

(19) 日本国特許庁(JP)

## (12) 公表特許公報(A)

(11) 特許出願公表番号

特表2006-507928

(P2006-507928A)

(43) 公表日 平成18年3月9日(2006.3.9)

(51) Int.CI.	F 1	テーマコード (参考)
<b>B02C 21/00</b> (2006.01)	B02C 21/00	Z 4 D O 6 7
<b>B02C 19/18</b> (2006.01)	B02C 19/18	Z 4 F O 7 O
<b>B02C 23/06</b> (2006.01)	B02C 23/06	4 F 3 O 1
<b>B02C 23/12</b> (2006.01)	B02C 23/12	
<b>B02C 23/14</b> (2006.01)	B02C 23/14	

審査請求 未請求 予備審査請求 未請求 (全 22 頁) 最終頁に続く

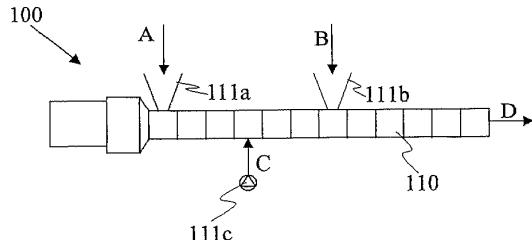
(21) 出願番号	特願2004-556084 (P2004-556084)	(71) 出願人	503437727 ピレリ・アンド・チ・ソチエタ・ペル・ア ツィオーニ イタリア国 20123 ミラノ, ヴィア ・ガエターノ・ネグリ 10
(86) (22) 出願日	平成15年10月14日 (2003.10.14)	(74) 代理人	100089705 弁理士 社本 一夫
(85) 翻訳文提出日	平成17年7月12日 (2005.7.12)	(74) 代理人	100076691 弁理士 増井 忠式
(86) 國際出願番号	PCT/EP2003/011385	(74) 代理人	100075270 弁理士 小林 泰
(87) 國際公開番号	W02004/050321	(74) 代理人	100080137 弁理士 千葉 昭男
(87) 國際公開日	平成16年6月17日 (2004.6.17)	(74) 代理人	100096013 弁理士 富田 博行
(31) 優先権主張番号	PCT/EP02/13614		
(32) 優先日	平成14年12月2日 (2002.12.2)		
(33) 優先権主張國	歐州特許庁 (EP)		

最終頁に続く

(54) 【発明の名称】加硫ゴム材料の微粉碎法

## (57) 【要約】

本発明は、加硫ゴム材料からゴム粉末を製造する方法に関する。この方法は、(a)粉碎装置に該加硫ゴム材料を供給し；(b)該加硫ゴム材料を少なくとも1種の液体冷却剤と接触させ；(c)該粉碎装置に少なくとも1種の粉碎補助添加剤を導入し；(d)上記粉碎装置を、該加硫ゴム材料を粉碎して該ゴム粉末を形成するように運転し；そして(e)該ゴム粉末を該粉碎装置から排出する工程を含む。



**【特許請求の範囲】****【請求項 1】**

加硫ゴム材料からゴム粉末を製造する方法であって：  
粉碎装置に該加硫ゴム材料を供給し；  
該加硫ゴム材料を少なくとも1種の液体冷却剤と接触させ；  
該粉碎装置に少なくとも1種の粉碎補助添加剤を導入し；  
上記粉碎装置を、該加硫ゴム材料を粉碎して該ゴム粉末を形成するように運転し；そして  
該ゴム粉末を該粉碎装置から排出する工程を含む方法。

10

**【請求項 2】**

液体冷却剤を粉碎装置に導入する工程をさらに含む、請求項1に記載の方法。

**【請求項 3】**

粉碎補助添加剤が粉碎装置に少なくとも1つの供給入口を通して加硫ゴム材料と一緒に導入される、請求項1に記載の方法。

**【請求項 4】**

液体冷却剤の粉碎装置への導入が少なくとも1つのさらなる供給入口によって行われる、請求項2に記載の方法。

**【請求項 5】**

少なくとも1つのさらなる供給入口が液体冷却剤の注入点である、請求項4に記載の方法。

20

**【請求項 6】**

液体冷却剤の粉碎装置への導入が少なくとも1つの供給入口によって行われる、請求項2又は3に記載の方法。

**【請求項 7】**

液体冷却剤の粉碎装置への導入が滴下によって行われる、請求項2に記載の方法。

**【請求項 8】**

接触工程が加硫ゴム材料を供給工程前に液体冷却剤で濡らすことを含む、請求項1に記載の方法。

30

**【請求項 9】**

接触工程が加硫ゴム材料を供給工程前に液体冷却剤で含浸することを含む、請求項1に記載の方法。

**【請求項 10】**

加硫ゴム材料を供給工程前に断片に縮小する工程をさらに含む請求項1に記載の方法。

**【請求項 11】**

断片をその寸法より小さい寸法のチップにサイズ縮小する工程をさらに含む、請求項10に記載の方法。

**【請求項 12】**

チップに縮小されたゴム材料から金属材料を分離する工程をさらに含む、請求項11に記載の方法。

40

**【請求項 13】**

金属材料が磁気分離機によって分離される、請求項12に記載の方法。

**【請求項 14】**

チップに縮小されたゴム材料から纖維材料を分離する工程をさらに含む、請求項11に記載の方法。

**【請求項 15】**

粉碎装置から出していくゴム粉末から残っている量の纖維材料を分離する工程をさらに含む、請求項1に記載の方法。

**【請求項 16】**

纖維材料が篩分けによって分離される、請求項14または15に記載の方法。

50

**【請求項 17】**

筛分け工程後にゴム粉末の少なくとも一部分を再循環する工程をさらに含む、請求項1に記載の方法。

**【請求項 18】**

液体冷却剤が水である、請求項1に記載の方法。

**【請求項 19】**

水が30以下の温度にある、請求項18に記載の方法。

**【請求項 20】**

温度が20以下である、請求項19に記載の方法。

**【請求項 21】**

液体冷却剤が少なくとも1種の高分子材料の水性エマルジョンである、請求項1に記載の方法。

**【請求項 22】**

液体冷却剤が少なくとも1種の高分子材料の水性懸濁液である請求項1に記載の方法。

**【請求項 23】**

液体冷却剤が粉碎装置に加硫ゴム材料の量に対して20重量%以下の量で導入される、請求項1に記載の方法。

**【請求項 24】**

前記量がゴム材料の量に対して0.5~10重量%を構成する、請求項23に記載の方法。

**【請求項 25】**

少なくとも1種の粉碎補助添加剤が、シリカ、珪酸塩、金属酸化物、金属炭酸塩およびそれらの混合物から選ばれる、請求項1に記載の方法。

**【請求項 26】**

少なくとも1種の粉碎補助添加剤が粉碎装置に加硫ゴム材料の量に対して20重量%以下の量で導入される、請求項1に記載の方法。

**【請求項 27】**

前記量がゴム材料の量に対して0.5~10重量%を構成する、請求項26に記載の方法。

**【請求項 28】**

粉碎装置がミルである、請求項1に記載の方法。

**【請求項 29】**

粉碎装置が押出機であり、該押出機がバレルと該バレル中に回転可能に取り付けられている少なくとも1本のスクリューを含む、請求項1に記載の方法。

**【請求項 30】**

粉碎装置がシュレッダーである、請求項1に記載の方法。

**【請求項 31】**

粉碎装置が粗碎機である、請求項1に記載の方法。

**【請求項 32】**

粉碎装置がバンバリーミキサーである、請求項1に記載の方法。

**【請求項 33】**

押出機の運転が、加硫ゴム材料をその押出機に沿って搬送する少なくとも1つの工程、および上記加硫ゴム材料を上記押出機内で粉碎する少なくとも1つの工程を含む、請求項29に記載の方法。

