

硫黄加硫ゴムコンパウンドの混練過程と水素特性の 相関に関する研究

神野, 拓也

<https://hdl.handle.net/2324/6787609>

出版情報 : Kyushu University, 2022, 博士 (工学), 課程博士
バージョン :
権利関係 :



氏 名 : 神野 拓也

論文名 : 硫黄加硫ゴムコンパウンドの混練過程と水素特性の相関に関する研究

区 分 : 甲

論文内容の要旨

一般的にゴム材料はベースとなるポリマーに対して、硫黄等の加硫剤、加硫促進剤等のポリマー間に架橋を形成するための試薬、カーボンブラック等補強や硬度調整のための充てん材が配合されている。これらの配合資材をポリマーに混練したコンパウンドを作製し、加熱、加圧により加硫することでゴム材料が製造されている。ゴム材料には求められる製品仕様を満足するため配合資材が添加されており、この配合資材のポリマー中での分散がゴム材料の品質に大きく影響する。

一方、近年普及が進められている高圧水素を燃料として搭載する燃料電池自動車およびその燃料供給インフラである水素ステーションにおいて、各種高圧水素機器のシール部材としてゴム製 O リングが使用されている。高圧水素適合性ゴム材料が開発され、信頼性の高い高圧水素シール部材が使用される状況になっているが、ゴムコンパウンド内の配合資材の分散状態がゴム材料の高圧水素適合性に影響を与えることが報告されている。しかしながら、混練工程で調製されたゴムコンパウンド中の配合資材の分散状態が加硫後のゴム材料の物性や高圧水素耐久性に及ぼす影響は明らかになっていない。本研究の目的は高圧水素適合性と混練工程、特に配合資材の配合順序と混練時間を変えたゴムコンパウンドの水素特性を評価し、混練工程がゴム材料の水素適合性に及ぼす影響を明確化することである。本論文は均一な品質のゴムの製品を製造するプロセスの確立に寄与することを目的に推進したものであり、モデルゴム材料として硫黄加硫アクリロニトリルブタジエンゴム (NBR) を選択して配合資材の分散性の異なるゴムコンパウンドを作製し、配合資材の分散状態と力学的物性や水素特性等の相関を調べた結果について述べられている。以下に本論文の内容を要約する。

第 1 章では本研究の背景と目的を示し、本研究の推進意義について述べた。

第 2 章ではゴムコンパウンド中の配合資材の分散状態を調べた。配合資材の分散状況のトレーサーとして配合資材の一つである酸化亜鉛を選定し、コンパウンド中の分散状態を示す指標として亜鉛の混合度を設定した。密閉型二軸混練機を用いて配合資材の配合順序と混練時間を変数として作製した補強材を配合しない NBR コンパウンド中の酸化亜鉛の分散状態と引張強度の相関を調べた。亜鉛の混合度の結果から、配合資材の配合順序によらず攪拌子の回転速度と混練時間の積である積算回転数 100 回転以上において配合資材が NBR コンパウンド中で均一分散していることが示唆された。しかし、亜鉛濃度の混合度と加硫材の強度特性との相関は見られなかった。一般的なゴム製造工程で採用されている混練時間によって作製した NBR コンパウンド加硫材では配合順序と混練時間による酸化亜鉛の分散速度や分散状態、また引張強さに大きな差が見られないことから、積算回転数 100 回転以上の混練により配合資材の分散性が同一の NBR コンパウンドが作製可能であることが示唆された。

第 3 章では、配合順序と混練時間を変数とし、配合資材の分散状態が異なるカーボンブラック (CB) 配合 NBR コンパウンドを作製した。コンパウンド加硫材について、10~90 MPa の高圧水素曝露を行い水素侵入量と体積変化率を調べ、配合資材の分散状態の差異が NBR コンパウンドの水素特性に及ぼす影響について検討した。配合剤の分散状態が異なる NBR コンパウンド加硫物について、得られた水素侵入量および体積変化率はいずれも曝露時の水素圧力とほぼ比例関係となっており、高圧水素環境におけるゴム材料の破壊は起きていないことが示唆され、水素適合性に影響しないことが判明した。このことは配合順序が異なる場合においても、積算回転数 100 回転以上の十分な混練工程により配合資材の分散性が同等となり、得られた加硫材の架橋密度が同等となることから材料中に侵入した水素の拡散性の支配因子である自由体積が同等となることを示唆している。

第 4 章では、配合資材の分散性が異なる CB 配合 NBR コンパウンドを作製し、コンパウンド中の配合資材の分散挙動および加硫材の物理的特性を調べた。配合資材の添加順序に関わらず CB 配合ゴムコンパウンド中の配合資材の分散状態は積算回転数 100 回転で均一分散していることが示唆された。配合資材の添加順序が異なる混練工程により、積算回転数 100 回転以上で得られたゴムコンパウンドの配合資材の分散状態や物性に大きな差は見られなかった。配合資材の添加順序が異なる工程により作成された NBR コンパウンドにおいて、水素侵入量の大きな違いは見られなかったが、侵入した水素量に対する寸法変化の関係は異なることが判明した。ゴム材料の水素侵入量は主にコンパウンドの配合により決定されるが、力学的な物性に相違があることから、強度特性等の力学的な物性は主に CB の分散状況の相違により CB 配合ゴム材料中に形成されるカーボンネットワークの相違に起因すると推察された。

第 5 章では前章までに得られた結果から NBR コンパウンド加硫材の水素特性に対する混練工程における積算回転数の影響を考察し、本研究で使用した密閉型二軸混練機においては積算回転数 100 回転により得られた NBR コンパウンドが侵入水素量、体積膨張率の観点から高圧水素耐性に優れていることを示した。高圧水素シール用ゴム材料製造のための混練工程の設定の際、高圧水素曝露時の水素侵入による体積変化を考慮し、使用する混練機に対する最適な条件設定を行うことが重要であることが示唆された。

第 6 章では本論文の結論を述べた。

〔作成要領〕

1. 用紙はA4判上質紙を使用すること.
2. 原則として、文字サイズ10.5ポイントとする.
3. 左右2センチ、上下2.5センチ程度をあげ、ページ数は記入しないこと.
4. 要旨は2,000字程度にまとめること.
(英文の場合は、2ページ以内にまとめること.)
5. 図表・図式等は随意に使用のこと.
6. ワードプロセッサで書式を整えること(手書きの場合は楷書体).
この様式で提出された書類は、「九州大学博士学位論文内容の要旨及び審査結果の要旨」
の原稿として写真印刷するので、鮮明な原稿をクリップ止めで提出すること.