Cabot Corporation から入手できる B P 1 1 0 0 カーボンブラック、及び芳香族油を含むエラストマー複合物を製造した。該天然ゴムフィールドラテックスの性質は、下記の表 1 に与えられている。

20

## 【表 1】

表 1

天然ゴムフィールドラテックスの性質

総固形分含有率, % (m/m)	32.8
乾燥ゴム含有率, % (m/m) (50:50 エタノール/酢酸)	31.9
総アルカリ度, NH <sub>3</sub> , % (g/100 g ラテックス)	0.510
VFA 100 g ラテックス固形分中の VFA に対する g KOH 当量	0.053
アセトン抽出物	2.11
100°Cにおけるムーニー粘度 ML (1+4)	90
Mw	1565976
Mn	1170073

30

40

## 【0039】

エラストマー複合物の完全処方物が、下記の表 2 に記載されている。

【表 2】

表 2 処方物

成分	p h r
ゴム	1 0 0
B P 1 1 0 0	5 0 ~ 1 1 0
芳香族油	0 ~ 3 0
Z n O	4
ステアリン酸	2
6 P P D (酸化防止剤)	1
T B B S (促進剤)	1 . 2
硫黄	1 . 8

10

## 【 0 0 4 0 】

## 実施例 1 ~ 3

実施例 1 ~ 3 のエラストマー複合物を製造するために、米国特許第 6 , 0 4 8 , 9 2 3 号明細書に記載された手順と同様である次の手順を用いた。 20

## 【 0 0 4 1 】

## 1 . カーボンブラックスラリーの製造

カーボンブラックの袋を乾式粉碎し、そして引き続いて掻き混ぜ機を備えたカーボンブラックスラリータンク中で水と混合して 1 6 . 8 w t %カーボンブラックスラリーを形成させた。次いで、この粗製スラリーを、該スラリーが約 7 8 0 k g / h r の流量にて混合帯域中に噴流として導入されるように、約 3 0 0 0 p s i g の操作圧にてホモジナイザーに供給して、微粉碎カーボンブラックスラリーを生成させた。

## 【 0 0 4 2 】

## 2 . ラテックスの送出

最初にタンクに装填されたラテックスを、凝塊反応器の混合帯域にポンプ輸送した。所望の最終カーボンブラック充填レベルを得るために、ラテックス流量を調節した。4 3 0 から 6 0 0 k g / h r の間のラテックス流量が、8 0 と 9 5 p h r の間のカーボンブラック充填レベルをもたらした（より高いラテックス流量がより低いカーボンブラック充填レベルをもたらす）。酸化防止剤及び油は、ラテックス中に添加しなかった。 30

## 【 0 0 4 3 】

## 3 . カーボンブラックとラテックスの混合

カーボンブラックスラリーとラテックスを、該ラテックスを該カーボンブラックスラリー中に連行させることにより混合した。連行中に、カーボンブラックはラテックス中に親密に混入され、そしてこの混合物は凝固した。軟らかくて湿ったスポンジ状の「蠕虫」形態の凝塊が、凝塊反応器から出た。 40

## 【 0 0 4 4 】

## 4 . 脱水

凝塊反応器から排出された湿潤団粒を、脱水押出機（The French Oil Machinery Company, 7 インチ直径）でもって、1 0 ~ 2 5 %の湿分に脱水した。該押出機において、該湿潤団粒は圧縮され、そして水が該団粒から絞り出されそして該押出機のスロットバレルに通された。

## 【 0 0 4 5 】

## 5 . 乾燥及び冷却

脱水された団粒を連続式混合機中に落下させ、しかしてそこで該団粒を素練りし、そして 50

て油及び酸化防止剤と混合した。生成物出口温度は160 未満であり、そして湿分含有率は約2%であった。

【0046】

#### 引裂き強さ

実施例1～3のエラストマー複合物についての引裂き試験結果を、下記の表3に示す。

【表3】

表3

引裂き強さ (ダイC)