**【請求項 34】**

ゴムを接触させる工程が液体冷却剤を押出機バレルに導入することによって行われる、請求項29に記載の方法。

**【請求項 35】**

液体冷却剤を導入する工程が少なくとも1つの搬送工程中に実行される、請求項2又は33に記載の方法。

10

20

30

40

50

**【請求項 3 6】**

液体冷却剤を導入する工程が少なくとも 1 つの粉碎工程と関連して実行される、請求項 2 又は 3 3 に記載の方法。

**【請求項 3 7】**

液体冷却剤を導入する工程が粉碎工程中に実行される、請求項 2 又は 3 3 に記載の方法。

**【請求項 3 8】**

液体冷却剤を導入する工程が粉碎工程の前に実行される、請求項 2 又は 3 3 に記載の方法。

**【請求項 3 9】**

液体冷却剤が押出機に少なくとも 1 つの供給入口を通して導入される、請求項 2 および 3 3 に記載の方法。

**【請求項 4 0】**

供給入口が主供給ホッパーである、請求項 3 9 に記載の方法。

**【請求項 4 1】**

供給入口が注入点である、請求項 3 9 に記載の方法。

**【請求項 4 2】**

供給入口が横供給入口である、請求項 3 9 に記載の方法。

**【請求項 4 3】**

供給入口がスクリューの少なくとも 1 つの混練要素の対応位置に設置されている、請求項 4 1 または 4 2 に記載の方法。

**【請求項 4 4】**

供給入口がスクリューの搬送要素の対応位置に設置され、該搬送要素は該スクリューの混練要素の直ぐ上流の位置に設置されている、請求項 4 1 または 4 2 に記載の方法。

**【請求項 4 5】**

少なくとも 1 種の粉碎補助添加剤が押出機に少なくとも 1 つの供給入口を通して導入される、請求項 2 9 に記載の方法。

**【請求項 4 6】**

供給入口が主供給ホッパーである、請求項 4 5 に記載の方法。

**【請求項 4 7】**

供給入口が横供給入口である、請求項 4 5 に記載の方法。

**【請求項 4 8】**

粉碎装置から排出されるゴム粉末の温度が 100 以下である請求項 1 に記載の方法。

**【請求項 4 9】**

温度が 60 以下である、請求項 4 8 に記載の方法。

**【請求項 5 0】**

加硫ゴム材料が少なくとも 1 種の合成または天然のエラストマー重合体である、請求項 1 に記載の方法。

**【請求項 5 1】**

加硫ゴム材料が廃タイヤに由来する、請求項 1 に記載の方法。

**【発明の詳細な説明】****【発明の詳細な説明】****【0001】**

本発明は加硫ゴム材料からゴム粉末を製造する方法に関する。

詳しくは、本発明は、加硫ゴム材料を粉碎装置を用いることによって微粉碎する方法に関する。

より詳しくは、本発明は、廃ゴム材料を含む加硫ゴム材料を微粉碎する方法に関する。

**【0002】**

さらに詳しくは、本発明は、前もって断片に引き裂かれた廃タイヤを含めて廃ゴム材料を含む加硫ゴム材料を微粉碎する方法に関する。

10

20

30

40

50

工業ゴム製品の生産が増大した結果、一般にゴム廃棄物を貯蔵する大きな専用区域が必要という欠点のみならず、環境汚染という主たる欠点を持つ専用埋立地に廃棄される、自体いかなる実用的用途もない大量のゴム廃棄物が溜まることとなった。

#### 【0003】

それ故、加硫ゴム材料を有利に再使用することができる製品に再生することができる。広く議論されてきた論点であり、かつ長い間切実に感じられてきた解決されるべき問題である。

廃ゴム、古タイヤおよび古工業ゴム製品のような使用済み加硫ゴム材料は、これを細かく砕き、そして複数の用途で用いられるべきゴム混合物に加えることができる。これは、使用済み加硫ゴム材料の重要な量が再利用できるが故に、そのうえ原料の対応する著しい量がそれら材料を該廃棄材料で置き換えることによって節約できるが故に、特に有利である。

#### 【0004】

ゴム組成物中における、粒度が一般に $500\text{ }\mu\text{m}$ を超えない細かく砕かれた加硫ゴムの使用は、最終製品の品質を著しくは損なわない。

しかし、市場で利用できる既知の技術によれば、微粉末はゴム材料から大量のエネルギーを犠牲にして得ることができる。

#### 【0005】

現在用いられている使用済みゴム材料の再生法には、熱分解および脱加硫のような化学的再生法；押出、射出成形および加圧成形のような熱的再生法；粗砕、緻密化、凝集および微粉碎のような機械的再生法がある。

#### 【0006】

米国特許第4,090,670号明細書は、スクラップとしての加硫ゴムタイヤの脱加硫、および例えばヤスリ掛けによるその脱加硫材料の後続除去によるそれらゴムタイヤからのゴムの回収を開示している。脱加硫は加硫ゴム材料の表面温度を上げることによって達成される。

#### 【0007】

米国特許第4,968,463号明細書は、約100ミリメートルに裁断し、約40ミリメートル以下に粉碎し、乾燥し、80から160まで予熱し、120～250において混練し、そして射出成形または押出成形する工程を含む熱可塑性材料の再生を開示している。

#### 【0008】

天然または合成ゴム材料を微粉碎する方法は、例えば、ナイフブレードを装備するミル中の、その刃に対する微粉碎材料の粘着を阻止する（ポリオレフィン微粉形態の）凝集防止剤の存在下における上記ゴム材料の微粉碎を開示する米国特許第3,190,565号明細書から公知である。

#### 【0009】

工業ゴムから粉末を作るさらなる方法は、それらゴムを剪断力によって微粉碎することにある。

英国特許第1,424,768号明細書は、ゴム材料が装置の回転部材と内壁との間の最小限のギャップ中で破碎されるように回転部材を装備するプランジャー式装置を開示している。

#### 【0010】

米国特許第4,157,790号明細書は、ゴム粉末について十分な流動度を達成するために粉末化剤を少量ずつ添加する工程を含む、約 $200\sim1,500\text{ }\mu\text{m}$ の粒度を有するゴム粉末を製造する方法を開示している。キャリアーガスが、例えばPallmannミルの粉碎プレートによって行われる粉碎中に用いられる。粉碎機内で起こる温度上昇は、キャリアーガスを、例えば約5の温度において冷却することによって最小限に抑えられる。

#### 【0011】

米国特許第4,650,126号明細書は、逆転粉碎要素を調整自在に一定間隔で離間配置して有する磨碎機中で、軟質の粘着性高分子材料を、粉碎助剤の存在下において、直

10

20

30

40

50

径約 1 mm 未満の粒度まで粉碎する方法を開示している。ミル温度は、粉碎助剤のほとんど全てが軟化した重合体材料上に保持され、従って重合体流れを改善し、そして捨てられるべき緩い粉碎助剤の量を最小限まで低下させるように調整される。材料キャリアー媒体として役立ち、同時に、必要とされるならばミルを冷却するために、空気がミルを通して抜き出される。

#### 【 0 0 1 2 】

米国特許第 2 , 4 1 2 , 5 8 6 号明細書は、ゴムスクラップの高い粉碎およびスクリーニング効率での微細粉碎に関する。該特許明細書は、ゴム素材を、必要ならば予備細断して、粉碎ミルに調節された量の水と一緒に連続供給し、次いでその添加水の存在下で粉碎操作に付し、その結果得られた粉碎された素材をコンベアで微粒子を取り除くスクリーンまで進め、そしてそのスクリーンからの過大材料をさらに粉碎するための粉碎機に戻す循環法を開示している。該特許明細書によれば、最も効率的な粉碎またはスクリーニングに必要とされる水の量は、粉碎されるスクラップのタイプにより、またそのスクラップが粉碎される予定の粉末度により幾らか変化する。

