

二軸押出機TEX[®]を用いた脱硫技術Devulcanization Technology Using Twin Screw Extruder TEX[®]

杉谷 亮汰
Ryota Sugitani



柏原 優樹
Yuuki Kashihara



佐賀 大吾
Daigo Saga



東定 誠
Makoto Tojo

要 旨

二軸押出機を用いた架橋ゴムのリサイクル手法である脱硫プロセスにおいて、第一混練部（微粉碎部）のスクリュ形状が製品品質に及ぼす影響について検討を行った。試験に用いるスクリュ形状は、二軸押出機の混練シミュレーションソフトTEX-FANを用いて検討した。EPDM 加硫ゴムシートを使用して脱硫試験を行ったところ、混練部内部の充填率が高い方が良好な微粉碎結果を得られ、微粉碎部通過後の原料の粒子径が小さい方が製品のムーニー粘度が低下し、脱硫が効果的に行えることがわかった。

— Synopsis —

In devulcanization process using twin screw extruder, the effect of the screw configuration in the first kneading zone (material grinding zone) on discharged product quality was investigated. The screw configurations used in tests were examined and selected using the twin screw extrusion simulation software “TEX-FAN”. Devulcanization trials were conducted using EPDM vulcanized rubber sheets. It was found that a higher filling rate inside the material grinding zone resulted in better pulverization outcomes, and smaller particle sizes of the raw material after passing through the pulverization section led to a decrease in the Mooney viscosity of the product, thereby achieving more effective devulcanization.

1. 緒 言

二軸押出機は連続処理による生産効率の高さや、シリンダをはじめとした装置構成をプロセスごとに自由に変更できる高いフレキシビリティを持つことから、近年ではプラスチックの混練プロセスのみならず、廃棄プラスチックや廃棄ゴムのリサイクル用途としての活躍が注目されている。

通常、ゴム製品は弾性などを果たせるために硫黄化合物を用いて架橋させた加硫ゴムであるため、流動性や加工性に乏しい。廃棄されたゴムをリサイクルするためには適切なエネルギーを用いて架橋を切断しゴムを原材料に近い流動性や加工性を持つ状態に戻す必要があり、その操作を脱硫と

呼ぶ。脱硫は二軸押出機が適用可能なリサイクルプロセスのひとつであり、当社では長年研究開発や改良に取り組んでいる。持続可能な社会を築くためにも、廃棄ゴムのリサイクル需要は今後高まることが予想される。本稿では二軸押出機TEX[®]を用いた脱硫プロセスの要素技術について紹介する。

2. ゴムのリサイクル事情について

ゴムは弾性や伸縮性、耐薬品性、絶縁性などの優れた特性を持ち、様々な産業や製品で活用されており、私たちの生活に欠かせない素材である。ゴムは、ゴムの木の樹液であるラテックスを凝固させて加工した「天然ゴム」と、石油やナフサを主原料として化学的に合成された「合成ゴム」の二つに分類される。天然ゴムは世界で年間約1200万トン消費されており、その用途の約7割以上が自動車用のタイヤである。また合成ゴムの消費量は年間約1500万トンであり、合計すると年間約2700万トンにも及ぶ⁽¹⁾。

ゴムの需要が拡大し続ける一方で、廃棄ゴムのリサイクルが大きな課題となっている。廃棄ゴムに代表される廃タイヤは、日本ではその90%以上がリサイクルされている。しかしその内訳を見ると、6割前後は熱利用(サーマルリサイクル)されている⁽²⁾。サーマルリサイクルは、タイヤを焼却させ発生した熱エネルギーを回収し、利用する方法である。廃タイヤをサーマルリサイクルすることで、有限資源である石炭や石油の代替となること、埋め立て処分場の圧迫を軽減できる等のメリットがある一方で、サーマルリサイクルではダイオキシンなどの有害物質を含むガスの発生や、二酸化炭素が排出されることが問題視されている。

熱利用に次いで多い廃タイヤのリサイクル手法は原型加工利用(マテリアルリサイクル)である。廃タイヤのマテリアルリサイクルは、タイヤ内のスチールコードや強化繊維などを取り除き、ゴム部分を粉砕し粒状にして、再生ゴムの原料やゴム成形品、舗装材等の原材料として再利用する方法である。再生ゴムは廃棄物となったゴム原料を粉砕し、金属や繊維などの不純物を取り除き、熱および再生材による処理にて可塑性や粘着性を持たせて、原料ゴムとして使用できるようにしたものである。その特徴として、練り時間の短縮、押出作業性の向上など、加工・成形・加硫といった製造工程の効率アップや、コストの削減ができるなどの利点があるが、一般的に再生ゴムは耐衝撃性、圧縮永久ひずみ特性、耐屈曲亀裂性などが未使用原料ゴムに劣ることがある⁽³⁾。