実施例番号	1	2	3
カーボンブラック, phr	80	88	95
芳香族油, phr	22	0	22
引裂き強さ, N/mm	160	177	169

10

【0047】

#### 比較例1～3

BR1600バンバリーミキサー (Farrel) を用いて、比較例1～3のエラストマー複合物を製造した。混合手順は、表4に示されている。

【表4】

表4

乾式混合による製造

段階1	FarrelのBRバンバリーミキサー (1600cc) 70%装填率, 80rpm, 45℃
時間 (min)	操作
0	ポリマーを添加する
0.5	充填剤を添加する
2.5	油を添加する (もしあるなら)
4	掃く
5又は8	投下する
	3回開放型ロール機に通す
段階2	FarrelのBRバンバリーミキサー (1600cc) 65%装填率, 60rpm, 45℃
時間 (min)	操作
0	段階1のコンパウンド及び硬化剤を添加する
2	投下する
	3回開放型ロール機に通す
	室温にて少なくとも2時間放置する

30

40

【0048】

生じたエラストマー複合物を、引裂き強さ (ダイC) について試験した。結果は、表5

50



に示されている。

【表 5】

表 5

引裂き強さ (ダイ C)

比較例番号	1	2	3
カーボンブラック, p h r	8 0	9 0	1 0 0
芳香族油, p h r	2 2	0	2 2
引裂き強さ, N/mm	9 3	5 9	9 4

10

【 0 0 4 9 】

表 3 に示された結果を表 5 における結果と比較すると分かり得るように、本発明のエラストマー複合物は、慣用の乾式混合法を用いて製造されたものよりかなり高い引裂き強さを有する。

【 0 0 5 0 】

本発明は特定の具体的態様に関して上記に記載されてきたけれども、本開示の恩恵が与えられると、それらの他の使用、変更及び改変が当業者に明らかになるう、ということが予想される。請求項は、本発明の真の精神及び範囲内に入るような変更及び改変をカバーすると読解されるよう意図されている。

20

## 【国際調査報告】

INTERNATIONAL SEARCH REPORT		Intern: Application No PCT/US 02/37439		
<b>A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER</b> IPC 7 C08L21/00 C08K3/00 C08K3/04				
According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC				
<b>B. FIELDS SEARCHED</b> Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols) IPC 7 C08L C08K				
Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched				
Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practical, search terms used) EPO-Internal, WPI Data, PAJ				
<b>C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT</b>				
Category *	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.		
X	WO 00 34370 A (CABOT CORP) 15 June 2000 (2000-06-15)  page 6, line 1 -page 7, line 4 ---	1-8,10, 11, 15-20, 29,30		
X	US 6 042 643 A (GALLOWAY COLLIN P ET AL) 28 March 2000 (2000-03-28) cited in the application  examples 47-59 ---	1-8,10, 11, 15-20, 29,30		
X	US 6 075 084 A (MABRY MELINDA ANN ET AL) 13 June 2000 (2000-06-13) cited in the application column 4, line 40 -column 5, line 4 --- -/--	9,21-28		
<input checked="" type="checkbox"/> Further documents are listed in the continuation of box C. <input checked="" type="checkbox"/> Patent family members are listed in annex.				
* Special categories of cited documents: <table border="0"> <tr> <td>               *A* document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance                *E* earlier document 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             </td> <td>               *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                *8* document member of the same patent family             </td> </tr> </table>			*A* document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance *E* earlier document 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 *8* document member of the same patent family
*A* document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance *E* earlier document 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 *8* document member of the same patent family			
Date of the actual completion of the international search  7 May 2003		Date of mailing of the international search report  16.05.03		
Name and mailing address of the ISA European Patent Office, P.B. 5818 Patentlaan 2 NL - 2280 HV Rijswijk Tel. (+31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl, Fax: (+31-70) 340-3016		Authorized officer  Müller, M		

## INTERNATIONAL SEARCH REPORT

Internationa	Location No
PCT/US 02/37439	

C.(Continuation) DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT		
Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	US 5 100 637 A (NAKAI KIYONARI) 31 March 1992 (1992-03-31) example 4	12-14
A	US 5 830 930 A (FRANCIS ROBERT A ET AL) 3 November 1998 (1998-11-03) cited in the application  column 1, line 48 - line 51 table 2	1-8,10, 11, 15-20, 29,30

## INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.  
PCT/US 02/37439

**Box I Observations where certain claims were found unsearchable (Continuation of item 1 of first sheet)**

This International Search Report has not been established in respect of certain claims under Article 17(2)(a) for the following reasons:

1. ☐ Claims Nos.:  
because they relate to subject matter not required to be searched by this Authority, namely:
  
2. ☐ Claims Nos.:  
because they relate to parts of the International Application that do not comply with the prescribed requirements to such an extent that no meaningful International Search can be carried out, specifically:
  
3. ☐ Claims Nos.:  
because they are dependent claims and are not drafted in accordance with the second and third sentences of Rule 6.4(a).