#### 【 0 0 1 3 】

使用済みゴム材料から微細に分散した粉末を製造するさらなる方法は、極低温破壊法である（例えば、Chemical Technology、Cryopulverizing、T. Nazy、R. Davis、1976 年 6 月、第 3 卷、第 200 - 203 頁）。該方法によれば、ゴム材料は、液体窒素またはドライアイスを用いることによって非常に低い温度まで冷却され、次いでその冷却材料が衝撃または切断処理に付される。この方法は 500 μm 未満の粒子寸法を有する微細分散粉末を生成させるが、液体窒素の製造に専用のプラントの存在に因り非常に高価である。

#### 【 0 0 1 4 】

ゴム材料から粉末を作るさらなる方法は、一軸または多軸スクリュー タイプの押出装置を使用することにある。

例えば、米国特許第 4 , 6 0 7 , 7 9 7 号明細書は、押出装置中の使用済み重合体の微粉碎であって、使用済み材料を該押出装置の第一ゾーンにおいてその溶融温度より高い温度まで加熱し、そして該装置の第二ゾーンにおいてその凝固温度以下まで冷却し、同時にその凝固材料を予備破碎および微粉碎して粉末材料を形成する上記の微粉碎を開示している。押出機のスクリューの作用は、材料を押出機のバレルを通して運ぶために利用され、一方第二冷却ゾーン中のスクリューに取り付けられた微粉碎ディスクは該材料の予備破碎と微粉碎を遂行する。

#### 【 0 0 1 5 】

米国特許第 5 , 7 4 3 , 4 7 1 号明細書は、供給ゾーン、その供給ゾーンに隣接する加熱ゾーン、その加熱ゾーンに隣接する粉末形成ゾーンおよびその粉末形成ゾーンに隣接する粉末排出ゾーンを含む、高分子材料を固体状態剪断押出微粉碎するための押出機を開示している。さらに、この押出機はに、高分子材料を加熱ゾーン中でその高分子材料の分解温度より低い温度まで加熱するための、そしてその高分子材料を粉末形成ゾーン中でその融点より低い温度であるが、凝集物の形成を阻止するために粉末形成ゾーン中でそのガラス転移温度より高い温度に保持するための温度調整手段が装備されている。

#### 【 0 0 1 6 】

米国特許第 4 , 6 0 7 , 7 9 6 号、同第 5 , 3 9 5 , 0 5 5 号、同第 5 , 7 0 4 , 5 5 5 号明細書および特開平 6 - 1 7 9 2 1 5 号公報は、加熱および冷却ゾーンが装備されている押出機によるさらなる方法を開示している。

#### 【 0 0 1 7 】

本出願人は、粉碎装置を用いることによって加硫ゴム材料から粉末を製造する方法において、微粒子が加えられるゴム組成物の機械的性質、例えば引張強さ、破断伸び、耐磨耗性に負の影響を及ぼさないそのような微粒子の高粉碎収率を達成するには、温度の制御が必須であることを認めた。

#### 【 0 0 1 8 】

本発明によれば、用語「粉碎装置 (grinding device)」は、加硫ゴム材料の粉碎 (size

10

20

30

40

50

e-reduction)をそれらの衝撃、切断、引き裂きおよび／または剪断によって行うのに適している任意の機械を示すために用いられる。本出願人は、微粒子の粉碎収率を増加させるためには、ゴム材料はゴム粒子が粉碎工程中に粘着および凝集しないように冷却されなければならないことを認めた。

#### 【0019】

さらに、本出願人は、ゴム材料温度の適切な制御、即ち粉碎工程中のゴム材料温度の低下は、ゴム材料にその粉碎のために伝達されるべきエネルギーに関するもの特に有利であることを認めた。さらに詳細には、本出願人は、ゴム材料の温度を制御することによってその過程中に供給される機械的エネルギーをゴム粒子にそれら粒子の効率的な粉碎が達成されるように剪断応力を生じさせるために利用できることを認めた。これは、該エネルギーはゴム材料の軟化または溶融およびその脱加硫を行うのには費やされず、そのゴム材料の非常に微細な粒子の高粉碎収率を達成するという結果をもたらすことを意味する。

#### 【0020】

さらに、本出願人は、非常に効率的なゴム材料の冷却を遂行するためには、粉碎装置に、例えばその壁に冷却回路を設けることは十分でないことを認めた；ここで、その冷却回路はゴム材料をその冷却回路と、例えば粉碎装置の冷却された壁と接触させることによってそのゴム材料から前もって決められた熱量を除去することができる。特に、本出願人は、粉碎工程中に生成した熱の一部は、ゴム材料に直接作用を及ぼすことによって、即ちゴム材料の冷却をその内部から行うことによって除去されなければならないことを認めた。

#### 【0021】

本出願人は、ゴム材料を液体冷却剤と接触させることによってそのゴム材料を効率的に冷却することが可能であることをさらに見いたしました。

本発明によれば、用語「液体冷却剤」は、環境温度（即ち、20 - 25）において、および大気圧において液体である任意の冷却剤を示すために用いられる。

#### 【0022】

好ましくは、冷却剤は、粉碎作用中に生成せしめられる熱の少なくとも一部が放散されるように、加硫ゴム材料の粉碎中に少なくとも部分的に蒸発する液体である。

さらに詳細には、本出願人は、少なくとも前もって決められた量の液体冷却剤を粉碎装置に、ゴム材料をその前進および粉碎中に接触させるように導入することによって該冷却剤は粉碎工程中に生成した熱の一部を放散し、かくしてゴム材料を粉碎しながら効率的に冷却することを見いたしました。

#### 【0023】

さらに、ゴム材料の微粒子の粉碎収率を増加させるためには、本出願人は、少なくとも1種の粉碎補助添加剤を粉碎装置に有利に導入し得ることを見いたしました。

特に、本出願人は、少なくとも1種の液体冷却剤、および粉碎操作を有利に支える少なくとも1種の粉碎補助添加剤が粉碎装置に導入されるとき、相乗効果が得られることを見いたしました。この相乗効果の結果として、微粒子の粉碎収率は有利に増加する。

#### 【0024】

本出願人は、この有利な結果は：a) 粉碎補助添加剤はこの方法の間に生成したゴム微粒子の再凝集、さらには粉碎装置に対するそれらの粘着の発生を防止するという事実、およびb) 粉碎補助添加剤はそれらの硬さと磨耗性のために粉碎作用に寄与するという事実に関係付けられると考えている。本発明は、加硫ゴム材料からゴム粉末を製造する方法であつて：

- ・粉碎装置に該加硫ゴム材料を供給し；
- ・該加硫ゴム材料を少なくとも1種の液体冷却剤と接触させ；
- ・該粉碎装置に少なくとも1種の粉碎補助添加剤を導入し；
- ・上記粉碎装置を、該加硫ゴム材料を粉碎して該ゴム粉末を形成するように運転し；そして
- ・該ゴム粉末を該粉碎装置から排出する工程を含む方法に関する。

10

20

30

40

50

## 【0025】

本発明による方法は液体冷却剤を粉碎装置に導入する工程をさらに含む。

好ましくは、粉碎補助添加剤は粉碎装置に少なくとも1つの供給入口を通して加硫ゴム材料と一緒に導入される。

## 【0026】

好ましくは、液体冷却剤の粉碎装置への導入は、加硫ゴム材料および粉碎補助添加剤の供給入口とは異なる少なくとも1つのさらなる供給入口によって行われる。

好ましくは、該少なくとも1つのさらなる供給入口は、液体冷却剤のための注入点である。

## 【0027】

上記に代わって、液体冷却剤の粉碎装置への導入は、液体冷却剤、加硫ゴム材料および粉碎補助添加剤が押出機に同じ供給入口を通して供給されるように少なくとも1つの供給入口によって行われる。

## 【0028】

本発明の1つの態様によれば、液体冷却剤の粉碎装置への導入は、滴下によって行われる。

1つのさらなる態様によれば、接触工程は加硫ゴム材料を供給工程前に液体冷却剤で濡らす工程を含む。

## 【0029】

1つのさらなる態様によれば、接触工程は加硫ゴム材料を供給工程前に液体冷却剤で含浸する工程を含む。

本発明によれば、粉碎装置に導入された液体冷却剤がゴム材料の粉碎中にそのゴム材料に接触すると、その冷却剤は熱または少なくともその一部をその生成のまさにその始めに除去することが可能であり、そのため単一の外部冷却、即ち例えれば粉碎装置の壁内に与えられた冷却回路によって行われる冷却が実行される場合に関してゴム材料温度の一層効率的および効果的な制御を遂行することができる。

