

# 小角中性子散乱を用いた新規ポリブタジエン-ウレタン共重合体の構造解析

株式会社ブリヂストン

五十嵐 貴亮

ジエン系のゴム材料は二重結合部位の架橋により物性を大きく向上できるため、タイヤ、ベルト、ゴムクローラ、防振ゴムなどの多くのゴム製品で使用される。特に、自動車産業を足元から支えるタイヤは、人々の生活に欠かせないものとなっている。タイヤにおいて、環境への負荷低減のため、転がり抵抗低減による低燃費性向上と耐カット、耐摩耗性といった強靱性の向上による耐久性向上は、最も重要な背反特性の1つである。転がり抵抗の低減にはゴム材料の変形時に生じるエネルギー散逸の低減が有効であることが示されており、ゴム材料の強靱性の向上にはエネルギー散逸の増大が有効であることが示されている。つまり、低燃費性能と高耐久性はトレードオフの関係にある。このトレードオフを打破する手段として、これらの性能が求められる入力領域の差異に着目し、エネルギー散逸の歪みに対する入力依存性を自在に制御することができれば、従来トレードオフの関係にある低燃費性と耐久性の両立が可能となる。タイヤ用ジエン系ゴムでの具現化手法として、大変形下で犠牲破壊する結合や相互作用の導入により、大変形下でのみ大きなエネルギー散逸を生み出すことが可能になれば、エネルギー散逸の歪み依存性を制御することが可能になると考えられる。

近年、ジエン系ゴムに水素結合を導入することで機能化を試みる研究は盛んに行われており、水素結合の導入により耐久性向上や自己修復性の付与が可能となることが明らかになりつつある。我々はジオールとイソシアネートの組み合わせにより容易な分子デザインが可能で、かつウレタン結合により水素結合を形成するポリウレタンに着目し、タイヤ用展開に適した。ジエン系ゴムでの活用可能性を考慮し、物性を任意に制御するためのポリブタジエン-ポリウレタン共重合体 (PBU) の分子設計、および合成した新規 PBU の内部構造解析、加硫ゴム中での物性発現機構の解明について、動的共有結合化学を駆使して系統的な検討を行った。

得られた PBU 中のウレタンの水素結合の形成からなるハードセグメント (HS) ドメインの構造変化に着目し、PBU の内部構造解析を実施するため、中性子小角散乱 (SANS) による構造解析を検討した。予め重水素化ポリブタジエン (*d*-PB) を合成し、*cis*-PU とのメタセシス反応によりウレタンの連鎖長と導入量の異なる3種類の重水素化 PBU (*d*-PBU) を合成し、SANS 測定を行った。その結果、*d*-PBU 内のウレタンの連鎖長の増加とともに、局所的に凝集した HS ドメインを形成することや、ウレタンの導入量の増加とともに HS ドメインの構造が球状からディスク形状へと変化することが示唆された。推定される HS ドメインの構造と PBU の分子設計の関係は、現状では現象論的な段階ではあるものの、将来的には PBU の分子設計により水素結合の形成からなる HS ドメインの自在な分子デザインを実現することが期待される。