再生ゴムの脱硫手法には、パン再生法や蒸解法(湿式法)、クレマター法、ダイジェスター法などが挙げられるが、現在はパン再生法が脱硫手法の主流となっている⁽⁴⁾。パン再生法はオートクレーブと呼ばれる耐圧容器の中で加硫ゴムと再生剤を高温高圧で反応させることによって架橋を切断する脱硫手法である。しかし、パン再生法は長い反応時間を要し、かつ装置も大がかりなものになるといった問題がある。

そこで近年、パン再生法に代わる新たな脱硫手法として用いられるのが、二軸押出機を用いた脱硫手法である。二軸押出機は、シリンダごとに独立して加熱・冷却を制御することが可能であり、かつセグメント式スクリュによる自由度の高い混練特性を持つことから、上述した架橋切断に必要なエネ

ギーの調整に適した機能を有する。また二軸押出機はヒータの与熱とスクリュのせん断ひずみからなる発熱、スクリュのせん断ひずみによる物理的な引き伸ばしにより、効率よく連続処理できることから、従来の脱硫方式と比較して遥かに生産効率が高い。

3. 研究背景

当社では長年、二軸押出機を用いた脱硫プロセスの混練技術の開発に取り組んできた。二軸押出機による脱硫プロセスの挙動や得られる製品の品質は、対象ゴムの種類や配合物に大きく左右され、その特性はとても複雑である。処理する原料が変わることで生じる混練挙動の変化、例えばエントレインメント現象(排出されるガスの流れによって微小粒子が同伴され排出されてしまう現象)によってベントが不安定になる、製品である再生ゴムの品質が極端に低下する、混練負荷が不安定に変動する、などといった特異な挙動に対処するには、物性や運転安定性との傾向を探索し、架橋切断に寄与するプロセスパラメータを究明し、プロセスの根幹を定量的に理解することで、様々なゴム原料の脱硫にも柔軟に対応できるようにするものと考えている。

二軸押出機による加硫ゴムの脱硫プロセスは、図1に示す通り、①微粉砕部、②脱硫部、③脱臭部のそれぞれ役割が異なる三つの構成に分けて考えることができる。

① 微粉砕部

第一混練部に該当し、供給されるゴム原料を細かく均一化する箇所となる。微粉砕部で加硫ゴムを細かく均等化することで、次工程でムラなくゴムにせん断ひずみを与えることができ、表面が滑らかな再生ゴムを得ることができる。

この微粉砕部では、ゴムに無駄な熱を与えないことが重要になる。微粉砕部でヒータ熱やゴム同士の摩擦熱でゴムが加温されると、ゴムに流動性が出るため微粉砕化が困難になるためである。そのため、微粉砕部に適したスクリュ形状は非充満かつロングL/Dの混練部となり、シリンダ設定温度は低い方が好ましい。またゴムは伸縮性の高い原料であるため、微粉砕化するためには最適なスクリュ回転速度が必要になる。

② 脱硫部

圧縮したゴムにせん断ひずみを与えて、ゴムの架橋切断を実施する箇所となる。脱硫部を通過するゴムの粒径にバラつきがある場合、練りムラが生じて、得られる脱硫品には未脱硫が起因となる凹凸やざらつきが表面に生じることがある。

二軸押出機におけるゴムの架橋切断の過不足は、脱硫部の混練時間と混練温度、スクリュによるせん断ひずみが相互に作用することで決定する。混練時間と混練温度はスクリュ

形状で制御することが可能であり、脱硫部を伸ばすほど混練時間は延長され、せき止め作用の強いスクリュ形状を設けることで圧力が高まり、ゴムの圧縮による摩擦熱が増加して混練温度は高くなる。また、混練温度はヒータの設定温度によっても制御することができる。架橋切断はスクリュがゴムを引き伸ばす際のせん断ひずみでも発生しており、ニーディングスクリュのディスク幅が広く、かつスクリュ回転速度が速いほど架橋切断は促進されると考えられる。

③ 脱臭部

架橋切断時に発生する臭気を取り除く箇所となる。架橋切断が行われると遊離硫黄が生じるが、遊離硫黄は活性が高く、すぐに酸化して硫黄酸化物となるため脱揮により除去できる。臭気の除去が不十分だと内部に臭気が残留し、硫黄臭の漂う脱硫品となってしまふ。

脱臭部では効率的な臭気の除去を図るため、表面更新と水添脱揮による脱揮を図り、脱揮効率は水添直下の混練部形状や水添量、真空度、シリンダ設定温度に依存する。これらのパラメータは、再生ゴムの残留臭気の程度により調整する。