## 【0030】

本発明による粉碎装置の例は、ミル、例えばカッティングミル、リファイナーミル、ハンマーミル、グラインディングミル、ピンミル、逆転ピンミル、ケージミル、ターボミルまたはアトリションミルである。

## 【0031】

代替粉碎装置は押出機である。

さらなる代替粉碎装置はシュレッダーまたは粗碎機 (granulator) である。

さらにもう1つの代替粉碎装置はバンパリーミキサーである。

## 【0032】

本発明の方法は、合成または天然の重合体、共重合体、単独重合体、天然または合成ゴムおよびそれらの混合物のような任意の加硫ゴム材料を微粉碎するのに適している。

好ましくは、本発明の方法は、廃タイヤに由来する加硫ゴム材料を微粉碎するのに適している。

## 【0033】

廃タイヤが用いられる場合、廃タイヤはサイズが驚くべきサイズ寸法の、例えば約3-5 cmの断片に前もって引き裂かれる。

引き続き、該断片はさらなる粉碎操作を受け、ここでその粉碎操作はタイヤ片を、例えば約6-8 mmのチップに縮小し、一方該チップから（例えば、磁気分離法によって）スチールを、また（例えば、空気分離法によって）纖維材料を除去するために専用の作業操作が行われる。タイヤ断片のそれより小さい寸法を持つタイヤ片への縮小は、金属材料のほとんど99%と纖維材料の最初の量をゴム材料から分離することを可能にする。

## 【0034】

引き続き、該チップは、1 mmより小さい平均寸法を有するゴム粉末を得るように本発明による微粉碎操作に付される。

10

20

30

40

50

上記に代わって、(約50 - 100mmの)断片に引き裂かれた廃タイヤは、本発明による微粉碎操作が行われる粉碎装置(例えば、グラインディングホイールミル(grinding wheel mill))に直接供給される。該態様によれば、粉碎装置から出していく材料の一部は、そのサイズをさらに縮小するように該材料のさらなる粉碎に備えるために粉碎装置の中に再循環される。

#### 【0035】

引き続き、粉碎装置から出していくゴム粉末は、ゴム材料から残量の纖維材料を分離するようにスクリーニング操作を受ける。

本出願人は、粉碎補助添加剤の使用が微粉碎プロセスの終わりにゴム材料からの纖維材料の筛分け収率を有利に増加させることを見いだした。10

#### 【0036】

さらに詳細には、本出願人は、纖維材料はスクリーン上でフレークを形成することによって凝集し、自然に分離する傾向がある故に、粉碎補助添加剤を使用することによって、ゴム粉末から纖維材料、即ち纖維類を効率的かつ容易に分離することが可能であることを見いだした。

#### 【0037】

それ故、後続スクリーニング中に、凝集した纖維はスクリーン上に保持され、従って容易に除去することができる。

本発明によれば、得られたゴム粉末は纖維材料を実質的に含んでおらず、かつゴム材料の屑は、纖維材料が、例えばサイクロン空気分離器によって分離され、従ってゴム材料は著しい量では回収することができない在来微粉碎法に対して著しく減少される。20

#### 【0038】

好ましくは、本発明による液体冷却剤は水である。

より好ましくは、該液体冷却剤は30℃以下の温度にある水である。さらに好ましくは、該水は5~20℃を包含する温度にある。

#### 【0039】

上記に代わって、本発明による液体冷却剤は、少なくとも1種の高分子材料、例えば(天然ゴムのような)エラストマーまたは樹脂の水性エマルジョンまたは懸濁液である。

好ましくは、液体冷却剤は非極低温冷却液である。

#### 【0040】

好ましくは、液体冷却剤は粉碎装置に連続的に供給される。

液体冷却剤としての水の使用は、経済的および実施上の観点からのみならず、冷却作用が水の蒸発の故に特に効率的であるという事実のために特に好ましい。実際、ゴム材料に対する粉碎作用に因る熱の発生の故に、粉碎装置に導入された水は該粉碎作用中に生成した熱の一部を放散させ、そして蒸発する。故に、粉碎装置から排出されるゴム粉末は実質的に乾燥している。30

#### 【0041】

本発明によれば、冷却剤は粉碎装置にゴム材料の量に対して20重量%以下の量で導入されるのが好ましい。さらに好ましくは、冷却剤の量はゴム材料の量に対して10重量%以下である。40

#### 【0042】

本発明のさらなる面によれば、粉碎装置内に含まれるゴム材料の温度は、ゴム粒子がそれらの粉碎中にそれらの粘着性を増さず、そして凝集しないようにそのゴム材料の溶融または軟化温度より低い温度に保持されなければならない。

#### 【0043】

特に、本出願人は、粉碎装置中に導入され、その中で粉碎されたゴム材料は、ゴム材料の温度が粉碎装置の出口で好ましくは100℃以下、さらに好ましくは60℃となるように、上記の液体冷却剤によって適切に冷却されなければならないことを認めた。

#### 【0044】

好ましくは、粉碎補助添加剤は、シリカ、珪酸塩(例えば、タルク、雲母、クレー)、50

微粉金属酸化物または同炭酸塩（例えば、炭酸カルシウム、酸化亜鉛、酸化マグネシウム、アルミナ）およびそれらの混合物から選択することができる。

【0045】

本発明によれば、粉碎補助添加剤は、好ましくは粉碎装置にゴム材料の量に対して20重量%以下、さらに好ましくは0.5~10重量%の量で導入される。

本発明の1つの態様によれば、粉碎装置は、バレルおよび該バレル中に回転自在に取り付けられた少なくとも1本のスクリューを含む押出機である。

【0046】

該態様によれば、好ましくは、押出機を運転する工程は、加硫ゴム材料を押出機に沿って搬送する少なくとも1つの工程および加硫ゴム材料を押出機内で粉碎する少なくとも1つの工程を含む。  
10

【0047】

好ましくは、ゴムを接触させる工程は液体冷却剤を押出機バレルに導入することによって行われ、ここで該導入は加硫ゴム材料を押出機に沿って搬送する少なくとも1つの工程の間に実行される。

【0048】

さらに好ましくは、液体冷却剤を押出機バレルに導入する工程は、加硫ゴム材料を押出機内で粉碎する少なくとも1つの工程と関連して実行される。さらに具体的には、この導入工程は粉碎工程中に実行されるか；別法としてこの導入工程は粉碎工程の前、または粉碎工程前と粉碎工程中の両者において実行することができる。  
20

【0049】

一般的には、押出機には前もって断片に縮小されたゴム材料を押出機の中に導入するための少なくとも1つの供給入口が装備されている。

好ましくは、押出機には主供給ホッパーが装備され、そのホッパーは押出機スクリューの第一部の対応位置に設置されている。

【0050】

本発明の1つの態様によれば、断片に縮小されたゴム材料は押出機バレルに該主供給ホッパーによって導入される。

好ましくは、押出機には、該主供給ホッパーから前もって定められた距離に少なくとも1つの供給入口が装備され、その供給入口は押出機スクリューのさらなる部分の対応位置に設置されている。  
30

【0051】

本発明のさらなる態様によれば、断片に縮小されたゴム材料の一部は押出機バレルに該少なくとも1つのさらなる供給入口によって導入される。該態様によれば、該少なくとも1つのさらなる供給入口は横供給入口 (lateral feeding inlet) である。

【0052】

好ましくは、ゴム材料は押出機に連続的に導入される。

本発明の1つの好ましい態様によれば、液体冷却剤は押出機に該少なくとも1つのさらなる供給入口を通して供給される。好ましくは、該少なくとも1つのさらなる供給入口は押出機に導入されるべき液体冷却剤の注入点である。  
40

