

新 碎

THE MICROMERITICS

No. 38 1994



ホリカワマイクロ 株式会社
粉体工学研究所

【巻頭言】	公益財団周辺の話題 …………… 勸 工 学 振 興 財 団	吉岡 直哉 …… (2)
【技術報告】	ろ過機構および細孔内拡散機構 を利用した傾斜組成体の作製 …………… 名 古 屋 大 学	森 英利 …… (4) 桜井 幸夫 中村 正秋 外山 茂樹
【参考資料】	粒体の供給方法と空隙率特性 …………… 福 岡 教 育 大 学	森山 龍一 …… (15) 大隈 淳二
【文献紹介】	強力な音場によるエーロゾル分散相 の凝集 …………… 北 海 道 大 学	小室 弥栄 …… (21) 中島 耀二
【技術資料】	多機能型流動造粒機アグロマスタの 計測制御技術 …………… ホ ソ カ ワ ミ ク ロ ン ㈱	辻本 広行 …… (30) 横山 豊和

＜特 集＞ 造粒と粒子設計

造粒のシミュレーションとモデル実験 …………… 名 城 大 学	砂田 久一 …… (41)
造粒技術の体系化に伴う装置・操作上の 諸問題 …………… 中 央 大 学	関口 勲 …… (45)
湿式（液中）造粒による粒子設計 …………… 岐 阜 薬 科 大 学	川島 嘉明 …… (56)
粉体技術連峰の一つとしての造粒技術 …………… ホ ソ カ ワ ミ ク ロ ン ㈱	横山 豊和 …… (67) 辻本 広行

【技術資料】	粉体層圧縮・引張強度自動計測システム アグロボット (AGGROBOT) …………… ホ ソ カ ワ ミ ク ロ ン ㈱	辻本 広行 …… (74) 井上 義之 横山 豊和
【新製品紹介】	粉体塗装用定量供給機の開発 …………… ホ ソ カ ワ ミ ク ロ ン ㈱	粉体工学研究所 …… (81)
【新製品紹介】	ファイントロン F T 型 …………… ホ ソ カ ワ ミ ク ロ ン ㈱	技術開発グループ …… (84)

【新製品紹介】	サイクロネータ CYN 型	ホソカワミクロン ㈱ 技術開発グループ	… (88)
【新製品紹介】	コンテナアクチベータ	ホソカワミクロン ㈱ 技術開発グループ	… (90)
【紹 介】	粉体工学研究所の測定室紹介	ホソカワミクロン ㈱ 粉体工学研究所	… (93)
【ニ ュ ース】	IFPRI の近況報告	ホソカワミクロン ㈱ 横山 豊和	… (96)
	ホソカワニュース		… (99)

表 紙 説 明	ファーマパクタ (L200/50P 型) およびフレーククラッシャ (FC-200型)	… (40)
---------	---	--------

特許一言メモ	米国「先発明」固執で暗礁に (No.141)	… (14)
	新・実用新案の活用 (No.142)	… (20)
	新・実用新案の費用 (No.143)	… (29)
	P L 保険販売強化, 損保各社 (No.144)	… (55)
	韓国工業所有権四法改正要旨 (No.145)	… (92)

Original Reports :

- Formation of Gradient Composites by Applying
the Filtration or In-pore Diffusion MechanismH. Mori (4)
- Y. Sakurai
- M. Nakamura
- S. Toyama

公益財団周辺の話題



吉岡 直哉*
Naoya Yoshioka

この度ホソカワミクロン社の社長細川益男氏が、ホソカワ社創立75周年を記念して、私財10億円を拠出され、「ホソカワ粉体工学振興財団」を設立され、平成3年12月に主務官庁より財団法人の許可を得られたことについてはご承知の方も多いと思う。

この財団はこの拠出金を基本財産として、その運用によって粉体工学に関連した基礎研究の助成その他の事業を行い、わが国の学術研究に寄与することを目的とする公益法人である。その設立趣意書において細川理事長は、「先代社長細川永一が大正5年に創業して以来2代75年にわたって粉体に関するあらゆる技術を具体化し、粉体技術を通して産業界に着実にその地位を築いてきたが、その間各方面から多くの学術研究上の支援をいただいた。粉体技術に対する社会のニーズはますます大きく、又高度化し、その基礎となる粉体工学の重要性もますます高くなっている。ここにいささかの私財を拠出して学術振興特に粉体工学を通して社会に還元できればと望むものである。」という意味のことを述べておられる。