前述の通り、ゴムの二軸押出機による脱硫プロセスの性能は、対象ゴムの種類や配合物に著しく左右される。より幅広い原料に優れた脱硫性能を示すプロセスを構築するには、幅広い原料に対し安定して微粉砕が得られるスクリュ形状が必要であると考えられる。そこで当研究では、この微粉砕部のスクリュ形状を変化させ、微粉砕部通過後のゴム粒子径と、押出機出口で得られる製品のムーニー粘度を比較しその関係を検証し、最適な微粉砕部のスクリュ形状について考察を行った。



図1 脱硫スクリュの基本構成

4. 結果、および考察

4.1 TEX-FAN を用いたシミュレーション

実験に先立ち、微粉砕部のスクリュ形状について数値解析を行い、混練部の特性を定量的に可視化を行った。シミュレーションには当社製二軸押出機用混練シミュレーションソフト TEX-FAN を用いた。図2に示す通り、スクリュ形状は、2種類のゴム微粉砕部の混練部形状とし、比較のため混練部無しの形状についても計算を行った。

Screw A: 混練部を持たないスクリュ形状。(他の2形状と比較のために実施)

Screw B: 送りニーディングを主体に構成された形状。温度上昇は最小限として、原料に最大限の応力を加え、微粉砕化を得ることを狙った形状。

Screw C: Screw Bよりも混練部内部の充満率を高め、微粉砕化の促進を狙った形状。せき止めによって発生するせん断発熱は可能な限り少なく済むようにスクリュの配置を工夫した。

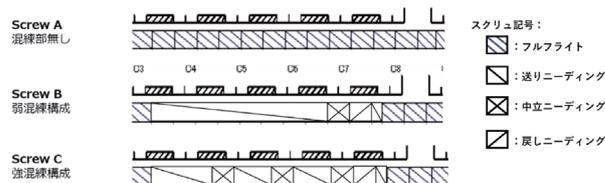


図2 各スクリュの微粉砕部スクリュ形状

また、TEX-FAN による計算条件の詳細については以下の通り。

原料	EPDM
機種	TEX44 α II
処理能力	30 kg/h
スクリュ回転速度	130 rpm
シリンダ設定温度	230 °C
先端圧力	0.3 MPa
スクリュ形状	Screw A, B, C

表1 TEX-FAN 計算条件

図3に、TEX-FAN を用いたシミュレーション結果を示す。それぞれのスクリュ形状において、押出機内部の充満率 (Fill Factor)、樹脂温度 (Temperature)、および内圧 (Pressure) を算出し比較した。

混練部を持たない Screw A の結果では樹脂温度の上昇がほとんど見られないが、全領域にわたって充満率が低く、また内圧も低いことから、EPDM 粒子に対しスクリュによるせん断作用が得られないことを示唆している。

これに対し、Screw B では送りニーディングを中心に構成され、内部の充満率や内圧は Screw A よりも高くなっており、それに伴い樹脂温度は Screw A と比較し大きく上昇していることから、EPDM 粒子に対しスクリュによるせん断作用が得られていることを示唆している。ただし、依然として充満率が低いことは混練効率の低さを示しており、十分な微粉砕化が得

られない可能性を示すものと予想された。

これらに対し、Screw Cでは、混練部の内部に抵抗となるスクリュを配置していることにより、混練部全体の充満率が高くなっており、混練部入り口付近から急激な温度上昇が得られていることから混練の効率が低いことがうかがえる。また、抵抗となるスクリュは過剰な発熱を防ぐことに主眼を置き選定しているが、充満率が低いことから弱混練となっているScrew Bとほぼ同等の樹脂温度結果となっていることから、それがその通りに機能しているものと推察される。以上の結果より、Screw Cが最も原料の微粉碎化に有効なスクリュであることが示唆された。

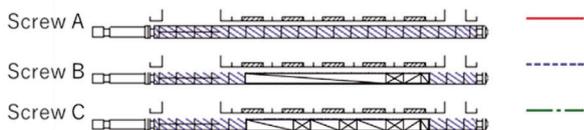
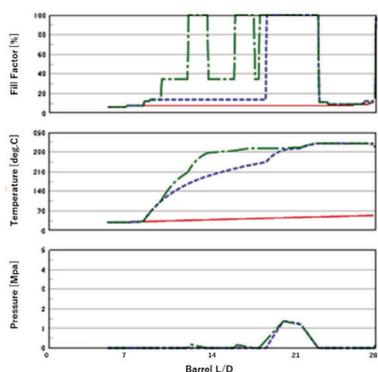


