

氏 名	ユン 尹	チェ 在	リョ 龍
学位(専攻分野)	博 士	(工 学)	
学 位 記 番 号	博 甲 第 90 号		
学位授与の日付	平成 7 年 3 月 24 日		
学位授与の要件	学位規則第 4 条第 1 項該当		
研 究 科・専 攻	工芸科学研究科材料科学専攻		
学 位 論 文 題 目	天然ゴムおよびゴムブレンドの高性能化に関する研究		
論文審査委員	(主査) 教 授 川 端 成 彬	教 授 北 尾 敏 男	
	教 授 梶 原 莞 爾	助教授 塚 原 安 久	京都大学 教 授 糊 谷 信 三

論 文 内 容 の 要 旨

ゴムのブレンドが実用的に広く用いられるのは、単一種類のゴムでは得られない高い性能を実現出来るからである。本研究では耐久性が優れているなど多くの長所がある EPDM (エチレンプロピレンターポリマー) を化学的に改質して、ブレンドを容易にしたり、ブレンドゴムの架橋反応を容易にすることによって、性能の向上や加工性の改善を試みた。ジエン系ゴムよりも強度が劣る EPDM の欠点はジエン系ゴムとのブレンドによって改善されるが未解決の問題が多い。EPDM は架橋速度が遅くて加工性が劣る。ジエン成分の増量、EPDM と溶解性の良い加硫促進剤の開発、ハロゲン化やカルボキシル化による EPDM の改質及び新しい加硫用薬剤の開発などによって架橋速度を大きくする努力がされているが、十分に満足出来る結果はまだ得られていない。EPDM とジエン系ゴムとのブレンドに関する研究は古くから行われているが、多くの場合は混合機械や混合方式による物性の変化、及びゴムの分散と物性の関係を調べたものが多く、化学反応によるブレンド性の向上については殆ど研究されていない。本研究では主としてブロム化によって化学的に改質した DPDM を用いてこれらの諸問題に対処した結果、所期の成果を得ることが出来た。

第 1 章では EPDM をブロム化すると架橋反応が容易になり、加硫促進剤として酸化亜鉛を単独で用いただけで円滑に硫黄架橋反応が進行し、架橋体の引張り特性の向上することを明らかにした。

第 2 章ではブロム化 EPDM とジエン系ゴムとのブレンドゴムの共架橋性及び架橋体の物性について研究した。EPDM のようなオレフィン系ゴムと天然ゴムやブタジエンゴムなどのジエン系ゴムとのブレンドゴムの最大の問題点は、どちらか一方のゴム成分の架橋が優先して起こり共架橋性の悪いことである。このため架橋ゴムの引張り物性も劣るのが通例である。しかし EPDM をブロム化すると、未改質の EPDM を用いた場合と比較して架橋性が改善され、架橋体の引張り強度、引き裂き強度、耐摩耗性、耐疲労性、ゴム/ゴム接着性などの物性も顕著に向上することを明らかにした。

第 3 章では EPDM と天然ゴムとのブレンドゴム及びブロム化 EPDM と天然ゴムとのブレンドゴムの過酸化物架橋反応におけるジビニルベンゼン (DVB) の併用効果について研究した。DVB を配合すると、天然ゴムと EPDM およびブロム化 EPDM とのブレンドゴムのムーニー粘度が低下し、DVB が未架橋ゴムに対して可塑剤の役割を示すことが明らかにされた。さらに DVB を併用して得られた架橋体の引張り物性、動的粘弾性、膨潤試験などを評価した結果、架橋体の物性が顕著に改善されることが示され、DVB が架橋助剤および補強性充填剤として有用であることを明らかにした。

第 4 章では補強剤としてスチールコードを用いたタイヤなどの架橋ゴム製品において最も重視される要素であるゴムとスチールコードとの接着性について研究した。接着剤であるコバルト塩、硫黄および加硫

促進剤の配合量、初期接着力、老化後の接着力、動的疲労後の接着力などについて調査した結果、これらの薬剤の最適使用量を見い出した。

第5章では第2章で作製したブロム化 EPDM と天然ゴムとのブレンドゴムのタイヤ用サイドウォールコンパウンド材料としての性能評価を行った。第4章で得られたスチールコンパウンドを用いて自動車タイヤを製造し、タイヤ特性を評価してサイドウォールコンパウンドとしての工業的有用性を検討した。ブロム化した EPDM を用いた場合は引張り強度および伸びが大きくなり、天然ゴムとブタジエンゴムとのブレンドゴムを用いた場合と同等な疲労特性を持つことを明らかにした。EPDM をブロム化することによって天然ゴムとの共架橋性の向上したことによるものと推察される。タイヤのサイドウォール材料として工業的に有望な材料であると思われる。

論文審査の結果の要旨

本論文に書かれている内容は、耐久性が優れているなど多くの長所がある EPDM (エチレンプロピレンターポリマー) を化学的に改質して、ジエン系ゴムとのブレンドを容易にしたり、ブレンドゴムの架橋反応を容易にすることによって、性能を高めたり加工性を改善することを試みたものである。ブロム化することによって EPDM の架橋性などの加工性が改善され、架橋体の物性も顕著に向上することが見い出されている。タイヤ工業における製品の付加価値を高める際の有益な指針を与えるものと期待される。なお、本論文の内容は以下の通り6編の論文として学術雑誌に既に公開済みで、すべて申請者が筆頭著者となっている。英文で書かれている論文が2編で、和文で書かれている論文が4編である。この他に英文で書かれた論文1編が投稿準備中である。

- (1) 伊 在龍, 塚原安久, 梶谷信三, 天然ゴム/ブロム化 EPDM ブレンドの作製とその性質, 日本ゴム協会誌, **66**, 495-503 (1993)
- (2) 伊 在龍, 梶谷信三, 天然ゴム/スチールコードの加硫接着に及ぼす配合の効果, 日本接着学会誌, **29**, 144-152 (1993)
- (3) J. R. Yoon, Y. Tsukahara, and S. Kohjiya, Effect of bromination on EPDM curing behavior and its tensile properties, *Polymer Plastics Technol. Eng.*, in press.
- (4) 伊 在龍, 梶谷信三, ブタジエンゴム/ブロム化 EPDM ブレンドの作製とその特性, 日本ゴム協会誌, **67**, 862-866 (1994)
- (5) 伊 在龍, 田中 昭, 梶谷信三, スチレン-ブタジエンゴム/ブロム化 EPDM ブレンドの作製とその性能, 日本ゴム協会誌, **68**, 34-38 (1995)
- (6) J. R. Yoon, A. S. Hashim, N. Kawabata and S. Kohjiya, Blends of brominated EPDM and natural rubber, *Rubber World*, in press.
- (7) J. R. Yoon and S. Kohjiya, Effect of DVB on the properties of EPDM, BEPDM and their blends with NR, in preparation to submit.