私は、本財団の初代の常務理事として創設当初の運営に多大の尽力をされた吉田哲夫氏の後を継いで、平成6年4月より理事長の補佐に当たることになった。関係各位の御叱正御鞭撻をお願いいたす次第である。

学術研究を助成する公益財団は、その母体のもつ特色に応じて種々の特徴をもった個性的な目的、ポリシーを持つことが望ましい。当財団においては目標を粉体関係の研究の助成に限定されたことは誠に当を得たものであり、この分野の進歩を熱望し、これを通じて社会へ貢献したいとの創設者の強い意志と、財団運営に側面より種々の協力を惜しまれないホソカワミクロン社の意向

* 勸ホソカワ粉体工学振興財団 常務理事

研究助成等実績表

ホソカワ粉体工学振興財団
(平成4年1月～平成6年3月)

事業項目	応募件数	採択件数	助成額合計(単位万円)
1. 粉体工学に関する研究助成	156	53	6150
2. 研究成果への褒賞(KONA 賞)	10	3	300
3. 国際交流への援助(渡航費等)	18	12	360
4. 研究成果公開の援助	9	6	1350
5. 研究者育成への助成	23	10	200
6. 出版物の刊行援助	3	3	2006.5
合 計	219	87	10366.5

の表れである。ただ粉体工学と言う分野は技術社会においてはその重要性が十分に認識されてきたが、一般社会においては既成の学問分野の分類上的一项是としては未だ必ずしも認知されたとはいえぬ面がある。これは粉体と言う概念が材料の存在形態による横断的な名称であることによるものであろう。粉体の関連する分野は広範であり、それに取り組む研究者は多方面に分散して多数存在し、且つ現在緊急に解決すべき新技術に関連する基礎的問題が多いことは、本財団の助成に対する応募申請状況からも十分推察されるところである。

本財団は設立以来未だ2年半を経過したに過ぎず、特に初年度は平成4年1月より3月までの短期間であり、今日までの実績としては平成4年及び5年度の2カ年に対するものが大部分を占める。本財団の6項目の事業別の実績(平成4年1月～同6年3月)は別表の通りである。この中最も重要な項目である1. 研究助成について見ると、156件の応募が2年の間にあり、その中53件が採択され、助成額合計は6150万円となっている。年間助成額の規模から見るとデータの完備した全国の助成財団約

400の中位に位置する。(全項目の助成額合計は1億360万円余りとなっている。)粉体工学分野のみの研究助成を目的とする財団は他にはあまり見られないので、この分野の多数の研究者にとっては大きな朗報として歓迎されていることは間違いない。現在研究成果の報告が続々として集まりつつあり、その一部は既に当財団の年報(1993)に公表されている。また6項の出版助成を受けた粉体技術談話会発行のKONA誌は国内始め欧米の主要な研究者、大学、研究所等に配布され高い評価をうけつつある。

公益財団は営利を目的とするものではないが、それ故にこそ多額の貴重な助成金が世の為、人の為に真に役だっているかどうか、又自ら取り組んだ助成活動が本当に価値のあるものであるかを、営利企業と同様の厳しさを内省し、評価する必要がある。今日円高と世界的な景気の低迷で金利は低下し、財団の収入は減じ非常に厳しい局面を迎えている。当面平成6年度は相当な事業の縮小を覚悟せねばならぬ状況にある。本誌の読者である関係各位の何分の御理解と御協力をお願いする次第である。

ろ過機構および細孔内拡散機構を利用した 傾斜組成体の作製

Formation of Gradient Composites by Applying
the Filtration or In-pore Diffusion Mechanism

森 英利* 桜井 幸夫* 中村 正秋* 外山 茂樹*
Hidetoshi Mori Yukio Sakurai Masaaki Nakamura Shigeki Toyama

Abstract

Fabrication processes of smoothly gradient composites were studied to provide fundamental ideas for manufacturing functionally gradient materials, based on the infiltration mechanism of reduced metallic particles within a ceramic packing or semi-batchwise filtration mechanism of binary particulate slurries. The experiments using nickel-alumina system proved that the mixtures formed well controlled compositional gradient profiles. The filtration process was successively simulated by the filtration theory which allowed the design of the optimal conditions.