**Box II Observations where unity of invention is lacking (Continuation of item 2 of first sheet)**

This International Searching Authority found multiple inventions in this international application, as follows:

see additional sheet

1. ☒ As all required additional search fees were timely paid by the applicant, this International Search Report covers all searchable claims.
  
2. ☐ As all searchable claims could be searched without effort justifying an additional fee, this Authority did not invite payment of any additional fee.
  
3. ☐ As only some of the required additional search fees were timely paid by the applicant, this International Search Report covers only those claims for which fees were paid, specifically claims Nos.:
  
4. ☐ No required additional search fees were timely paid by the applicant. Consequently, this International Search Report is restricted to the invention first mentioned in the claims; it is covered by claims Nos.:

**Remark on Protest**

- ☐ The additional search fees were accompanied by the applicant's protest.
- ☒ No protest accompanied the payment of additional search fees.

**FURTHER INFORMATION CONTINUED FROM PCT/ISA/ 210**

This International Searching Authority found multiple (groups of) inventions in this international application, as follows:

1. Claims: 1-8, 10, 11, 15-30

Composite comprising (i) an elastomer and (ii) carbon black wherein the carbon black has a specific ratio of CDBP dibutylphthalate adsorption and BET surface area.

2. Claim : 9

Composite comprising (i) rubber and (ii) carbon black wherein the composite has a certain tear strength.

3. Claims: 12-14

Composite comprising (i) rubber and (ii) carbon black wherein the composite has a certain tensile strength, shore A hardness and elongation at break.

## INTERNATIONAL SEARCH REPORT

 Intern: Application No  
 PCT/US 02/37439

Patent document cited in search report		Publication date	Patent family member(s)	Publication date
WO 0034370	A	15-06-2000	AU 2354000 A	26-06-2000
			EP 1157063 A1	28-11-2001
			JP 2002531661 T	24-09-2002
			WO 0034370 A1	15-06-2000
US 6042643	A	28-03-2000	US 5851280 A	22-12-1998
			US 6494946 B1	17-12-2002
			US 5900029 A	04-05-1999
			AT 221106 T	15-08-2002
			AU 706060 B2	10-06-1999
			AU 4378496 A	03-07-1996
			AU 706229 B2	10-06-1999
			AU 4472096 A	03-07-1996
			BR 9510016 A	28-10-1997
			CA 2207414 A1	20-06-1996
			CA 2207455 A1	20-06-1996
			CN 1321708 A	14-11-2001
			CN 1175272 A ,B	04-03-1998
			CN 1175270 A ,B	04-03-1998
			CZ 9701841 A3	12-11-1997
			CZ 9701842 A3	15-07-1998
			DE 69527543 D1	29-08-2002
			DE 69527543 T2	03-04-2003
			DK 799281 T3	11-11-2002
			EG 20775 A	29-02-2000
			EG 21734 A	27-02-2002
			EP 1225205 A2	24-07-2002
			EP 0799281 A1	08-10-1997
			EP 0797637 A1	01-10-1997
			ES 2176357 T3	01-12-2002
			HU 76985 A2	28-01-1998
			JP 10510861 T	20-10-1998
			JP 10510863 T	20-10-1998
			NO 972736 A	13-08-1997
			NO 972737 A	08-08-1997
			NZ 298327 A	29-06-1999
			NZ 298988 A	28-10-1999
			PL 320731 A1	27-10-1997
			PL 320830 A1	10-11-1997
			RU 2157394 C2	10-10-2000
			SI 9520129 A	30-04-1998
			SI 9520133 A	30-06-1998
			TR 960556 A2	21-07-1996
			TR 960557 A2	21-07-1996
			TW 419510 B	21-01-2001
			WO 9618688 A1	20-06-1996
			WO 9618696 A1	20-06-1996
			US 5672198 A	30-09-1997
			ZA 9510659 A	30-05-1996
			ZA 9510664 A	09-07-1996
US 6075084	A	13-06-2000	US 6048923 A	11-04-2000
			US 5811642 A	22-09-1998
			AU 1063099 A	23-04-1999
			BR 9815397 A	11-12-2001
			CA 2305702 A1	08-04-1999
			CN 1280534 T	17-01-2001
			EP 1019228 A1	19-07-2000