図3 TEX-FANによるゴム微粉碎部スクリュ形状の計算結果

4.2 テスト結果

テストで用いた装置の構成を図4に示す。原料は、三ツ星ベルト(株)製EPDM加硫ゴムシート(商品名:ネオ・ルーフィングE)を使用した。脱硫工程には当社製二軸押出機TEX44 aIIIを使用した。また、テストで用いたスクリュ形状の基本構成を図5に示す。ゴム微粉碎部通過後のゴム粒径と出口ムーニー粘度の関係を確認するために、ゴム微粉碎部形状のみを変更し比較した。これらを用いて、様々な運転条件で運転を行いデータ取りを行った。出口から吐出される脱硫されたゴムの塊をサンプルとし、そのムーニー粘度を測定して評価した。

表2の結果より、第一混練部(微粉碎部)通過後のシリンダC7における原料の粒径は、Screw A > Screw B > Screw Cの順で高い値を示した。これは、図3に示すTEX-FANの結果における微粉碎部の充満率と相関を示しており、TEX-FANを用いた微粉碎スクリュ形状の性能評価が有効であることが確認された。

また、表2の結果を用いて、図6に第一混練部(微粉碎部)通過後のゴム粒径とムーニー粘度の関係を示す。

これより、Screw A > Screw B > Screw Cの順で高い値を示し、第一混練部通過後のゴム粒径が粗いほど、出口ゴムのムーニー粘度は高い値を示す傾向を確認した。脱硫部に搬送されるゴム粒径が細かいほどゴムの表面積は増え、圧縮時に発生する摩擦熱が増えることが要因のひとつであると予想される。

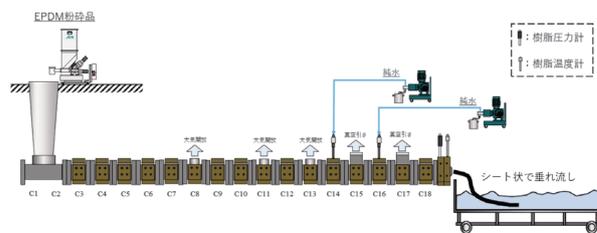


図4 装置構成



図5 基本スクリュ形状

Test No	スクリュ形状	微粉碎部シリンダ温度 [°C]	処理能力 [kg/h]	スクリュ回転速度 [rpm]	出口製品温度 [°C]	C7粒度分布50%径 [μm]	製品ムーニー粘度 ML1+4
1	A	260	30	150	283	1895.7	106.3
2	B	260	30	150	281	1409.2	89.4
3	C	260	30	150	274	1175.0	66.8

表2 運転条件とムーニー粘度結果

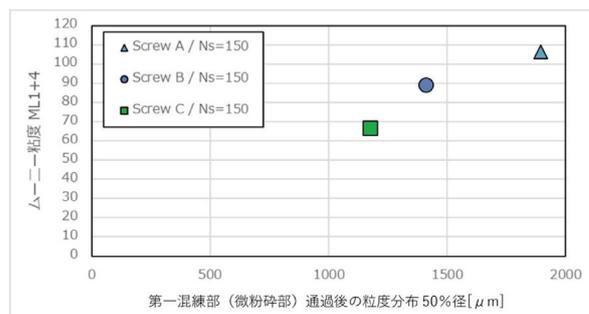


図6 第一混練部(微粉碎部)通過後のゴム粒径とムーニー粘度の関係

5. 結 言

本研究では、二軸押出機を用いた脱硫技術の向上を目的として、脱硫プロセス用スクリュの第一混練部形状に着目してデータ収集を行い、第一混練部におけるゴム平均粒径と再生ゴムのムーニー粘度の相関を確認した。その結果、ゴムの粒径が細かいほど、製品のムーニー粘度が低くなることが示された。また、細かい粒径を得るために必要なスクリュ構成についても知見が得られた。今後も引き続き社内研究開発を通じてデータを蓄積し、二軸押出機を用いた脱硫技術の発展に貢献していきたい。

参 考 文 献

- (1) “工業情報とメーカー実務の百科事典”「天然ゴムと合成ゴムの違いと比較、生産量、見分け方について」
<https://www.toishi.info/sozai/rubbers/chigai.html>
- (2) JATMA 一般社団法人 日本自動車タイヤ協会「廃タイヤ（使用済みタイヤ）のリサイクル状況」
<https://www.jatma.or.jp/environment/report01.html>
- (3) 敷板 net.「知っているようで知らない「ゴム」の話 -再生（リサイクル）ゴム編-」
https://www.shikiita.net/apps/note/rubber-mat/rubber_recycle/
- (4) 川口伊義：“再生ゴムの最近の情勢”，日本ゴム協会誌，38巻（1965）9号，pp. 755-765