The mixing state of the compositional gradient mixture was evaluated by making use of the quality of mixedness derived from information entropy theory. The mixedness calculated from the nickel images observed under an EPMA proved that the filtration methods were able to fabricate compositional gradient mixtures with satisfactory homogeneous mixedness.

Another fabrication process was also investigated, in which SiC/C compositional gradient layer was prepared by using in-pore diffusion reactions of gaseous SiO with carbon.

1. 緒 言

傾斜機能材料は金属・セラミックス系をはじめとした複合材料の一つで、ミクロな組成がマクロスケールで変化した傾斜構造を持たせることによって複合材における不連続面を解消させ、使用環境に最も適した形に材料機能を分布させる、あるいは任意の材料機能を発現させるという発想の基に生まれた材料である¹⁻³⁾。組成あるいは組織を傾斜化する技術によれば、一様機能を追及してきた従来の材料開発では得られない機能の傾斜化が可能となり、またどの部分においても均質な箇所はなく、これまでに複合化を指向してきたハイブリッド材料技術や複合材料技術が組織の一様性をマクロでみた場合に均質であるのとは対照的で、いわば不均質材とも言えるもので

ある。

傾斜機能材料の作製技術としては、CVD や PVD のように原子あるいは分子レベルで組成を徐々に変化させて積層する方法から、従来の粉体成形プロセスに基づいた技術の適用まで、目的とする材料の組み合わせや傾斜させる機能あるいは傾斜させる領域のサイズに応じて広く研究がすすめられている⁴⁻⁹⁾。しかし傾斜複合材料に求められる機能も非常に多岐にわたるため、その開発には各目的に応じてミクロあるいはマクロな構造制御を中心とした材料設計技術を確立して行かねばならず、またこれを行なうためには基礎的な観点から検討すべき問題点も多い⁹⁾。

従来の粉末成形技術を利用した方法では、任意の組成割合に混合した粉末層を積層するために積層間における不連続性が焼結体における反りや割れ等の欠陥の原因になることが問題となっており、そのため如何に薄く積層するかが技術的開発の焦点となっている⁷⁾。これは組成の傾斜を連続分布にすることにより原理的には解消する

* 名古屋大学工学部分子化学工学科

(〒464 名古屋市千種区不老町)

Tel (052) 789-3624 FAX (052) 789-3272

ことができる問題であり、この観点より本研究では連続分布を可能にする方法としてろ過機構あるいは細孔内拡散機構を利用したプロセスについて検討した。ろ過機構を利用した方法としては、気相反応により生成した金属微粒子をセラミックス粒子充填層内へ拡散浸透させて浸透層内での金属成分の組成割合を連続的に傾斜させる気相浸透法⁸⁻¹⁰⁾、および二成分系のろ過においてスラリーの攪拌混合を適切に行なえばスラリーの組成と生成するケーキ表面の組成が一致するというものを利用してろ過ケーキ内に連続分布を形成させる湿式ろ過法¹¹⁾とについて検討した。また細孔内拡散機構を利用した方法としては、炭素系材料表面の耐酸化性の改良を目標として、ガス状 SiO の炭素材料表面および細孔内拡散反応を利用して安定な SiC 傾斜層を表面から内部にかけて形成する方法について検討した¹²⁾。本報ではこれら傾斜組成体作製プロセスを化学工学的見地より解析し、組成分布の制御性やプロセス上の問題点などについて考察した結果を報告する。

一方作製された傾斜機能材料の材料としての評価は、一般的な材料試験結果とマイクロ構造の形態学的特徴との考察によって評価されることが多いが、各成分の分散状態に関する定量的な考察についてはほとんど行なわれていないのが現状である。本研究では作製した傾斜組成体の各断面における二成分の分散状態をエントロピーから定義される混合度で評価し、プロセスとの関係についても考察した。

2. 気相浸透法による傾斜組成体の作製

本研究は、気相反応により生成した金属超微粒子を一次粒子が超微粒子であるセラミックス粒子充填層内へ拡散浸透させ、浸透層内での微粒子の組成割合を任意に制御できる技術手法を確立し、化学工学的見地よりそのプロセスを解析することを主たる目的としている。この方法によれば、一様組成のセラミックス基材内に金属成分が連続分布した傾斜組成体の作製が可能となる。また超微粒子の利用により焼結性の向上が期待され¹³⁾、従来の CIP や HIP 等の加圧操作が不要となり、プロセスの簡略化も可能となる。さらに二成分系の焼結で問題となる焼結挙動のバランスも改善させ、プロセスの適用可能な材料系の範囲も広がることが期待できる。

