

# 論文審査の結果の要旨

氏名 岸本 浩通

本論文はフィラー充填ゴム中に形成された数桁にわたる広い時空間スケールでの階層構造・ダイナミクスについて放射光 X 線と中性子分析法を利活用し、力学物性・補強効果に対する構造モデルの提案および新手法開発を行った結果を纏めたもので、全 6 章で構成されている。

第 1 章では、ゴムの時空間階層構造の研究背景・目的および本論文構成が述べられている。

第 2 章では、ゴムの粘弾性・補強効果の基礎理論、ゴムの時空間階層構造とタイヤ性能の関係、および、放射光 X 線・中性子線の応用が述べられている。

第 3 章では、ゴム中のシリカ階層構造解析と力学特性に関する研究結果が纏められている。X 線散乱法およびイメージング法を用いてゴム中に形成されたシリカ階層構造を明らかにするとともに、シミュレーションと組み合わせて力学物性との相関を議論している。ゴム変形下におけるシリカ階層構造変化を解析するために、時間分割 2 次元 USAXS/SAXS（極小角 X 線散乱法／小角 X 線散乱法）を開拓し、約 25  $\mu\text{m}$  - 6 nm にわたる幅広い空間スケールにおけるシリカ充填ゴムの構造情報を得ることに成功している。この結果と有限要素法（FEM）および散逸粒子動力学法（DPD）の研究から、シリカ階層構造における直径約数百 nm の 2 次凝集構造変化と引張物性との相関を明らかにした。また、変性ポリマーを用いた解析から、変性基の種類・位置とシリカ高次凝縮構造の相対量との相関を求め、この相関がタイヤ転がり抵抗と密接な関係にあることを明らかにした。この結果は、2008 年対比で車の燃費性能を約 6 % 向上させるタイヤ用ゴムの開発に応用された。

第 4 章では、フィラー・界面ポリマーの構造ダイナミクスに関する研究結果が纏められている。ゴムの物性と直接関係するフィラーやポリマーのダイナミクスの研究を X 線光子相関分光法（XPCS）、中性子準弾性散乱法（QENS）を用いて行なった。さらに、界面ポリマーのダイナミクスの研究を小角中性子散乱法（SANS）および中性子スピンエコー法（NSE）を用いて行なった。これら 4 つの手法を使いこなした先進的な研究から、ゴム中のフィラーとフィラー界面ポリマーの構造ダイナミクスに関する重要な知見を得ることに成功し、力学物性や粘弾性発現メカニズム解明、さらには新材料創出につながる成果をあげた。

第 5 章では、硫黄架橋における触媒機構と構造解析への XAFS（X 線吸収微細構造）研究とその結果が述べられている。硫黄架橋構造形成における酸化亜鉛の役割を解明するために亜鉛 *K*-edge XAFS 解析を実施し、加熱過程において加硫開始前に酸化亜鉛とステアリン酸が反応しステアリン酸亜鉛を生成し、その後加硫促進剤 TBBS (*N*-*tert*-butyl-2-benzothiazole sulfenamide) との反応によって

ZMBT(bis(2-mercaptobenzothiazole)Zn(II))が生成することを明らかにした。また、酸化亜鉛と TBBS の反応は硫黄により促進され、ステアリン酸亜鉛は ZMBT の生成を加速させることを明らかにした。酸化亜鉛の反応機構の理解は、力学物性や耐熱劣化性の向上につながると考えられる。

第6章では、本論文で実施した放射光 X 線および中性子線を利用したゴムの時空間階層構造研究について総括している。

このように、本論文ではゴムに含まれるフィラー、ポリマー、架橋により広い時空間スケールにわたり形成される階層構造について放射光 X 線および中性子線を用いて研究を実施した。本研究では、これまで未解明であったゴムの構造とダイナミクスに関する極めて有効な種々の情報が得られている。これらの情報を元に、今後、ゴム材料に関する新たな理論展開、及び、ゴム材料の高機能化に向けた新素材開発が進むことが期待できる。

上記の研究は、篠原佑也、渡部慧、内藤正登、八木直人、竹内晃久、上杉健太郎、鈴木芳生、雨宮慶幸の各氏との共同研究であるが、論文提出者が主体となって装置開発及び実験検証を行ったもので、論文提出者の寄与が十分であると判断する。

したがって、博士（科学）の学位を授与できると認める。

以上 1 7 2 5 字