【0053】

上記に代わって、液体冷却剤は押出機に該少なくとも1つの横供給入口を通して供給される。さらなる態様によれば、液体冷却剤およびゴム材料が一緒に該少なくとも1つの横供給入口に導入することができる。

【0054】

上記に代わって、液体冷却剤は押出機に主供給ホッパーを通して供給される。

一般的には、押出機スクリューは前もって定められた順序に従って集成されている複数の搬送要素と混練要素を含み、その後者は粉碎されるべき材料の種類、そしてまた達成されるべき粉碎収率に依存する。さらに詳細には、搬送要素はゴム材料を押出機バレルに沿って移動させる機能を有し、一方混練要素はゴム材料を粉碎する機能、即ち所望とされる  
50

粒度低下を成し遂げるのに必要な機械的エネルギーをゴム材料に伝達する機能を有する。さらに、混練要素は液体冷却剤をゴム材料と混合させる機能を有する。

#### 【0055】

本発明の1つの態様によれば、液体冷却剤は、好ましくは押出機に少なくとも1つの混練要素の対応位置に配置されている1つのさらなる供給入口を通して供給される。さらに好ましくは、該さらなる供給入口は注入点である。

#### 【0056】

本発明のさらなる態様によれば、液体冷却剤は、押出機に、混練要素の直ぐ上流の位置に設置されている搬送要素の対応位置に配置されている1つのさらなる供給入口を通して供給される。この解決法は混練要素が適切に冷却され得るが故に特に好ましい。

10

#### 【0057】

従って、少なくとも1つの混練要素の対応位置における、またはその直ぐ上流での液体冷却剤の導入は、粉碎工程が実行され、そしてある一定の熱量が生成せしめられる押出機ゾーン中に液体冷却剤が直接導入されるが故に非常に有利な配置である。

#### 【0058】

さらに、本発明によれば、スクリューの縦延長部に沿う混練要素の位置に、そしてまた微粉碎されるべき特定のゴム材料に統いてゴム材料に最高の機械的剪断を伝達し、かつそれらの粉碎作用において最も効果的であるそれら混練要素だけを選択的に冷却することも可能である。

#### 【0059】

好ましくは、液体冷却剤は押出機バレルに該少なくとも1つの注入点を通しての注入によって導入される。

上記に代わって、液体冷却剤は押出機に滴下によって導入される。その場合、液体冷却剤はバレルに主供給ホッパーおよび/または少なくとも1つの横供給入口によって供給される。

20

#### 【0060】

上記に代わって、押出機に前もって定められた粒度測定値 (a predetermined granulometry) を持つ断片の形態で導入されたゴム材料は、液体冷却剤で前もって湿潤または含浸される。これは、加硫ゴム材料を液体冷却剤と接触させる工程がゴム材料の押出機への導入前に行われることを意味する。

30

#### 【0061】

好ましくは、粉碎補助添加剤は押出機に該少なくとも1つのさらなる供給入口によって導入される。さらに好ましくは、該添加剤は押出機に該少なくとも1つの横供給入口によって導入される。

#### 【0062】

上記に代わって、該添加剤は押出機に該主供給ホッパーによってゴム材料と一緒に導入される。

好ましくは、該添加剤は押出機に重量計量装置によって導入される。

#### 【0063】

本発明の方法は、微粒子の高粉碎収率がプロセス作業温度を液体窒素の作業温度より顕著に高い値に保持しつつ1回パスだけで、即ち得られたゴム粉末を再循環させずに達成できることを可能にする。言い換えると、本発明の方法は、1回パスだけで、極低温技術で得られるものに匹敵する微粒子の粉碎収率を、本発明の方法が使用されるべき装置に関しても重要なエネルギーおよびコストの節約を可能にするという利点と共に達成するのを可能にする。

40

#### 【0064】

その結果、1回パスだけで、本発明の方法は  $600 \mu\text{m}$  (即ち、30メッシュ) より小さい平均直径を有する粒子で 50 % より大きい粉碎収率を、また  $425 \mu\text{m}$  (即ち、40メッシュ) より小さい平均直径を有する粒子で 40 % より大きい粉碎収率を達成するのを可能にする。さらに  $200 \mu\text{m}$  より小さい平均直径を有する粒子で 20 % より大きい粉碎

50

収率を達成することができる。

【0065】

本発明のさらなる態様によれば、本発明の方法は粉碎装置から出ていくゴム粉末を篩分けする工程を含む。好ましくは、1mmより大きい平均直径を有するゴム粒子は粉碎装置に再循環される。

【0066】

従って、該さらなる態様によれば、本発明の方法は粉碎装置から出ていくゴム粉末の少なくとも一部を再循環する工程をさらに含む。

本発明を次に添付図面を参照してさらに例証する。

【0067】

図1は、本発明の1つの態様に従って加硫ゴム材料からゴム粉末を製造するためのプラント100を略図で示す。

プラント100は少なくとも1つの供給入口が装備されている押出機110を含む。

【0068】

さらに詳細には、図1に示される態様によれば、押出機110は粉末に粉碎されるべき加硫ゴム材料（矢印Aを参照されたい）の導入用の主供給ホッパー111aを含む。

該態様によれば、押出機110はその押出機に少なくとも1種の粉碎補助添加剤（矢印Bを参照されたい）および液体冷却剤（矢印Cを参照されたい）をそれぞれ導入するための横供給入口111bおよび注入点111cをさらに含む。

【0069】

本発明による押出機は押出機バレルの壁内に冷却回路をさらに含み、そのためゴム材料は外側からも、即ち冷却されたバレル壁に接触させることによっても冷却することができる。

【0070】

主供給ホッパーとは反対側の押出機の端において、加硫ゴム粉末が押出機110から矢印Dで示されるように排出される。

本発明の1つの態様（図示されず）によれば、排出されたゴム粉末はその粉末の一部を押出機に、好ましくはその主供給ホッパーに再循環することができるようにななくとも1つの篩に搬送される。好ましくは、1mmより大きい平均直径を有するゴム粒子が再循環される。

【0071】

好ましくは、押出機110は同時回転式二軸スクリュー押出機である。

本発明の方法により粉末に粉碎されるべき加硫ゴム材料は、例えばモノビニルアレンおよび/または極性共単量体から選ばれる少なくとも1種の共単量体と60重量%以下の量で随意にブレンドされている、1種以上の共役ジオレフィンの溶液重合、乳化重合または気相重合によって得られた少なくとも1種の天然または合成ジエン系エラストマー重合体を含んでいてもよい。

【0072】

共役ジオレフィンは一般に4~12個、好ましくは4~8個の炭素原子を含み、そして例えば1,3-ブタジエン、イソブレン、2,3-ジメチル-1,3-ブタジエン、1,3-ペンタジエン、1,3-ヘキサジエン、3-ブチル-1,3-オクタジエン、2-フェニル-1,3-ブタジエンまたはそれらの混合物を含む群から選んでもよい。

【0073】

共単量体として随意に使用してもよいモノビニルアレンは一般に8~20個、好ましくは8~12個の炭素原子を含み、そして、例えばスチレン；1-ビニルナフタレン；2-ビニルナフタレン；例えば-メチルスチレン、3-メチルスチレン、4-プロピルスチレン、4-シクロヘキシルスチレン、4-ドデシルスチレン、2-エチル-4-ベンジルスチレン、4-p-トリルスチレンおよび4-(4-フェニルブチル)スチレンのようなスチレンの色々なアルキル、シクロアルキル、アリール、アルキルアリールまたはアリールアルキル誘導体、またはそれらの混合物から選んでもよい。

10

20

30

40

50

## 【0074】

随意に使用してもよい極性共単量体は、例えばビニルピリジン、ビニルキノリン、例えばメチルアクリレート、エチルアクリレート、メチルメタクリレート、エチルメタクリレート、アクリロニトリルまたはそれらの混合物のようなアクリル酸 - およびアルキルアクリル酸エステル、ニトリル、またはそれらの混合物から選んでもよい。