2.1 実験装置および実験方法

気相浸透させる微粒子としては、その生成過程がブラウン凝集理論などより推定が可能で、しかも比較的低温

度でも反応性に富む金属塩化物から水素還元により発生させることを条件に選定⁸⁾、熱力学的考察により蒸発後の気相水素還元が可能な塩化ニッケル(和光純薬、試薬一級)を使用することとした。また一方の浸透層としては、耐熱材として多用されているアルミナ(大明化学、TM-D)を使用した。アルミナは一次粒子径100nmの高純度アルミナを使用し、エタノール溶媒中で24時間ボールミル調整したものを乾燥後に解砕し、篩いによって所望の径に整粒した。この材料系ではニッケル粒子の超微粒子効果によってその焼結温度が低下し、アルミナの焼結挙動に応じた焼結操作条件で二成分複合系の焼結がバランスよく進行し、割れや反りなどの欠陥のない焼結体が得られることを既に予備実験により確認している^{9,10)}。

縦型管状炉内に配した反応部および浸透部の概要を Fig.1 に示す。予め整粒したアルミナ粒子を内径20mmの石英製セルに厚さ約5mmで充填しておき、この内部にニッケル微粒子を浸透させた。セルはバスケット形状をしており、通気のために底面は1mmφのメッシュ構造にし、その上部には石英濾紙を敷いた。ニッケル微粒

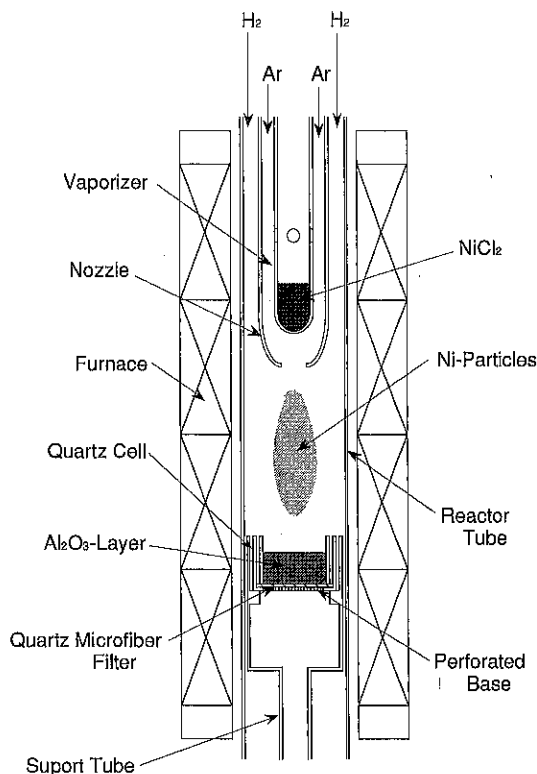


Fig.1 Schematic view of the reaction zone

子の発生はノズル型二重管式反応器で行ない、蒸発管から塩化ニッケル蒸気を Ar ガスでノズルを通して反応部へ導入し、外管から導入される H_2 で還元した。ここで反応器の内径は32mm、ノズル吹き出し径は 8 mm で、還元温度は1233Kに制御した。

水素還元により生成されたニッケル微粒子は、約18cm下流に設置したアルミナ充填層に導かれ、内部へ浸透して過捕集され傾斜組成体を形成する。得られた傾斜組成体を Ar ガス中で徐冷した後にとりだし、金型により40MPa で一軸成形し、傾斜組成分布および分散状態評価のために焼結した。アルミナ粒子充填層の初期空隙率は約0.7で、ニッケルの浸透がない場合には成形後に約0.46まで減少する。また一部サンプルは100~300MPa で CIP 処理を行なったが、成形体密度および傾斜組成分布は一軸成形の場合とほとんど変わらず、その効果は認められなかった。焼結は Ar ガス中で未反応塩化物を1273Kで2時間除去した後、1623Kで3時間行なった。昇温速度は使用したアルミナの焼結特性を考慮し、室温から1273Kまで8時間、その後1623Kまでを2時間とした。得られた焼結体の断面を EPMA による面分析に供し、断面を層深さ方向にはアルミナ整粒粒子1個の大きさを基準に、また層横方向は50 μ mを基準に分割して各領域におけるニッケルイメージの存在確率を画像解析装置により解析した。