## INTERNATIONAL SEARCH REPORT

Intern:	Application No
PCT/US	02/37439

Patent document cited in search report		Publication date	Patent family member(s)	Publication date
US 6075084	A		JP 2001518401 T	16-10-2001
			PL 339614 A1	02-01-2001
			WO 9916600 A1	08-04-1999
			US 2002016404 A1	07-02-2002
			US 6413478 B1	02-07-2002
			AU 2600097 A	22-10-1997
			BR 9708412 A	24-10-2000
			CA 2250774 A1	09-10-1997
			EP 0892705 A2	27-01-1999
			JP 2000507892 T	27-06-2000
			KR 2000005190 A	25-01-2000
			SG 89248 A1	18-06-2002
			WO 9736724 A2	09-10-1997
			US 6040364 A	21-03-2000
			ZA 9702633 A	28-09-1998
US 5100637	A	31-03-1992	JP 1913113 C	09-03-1995
			JP 2032137 A	01-02-1990
			JP 6041539 B	01-06-1994
			FR 2634492 A1	26-01-1990
			KR 9302555 B1	03-04-1993
US 5830930	A	03-11-1998	AU 705605 B2	27-05-1999
			AU 6540396 A	11-12-1996
			BR 9609105 A	02-02-1999
			CA 2221564 A1	28-11-1996
			CN 1190977 A	19-08-1998
			CZ 9703682 A3	15-04-1998
			EP 0828789 A2	18-03-1998
			HU 9900397 A2	28-05-1999
			JP 3305723 B2	24-07-2002
			JP 11505879 T	25-05-1999
			NO 975336 A	16-01-1998
			NZ 313363 A	27-03-2000
			PL 323469 A1	30-03-1998
			SI 9620068 A	31-10-1998
			TR 9701405 T1	21-03-1998
			US 6008272 A	28-12-1999
			WO 9637547 A2	28-11-1996
			US 2003040553 A1	27-02-2003
			US 6323273 B1	27-11-2001
			US 6028137 A	22-02-2000
			US 2001036995 A1	01-11-2001
			US 5869550 A	09-02-1999
			US 5919841 A	06-07-1999
			ZA 9604060 A	27-08-1996

## フロントページの続き

(81)指定国 AP(GH,GM,KE,LS,MW,MZ,SD,SL,SZ,TZ,UG,ZM,ZW),EA(AM,AZ,BY,KG,KZ,MD,RU,TJ,TM),EP(AT, BE,BG,CH,CY,CZ,DE,DK,EE,ES,FI,FR,GB,GR,IE,IT,LU,MC,NL,PT,SE,SK,TR),OA(BF,BJ,CF,CG,CI,CM,GA,GN,GQ,GW, ML,MR,NE,SN,TD,TG),AE,AG,AL,AM,AT,AU,AZ,BA,BB,BG,BR,BY,BZ,CA,CH,CN,CO,CR,CZ,DE,DK,DM,DZ,EC,EE,ES,FI, GB,GD,GE,GH,GM,HR,HU,ID,IL,IN,IS,JP,KE,KG,KP,KR,KZ,LC,LK,LR,LS,LT,LU,LV,MA,MD,MG,MK,MN,MW,MX,MZ,NO,N Z,OM,PH,PL,PT,RO,RU,SC,SD,SE,SG,SI,SK,SL,TJ,TM,TN,TR,TT,TZ,UA,UG,UZ,VC,VN,YU,ZA,ZM,ZW

(74)代理人 100082898

弁理士 西山 雅也

(72)発明者 ワン, ティン

アメリカ合衆国, マサチューセッツ 01862, ビレリカ, フォーシェパーズレーン

(72)発明者 ワン, メン - ジアオ

アメリカ合衆国, マサチューセッツ 02420, レキシントン, ノースハンコックストリート 45

(72)発明者 マックコネル, グレンドン エー.

アメリカ合衆国, イリノイ 61114, ロックフォード, ラサルアベニュー 3031, アパートメント #4

(72)発明者 レズネック, スティーブン アール.

アメリカ合衆国, マサチューセッツ 01743, コンコード, ストロベリーヒルロード 781

Fターム(参考) 4J002 AC011 AC031 AC061 AC081 BB151 DA036 GN00 GN01