## 【0075】

好みしくは、ジエン系エラストマー重合体は、例えばシス - 1 , 4 - ポリイソブレン(天然または合成ゴム、好みしくは天然ゴム)、3 , 4 - ポリイソブレン、ポリ(1 , 3 - ブタジエン)(特に、高1 , 4 - シス含量を有するポリ(1 , 3 - ブタジエン))、随意にハロゲン化されたイソブレン / イソブテン共重合体、1 , 3 - ブタジエン / アクリロニトリル共重合体、スチレン / 1 , 3 - ブタジエン共重合体、スチレン / イソブレン / 1 , 3 - ブタジエン共重合体、スチレン / 1 , 3 - ブタジエン / アクリロニトリル共重合体またはそれらの混合物から選んでもよい。

## 【0076】

上記に代わって、本発明の方法に従って粉末に粉碎されるべき加硫ゴム材料は、1種または2種以上のモノオレフィンとオレフィン系共単量体またはその誘導体とのエラストマー重合体から選んでもよい少なくとも1種のエラストマー重合体を含んでもよい。モノオレフィンは、エチレン、および、例えばプロピレン、1 - ブテン、1 - ペンテン、1 - ヘキセン、1 - オクテンまたはそれらの混合物のような一般に3 ~ 12個の炭素原子を含んでいる - オレフィンから選んでもよい。次のものが好みしい：随意にジエンを含むエチレンと - オレフィンとの共重合体；イソブテン単独重合体または随意に少なくとも部分的にハロゲン化されている少量のジエンとのイソブチレンの共重合体。随意に存在するジエンは一般に4 ~ 20個の炭素原子を含み、そして、好みしくは1 , 3 - ブタジエン、イソブレン、1 , 4 - ヘキサジエン、1 , 4 - シクロヘキサジエン、5 - エチリデン - 2 - ノルボルネン、5 - メチレン - 2 - ノルボルネン、ビニルノルボルネンまたはそれらの混合物から選ばれる。これらの内では、次のものが特に好みしい：エチレン / プロピレン共重合体(EPR)またはエチレン / プロピレン / ジエン共重合体(EPDM)；ポリイソブテン；ブチルゴム；ハロブチルゴム、特にクロロブチルまたはブロモブチルゴム；またはそれらの混合物。

## 【0077】

今度は、本発明を次の実施例によってさらに例証する。

例1(比較)

本例のプロセスは、Graneco s.r.l. (Ferrara - イタリア) が製造した加硫ゴム製品を使用することによって実施された。該製品は2 ~ 5 mmの寸法を有する加硫ゴムペレットの形態をしているもので、トラックタイヤの粉碎から得られた。

## 【0078】

上記ペレットはシリンダー直径40 mmおよびL / D比48を有する同時回転式噛み合い二軸スクリュー押出機の主供給ホッパーに供給された。

加硫ゴムペレットの供給流量は20 kg / 時に設定され、また押出機のスクリュー回転速度は300 rpmに設定された。

## 【0079】

押出機から排出された加硫ゴム粉末の温度は熱電対によって測定され、そして56 の値が得られた。

表1は、粉碎収率 押出機から排出されたゴム粉末の合計量100 kgに対する重量百分率で表される を該ゴム粉末の異なる粒度測定範囲を参照して示している。

## 【0080】

さらに詳細には、表1の値は、押出機から排出されたゴム粉末を異なるサイズの複数の篩を用いることによって篩い分けする 約6分の時間 ことによって得られた。例えば、69 . 82 %という値は、1000 μmより大きい粒度を有し、1000 μmのサイズを有する第一篩を通過しなかったゴム粉末の重さによる量に相当し、一方、例えば6 . 86

10

20

30

30

40

50

%という値は、 $1000\text{ }\mu\text{m}$ よりは小さいが、 $800\text{ }\mu\text{m}$ よりは大きい粒度を有し、 $800\text{ }\mu\text{m}$ のサイズを有する篩の上に残ったゴム粉末の重さによる量に相当する。

【0081】

表1に報告されたデータから、押出機から排出されたゴム粉末の4.67%だけの量が $400\text{ }\mu\text{m}$ より小さい寸法を有し、一方そのゴム粉末の13.68%だけの量が $600\text{ }\mu\text{m}$ より小さい寸法を有していたと計算することができる。

【0082】

表1のデータは図2に曲線“a”で示されるとおりプロットされ、ここで横座標にはゴム粉末の寸法が報告され、一方縦座標には百分率で表される粉碎収率が示されている。

例2(発明)

10

本例のプロセスは、例1に記載した同じ加硫ゴム製品および同じ二軸スクリュー押出機を用いることによって実施された。

【0083】

二軸押出機は、例1で明らかにしたのと（供給流量およびスクリュー回転速度に関して）同じ作業条件において運転された。

押出機から排出された加硫ゴム粉末の温度は31であった。

【0084】

4%の水 押出機から排出されたゴム粉末の合計量 $100\text{ kg}$ に対して が押出機に約 $18$  の温度で連続的に注入された。該水は押出機に注入ポンプによって供給され、その注入点は主ホッパーから $14$  直径の距離の所に配置されていた。

20

【0085】

表1は、粉碎収率 押出機から排出されたゴム粉末の合計量 $100\text{ kg}$ に対する重量百分率で表される を、例1を参照して説明される該ゴム粉末の異なる粒度測定範囲を参照して示している。

【0086】

表1に報告されたデータから、押出機から排出されたゴム粉末の10.79%の量が $400\text{ }\mu\text{m}$ より小さい寸法を有し、一方そのゴム粉末の24.21%の量が $600\text{ }\mu\text{m}$ より小さい寸法を有していたと計算することができる。

【0087】

従って、例1のデータを例2のデータと比較することによって、押出機中への水の導入のため、 $1000\text{ }\mu\text{m}$ より大きい寸法を有するゴム粉末の量が約16%減少し（例1の69.82%から例2の52.61%になる）、そして例2では、例1の対応する値に関して、 $400\text{ }\mu\text{m}$ より小さい寸法および $600\text{ }\mu\text{m}$ より小さい寸法を有するゴム粉末の量はそれぞれ約6%および10%増大したことが観察することができる。

30

【0088】

例2のデータは図2にプロットされ、そして曲線“b”で示されている。

【0089】

【表1】

表1

ゴム粉末寸法 ( $\mu\text{m}$ )	粉碎収率 (%)	
	例1	例2
> 1 0 0 0	6 9 . 8 2	5 2 . 6 1
8 0 0 - 1 0 0 0	6 . 8 6	1 0 . 4 3
6 0 0 - 8 0 0	9 . 6 3	1 2 . 7 5
4 0 0 - 6 0 0	9 . 0 1	1 3 . 4 2
3 0 0 - 4 0 0	3 . 6 6	8 . 3 5
2 0 0 - 3 0 0	0 . 9 5	2 . 4 0
1 0 0 - 2 0 0	0 . 0 5	0 . 0 5
< 1 0 0	0 . 0 0	0 . 0 0

例3(比較)

本例のプロセスは、例1に記載した同じ加硫ゴム製品および同じ二軸スクリュー押出機を用いることによって実施された。

## 【0090】

加硫ゴムペレットの供給流量は40kg/時に設定され、また押出機のスクリュー回転速度は300rpmに設定された。 20

押出機から排出された加硫ゴム粉末の温度は80であった。

## 【0091】

表2は、粉碎収率 押出機から排出されたゴム粉末の合計量100kgに対する重量百分率で表される を該ゴム粉末の異なる粒度測定範囲を参照して示している。

表2に報告されたデータから、押出機から排出されたゴム粉末の54.4%だけの量が1000 $\mu\text{m}$ より小さい寸法を有し、一方33.0%の量が600 $\mu\text{m}$ より小さい寸法を有し、20.0%の量が420 $\mu\text{m}$ より小さい寸法を有し、14.8%の量が350 $\mu\text{m}$ より小さい寸法を有し、4.4%の量が200 $\mu\text{m}$ より小さい寸法を有し、そして1.4%の量が150 $\mu\text{m}$ より小さい寸法を有していたと計算することができる。 30