本報で示す気相浸透法により傾斜組成体を作製するためには、安定した金属微粒子の生成が重要となる。操作条件を種々変化させてニッケル微粒子生成の予備実験を行ない、微粒子の収率や生成後の浸透操作に影響を及ぼさない条件として、蒸発管への塩化ニッケル投入量0.1g/15min、ガス流量比 Ar : H_2 = 2 : 1、総流量 $2.5 \times 10^{-5} m^3/s$ を採用した。SEM 観察により生成粒子はほぼ球形で、その平均径は約0.15 μ mであることが確かめられている¹⁰⁾。一般に、本実験のような外熱式ノズル型反応器で水素大過剰下の条件により生成される微粒子の一次径は、ノズル径の2~3倍より大きな距離では変化しないことが知られており、これより上記操作条件における粒子成長時間を見れば約0.015sを得ることができる。この値を用いてブラウン凝集モデルによる計算結果と比較すれば平均径として約0.15 μ mが得られ、SEM による観察結果ともよい一致を示した。またこの結果より粒子成長時間の推定も妥当であることが確かめられる。なお計算は濃度均一、非沈降性および流れ場の速度分布はないと仮定し、i-mer の個数 Ni の経時変化を生成項と消滅項の和として与えたポピュレーションバランス式に基づいて行なった。その結果、粒度分布は時間に対しては

ほぼ相似形状で変化してゆく過程が解析され、分布形状もほぼ対数正規分布に従っていることが確認されている¹⁰⁾。また実測された粒度分布の解析結果も、その形状が計算結果とよい一致を示した。この結果より、塩化ニッケル蒸気濃度とノズル吹き出し速度をパラメーターとしてニッケル微粒子径の制御が可能であることが確認されるが、傾斜組成体作製実験では浸透操作に影響しない条件も考慮し、総て上記の生成条件を採用した。

2.2 傾斜組成分布

作製した焼結体の一例を Fig. 2 に示した。外径は約16mm、厚みが約2.2mmで、200MPa で CIP 処理した成形体を焼結した例である。またアルミナには、165 μ m に整粒したものを用い、ニッケル微粒子の浸透負荷量は $m_0 = 0.101 kg/m^2$ である。図よりニッケル粒子が傾斜分布を有してアルミナ層内へ浸透している様子をみることができ、割れや反りなどの欠陥のない焼結体が得られている。

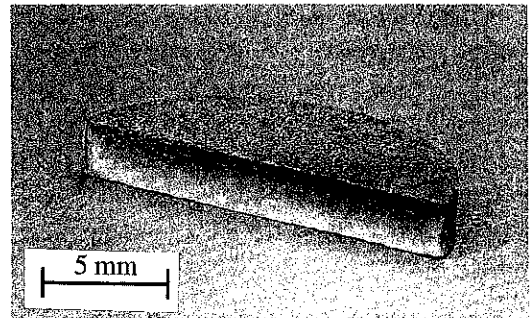


Fig. 2 Fabricated compositional gradient mixture of Ni- Al_2O_3
(compactd in an isostatic press at 200MPa after uniaxial pressing)

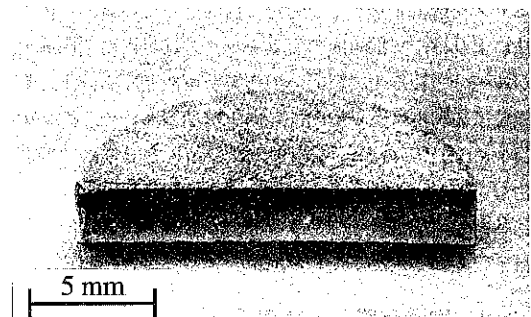


Fig. 3 Fabricated compositional gradient mixture of Ni- Al_2O_3
(compactd uniaxially)

Fig. 3は40MPaで一軸成形のみを行なった成形体を焼結した例で、アルミナには230 μ mの径のものを使用し、またニッケル浸透負荷量が $m_0=0.474\text{kg/m}^2$ の場合のものである。Fig. 2の例と比較すれば、アルミナ径の増加および浸透負荷量の増加によってより内部にまでニッケル成分が浸透している様子が確認できる。また一軸成形のみを行なった成形体の空間率はCIP処理を追加した成形体のそれとほとんど等しく、得られた焼結体の収縮率にも変化はみられなかった。焼結過程で割れや反りなどの欠陥が生じていないことから、ニッケル、アルミナともに超微粒子であるために焼結挙動のバランス性が向上していることが考えられ、本報による気相浸透法ではCIPなどの加圧操作を適用しなくても欠陥のない焼結体が得られることを示している。