## 【0092】

例3のデータは図3に曲線“c”で示されるとおりプロットされ、ここで横座標にはゴム粉末の寸法が報告され、一方縦座標には百分率で表される粉碎収率が示されている。

例4(比較)

本例のプロセスは、例1に記載した同じ加硫ゴム製品および同じ二軸スクリュー押出機を用いることによって実施された。

## 【0093】

二軸スクリュー押出機は(供給流量およびスクリュー回転速度に関して)例3の同じ作業条件において運転された。

押出機から排出された加硫ゴム粉末の温度は77であった。 40

## 【0094】

シリカが粉碎補助添加剤として用いられ、そして押出機にその主供給ホッパーを通して重量計量装置によって導入された。シリカの量は押出機に導入されたゴム材料の量に対して10%であった。使用されたシリカは、Degussa社によって製造され、比表面積175 $\text{m}^2/\text{g}$ 、平均粒度15 $\mu\text{m}$ 、モース硬度7および密度2.65g/cm<sup>3</sup>を有するSi pernat(登録商標)320であった。

## 【0095】

表2は、粉碎収率 押出機から排出されたゴム粉末の合計量100kgに対する重量百分率で表される を該ゴム粉末の異なる粒度測定範囲を参照して示す。

表2に報告されたデータから、例3のデータを例4のデータと比較することによって、 50

押出機へのシリカの導入のため、微細ゴム粉末の量は増加したことが指摘できる。例えば、シリカの使用は、 $200 \sim 350 \mu\text{m}$ の範囲内の寸法を持つゴム粉末の量を（例3の10.40%から例4の12.6%まで、即ち増分約21%で）増加させ、 $150 \sim 200 \mu\text{m}$ の範囲内の寸法を持つゴム粉末の量を（例3の3.00%から例4の5.40%まで、即ち増分約80%で）増加させ、そして $150 \mu\text{m}$ より小さい寸法のゴム粉末の量を（例3の1.40%から例4の11.30%まで、即ち増分約700%で）増加させたことが指摘できる。

#### 【0096】

表2に報告されたデータから、押出機から排出されたゴム粉末の63.5%の量が $100 \mu\text{m}$ より小さい寸法を有し、一方46.5%の量が $600 \mu\text{m}$ より小さい寸法を有し、34.5%の量が $420 \mu\text{m}$ より小さい寸法を有し、29.3%の量が $350 \mu\text{m}$ より小さい寸法を有し、16.7%の量が $200 \mu\text{m}$ より小さい寸法を有し、そして11.3%の量が $150 \mu\text{m}$ より小さい寸法を有していたと計算することができる。10

#### 【0097】

例4のデータは図3にプロットされ、そして曲線“d”で示されている。

#### 例5(発明)

本例のプロセスは、例1に記載した同じ加硫ゴム製品および同じ二軸スクリュー押出機を用いることによって実施された。20

#### 【0098】

二軸スクリュー押出機は（供給流量およびスクリュー回転速度に関して）例3で明らかにしたのと同じ作業条件において運転された。20

押出機から排出された加硫ゴム粉末の温度は44であった。

#### 【0099】

5重量% 押出機に導入されたゴム材料の量に対して のシリ力量が、押出機にその主供給ホッパーを通して重量計量装置によって供給された。使用シリカは例4に記載したSipernat（登録商標）320であった。

#### 【0100】

さらに、5重量% ゴム材料の総量に対して の水の量が、押出機に例2に記載した注入点を通して連続的に注入された。水は約18の温度にあった。30

表2は、粉碎収率 押出機から排出されたゴム粉末の合計量 $100 \text{ kg}$ に対する重量百分率で表される を該ゴム粉末の異なる粒度測定範囲を参照して示している。

#### 【0101】

表2に報告されたデータから、例4のデータを例5のデータと比較することによって、押出機に5重量%のシリカの代わりに5重量%の水を導入した（従って、5重量%だけのシリカが用いられた）ため、微細ゴム粉末の量が顕著に増加し、これはシリカと水との相乗効果を示すものであることが指摘できる。例えば、 $200 \sim 350 \mu\text{m}$ の範囲内の寸法を持つゴム粉末の量は（例4の12.6%から例5の13.4%まで、即ち増分約6%で）増加し、そしてまた $150 \sim 200 \mu\text{m}$ の範囲内の寸法を持つゴム粉末の量は（例4の5.4%から例5の7.4%まで、即ち増分約37%で）増加し、そして $150 \mu\text{m}$ より小さい寸法を持つゴム粉末の量は（例4の11.3%から例5の16.2%まで、即ち増分約43%で）増加したことが指摘できる。40

#### 【0102】

表2に報告されたデータから、押出機から排出されたゴム粉末の64.2%の量が $100 \mu\text{m}$ より小さい寸法を有し、一方51.0%の量が $600 \mu\text{m}$ より小さい寸法を有し、41.4%の量が $420 \mu\text{m}$ より小さい寸法を有し、37.0%の量が $350 \mu\text{m}$ より小さい寸法を有し、23.6%の量が $200 \mu\text{m}$ より小さい寸法を有し、そして16.2%の量が $150 \mu\text{m}$ より小さい寸法を有していたと計算することができる。

#### 【0103】

さらに、表2に報告されたデータを組み合わせることによって、水とシリカとのゴム材料に対する添加は、微粒子の、即ち $350 \mu\text{m}$ より小さい、好ましくは $200 \mu\text{m}$ より小50

さい寸法を有する粒子の粉碎収率を顕著に増加させることができることが指摘できる。

【0104】

例5のデータは図3にプロットされ、そして曲線“e”で示されている。

【0105】

【表2】

表2

	例3	例4	例5
ゴム粉末寸法 ( $\mu\text{m}$ )	>1000	45.40	36.40
	600-1000	21.40	17.00
	420-600	13.00	12.00
	350-420	5.20	5.20
	200-350	10.40	12.60
	200-150	3.00	5.40
	<150	1.40	11.30
			16.20

【図面の簡単な説明】

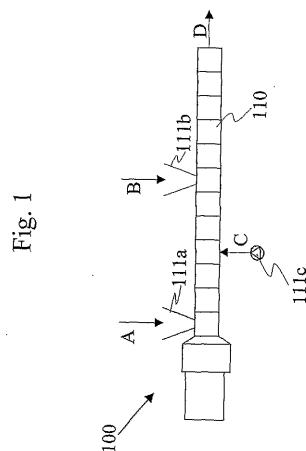
【0106】

【図1】粉碎装置が押出機である本発明による方法の略図である。

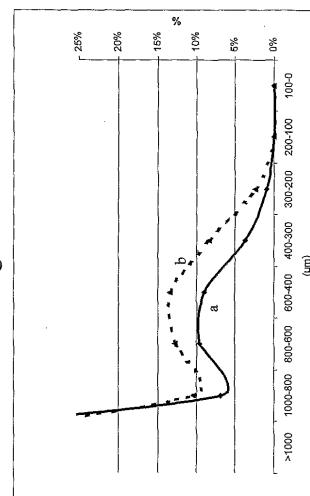
【図2】本発明による方法から得られる加硫ゴム粉末の粉碎収率に及ぼす水の影響を示しているグラフである。 20

【図3】加硫ゴム粉末の粉碎収率に及ぼす水とシリカとの相乗効果を示しているグラフである。

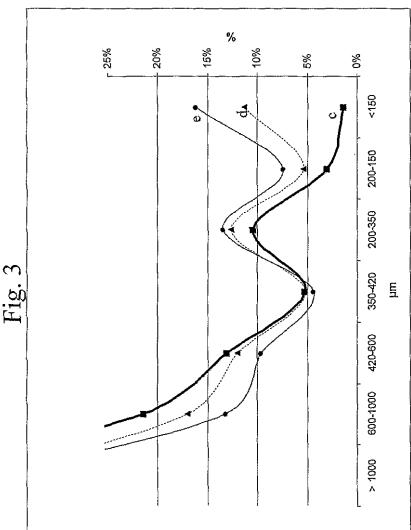
【図1】



【図2】



【図3】



## 【国際調査報告】

INTERNATIONAL SEARCH REPORT		International Application No PCT/EP 03/11385
A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER IPC 7 B29B17/00 B29B17/02 B02C23/06		
According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC		
B. FIELDS SEARCHED Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols) IPC 7 B29B B02C		
Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched		
Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practical, search terms used) EPO-Internal		
C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT		
Category <sup>a</sup>	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	US 5 154 361 A (WILLOUGHBY MICHAEL D) 13 October 1992 (1992-10-13) column 2, line 20,23,50; claim 1	1
Y	DE 40 09 902 A (SCHRAUFSTETTER WILFRIED ;GASTINGER DIETER (DE)) 2 October 1991 (1991-10-02) the whole document	1-51
Y	WO 01 85414 A (GEO2 LTD IN ADMINISTRATION ;HALL JOHN SYDNEY (AU); MCRAE WILLIAMS) 15 November 2001 (2001-11-15) page 5, paragraph 10 -page 6, line 12; claim 1	1-51
A	US 2 412 586 A (KNOWLAND THOMAS M) 17 December 1946 (1946-12-17) column 1, line 55	1-51
-/-		
<input checked="" type="checkbox"/>	Further documents are listed in the continuation of box C	<input checked="" type="checkbox"/> Patent family members are listed in annex.
° Special categories of cited documents :		
*A* document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance		
*E* earlier document but published on or after the international filing date		
*L* document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)		
*O* document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means		
*P* document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed		
*T* later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention		
*X* document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone		
*Y* document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art		
*&* document member of the same patent family		
Date of the actual completion of the international search	Date of mailing of the International search report	
12 January 2004	22/01/2004	
Name and mailing address of the ISA European Patent Office, P.B. 5816 Patentlaan 2 NL - 2280 HV Rijswijk Tel. (+31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl, Fax: (+31-70) 340-3016	Authorized officer  Kofoed, J	

## INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International Application No.  
PCT/EP 03/11385

C.(Continuation) DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT		
Category	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	US 4 614 310 A (BUDZOL MELVIN ET AL) 30 September 1986 (1986-09-30) column 1, line 21 column 2, line 65 -----	1-51
A	EP 1 201 389 A (TOYOTA MOTOR CO LTD ;TOYODA GOSEI KK (JP); TOYODA CHUO KENKYUSHO K) 2 May 2002 (2002-05-02) abstract -----	1-51
A	GB 871 923 A (DASHER RUBBER AND CHEMICAL COM) 5 July 1961 (1961-07-05) column 1, line 10-18 -----	1-51
A	US 4 607 796 A (FILMAKOVA LIDIA A ET AL) 26 August 1986 (1986-08-26) column 3, line 24 -----	1-51

## INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International Application No  
PCT/EP 03/11385

Patent document cited in search report		Publication date		Patent family member(s)		Publication date
US 5154361	A	13-10-1992	NONE			
DE 4009902	A	02-10-1991	DE CA WO EP JP	4009902 A1 2079209 A1 9114552 A1 0528808 A1 5505773 T		02-10-1991 29-09-1991 03-10-1991 03-03-1993 26-08-1993
WO 0185414	A	15-11-2001	WO AU CA CN EP US	0185414 A1 5600001 A 2406600 A1 1427757 T 1341654 A1 2003131688 A1		15-11-2001 20-11-2001 15-11-2001 02-07-2003 10-09-2003 17-07-2003
US 2412586	A	17-12-1946	NONE			
US 4614310	A	30-09-1986	AU AU BR CA DE EP	552354 B2 8934682 A 8206247 A 1187848 A1 3278558 D1 0081449 A2		29-05-1986 05-05-1983 20-09-1983 28-05-1985 07-07-1988 15-06-1983
EP 1201389	A	02-05-2002	CA EP JP WO	2375136 A1 1201389 A1 3336316 B2 0074913 A1		14-12-2000 02-05-2002 21-10-2002 14-12-2000
GB 871923	A	05-07-1961	NONE			
US 4607796	A	26-08-1986	GB	2168057 A ,B		11-06-1986

## フロントページの続き

(51)Int.Cl.	F I	テーマコード(参考)
<b>B 2 9 B</b> 17/00 (2006.01)	B 2 9 B 17/00	Z A B
<b>C 0 8 J</b> 3/12 (2006.01)	C 0 8 J 3/12	C E Q A
<b>B 2 9 K</b> 21/00 (2006.01)	B 2 9 K 21:00	
<b>C 0 8 L</b> 21/00 (2006.01)	C 0 8 L 21:00	

(81)指定国 AP(GH,GM,KE,LS,MW,MZ,SD,SL,SZ,TZ,UG,ZM,ZW),EA(AM,AZ,BY,KG,KZ,MD,RU,TJ,TM),EP(AT,BE,BG,CH,CY,CZ,DE,DK,EE,ES,FI,FR,GB,GR,HU,IE,IT,LU,MC,NL,PT,RO,SE,SI,SK,TR),OA(BF,BJ,CF,CG,CI,CM,GA,GN,GQ,GW,ML,MR,NE,SN,TD,TG),AE,AG,AL,AM,AT,AU,AZ,BA,BB,BG,BR,BY,BZ,CA,CH,CN,CO,CR,CU,CZ,DE,DK,DM,DZ,EC,EE,ES,FI,GB,GD,GE,GH,GM,HR,HU,ID,IL,IN,IS,JP,KE,KG,KP,KR,KZ,LC,LK,LR,LS,LT,LU,LV,MA,MD,MG,MK,MN,MW,MX,MZ,NI,NO,NZ,OM,PG,PH,PL,PT,RO,RU,SC,SD,SE,SG,SK,SL,SY,TJ,TM,TN,TR,TT,TZ,UA,UG,US,UZ,VC,VN,YU,ZA,ZM,ZW

(74)代理人 100102727

弁理士 細川 伸哉

(72)発明者 ティレリ,ディエゴ

イタリア国 20126 ミラノ,ヴィアーレ・サルカ 222,ケア・オブ・ピレリ・ラブス・ソチエタ・ペル・アツィオーニ

(72)発明者 ガルブセラ,ミケーレ

イタリア国 20126 ミラノ,ヴィアーレ・サルカ 222,ケア・オブ・ピレリ・ラブス・ソチエタ・ペル・アツィオーニ

(72)発明者 ペルツツオッティ,フランコ

イタリア国 20126 ミラノ,ヴィアーレ・サルカ 222,ケア・オブ・ピレリ・ラブス・ソチエタ・ペル・アツィオーニ

(72)発明者 ブッピ,クリスティアーノ

イタリア国 20126 ミラノ,ヴィアーレ・サルカ 222,ケア・オブ・ピレリ・ラブス・ソチエタ・ペル・アツィオーニ

(72)発明者 テスティ,ステファノ

イタリア国 20126 ミラノ,ヴィアーレ・サルカ 222,ケア・オブ・ピレリ・ラブス・ソチエタ・ペル・アツィオーニ

(72)発明者 モンテロッソ,アントニオ

イタリア国 20126 ミラノ,ヴィアーレ・サルカ 222,ケア・オブ・ピレリ・ラブス・ソチエタ・ペル・アツィオーニ

(72)発明者 ディ・ビアス,マッテオ

イタリア国 20126 ミラノ,ヴィアーレ・サルカ 222,ケア・オブ・ピレリ・ラブス・ソチエタ・ペル・アツィオーニ

F ターム(参考) 4D067 DD02 DD08 DD10 DD13 DD15 EE02 EE14 EE17 EE25 EE34

EE41 GA16 GB07

4F070 AA05 AA06 AB26 DA46 DB09

4F301 AA03 AA04 AA05 BF08 BF12 BF25 BF26 BG41 BG50 CA09