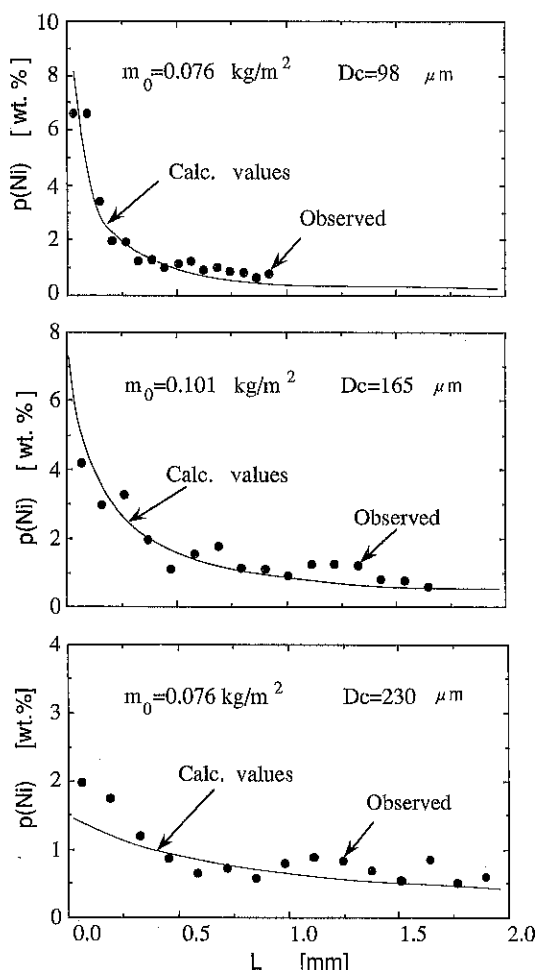


Fig. 4 Compositional gradient profiles of nickel calculated from the EPMA images

断面のEPMA観察から求めた傾斜組成分布の測定例をFig. 4に示した。ここでP (Ni) はニッケルイメージから算出した各深さ位置でのニッケル存在確率を表わし、Lは焼結体表面からの距離を表わしている。また測定値は焼結体中心部を含め等間隔に選んだ10ヶ所での組成分布を平均したもので、全ニッケル浸透量の実測値を基にして各单位層（厚みは造粒アルミナ粒子径の相当距離）内でのニッケルの重量割合として表わしてある。図よりニッケル成分の存在割合が表面より内部にかけて減少して行く様子を確認することができ、その浸透距離もアルミナ径が大きくなるにつれて内部に進行してゆく傾向が確認できる。図中の実線は前報で示した過捕集理論より計算したニッケル組成分布で、実験値とも比較的良好一致を示している。ここでニッケル粒子の捕捉機構については、アルミナ層内に浸透したニッケル粒子が拡散さえぎり機構によって捕捉され、捕捉堆積した粒子によるさえぎり効果が主たる捕捉機構として次の粒子を捕集してゆくと仮定している¹⁴⁾。また組成分布の計算は上記の単位層毎に行ない、堆積ニッケル粒子の体積を考慮した浸透操作終了後の空間率(ϵ_1)と成形後の空間率(ϵ_2)を用いて、焼結によって成形体が一様に空間率0まで収縮すると仮定して行なった。従って焼結により単位層厚みは $(1-\epsilon_1)/(1-\epsilon_2)^{2/3}$ 倍になり、図中の実線はこの収縮を考慮して計算した値である。図の結果より推定値は実測値をよく表わしており、焼結による収縮は各方向にほぼ一様に起こっていることが確認できる。

均一径粒子の充填層内に微粒子を浸透させると、一般には図のような指数関数的に組成が減少する分布が得られ、この減少割合は微粒子径と充填粒子径の比に依存することが知られている¹⁴⁾。また浸透する微粒子の負荷量が増加するにつれ、表面近傍を中心にその存在割合が増加し、この傾向は微粒子の浸透が停止しシェークろ過が開始するまで続く。従って分布形状を任意に変化させるためには、浸透層内深さ方向で浸透微粒子径と充填粒子径の比を変化させた操作を行なう必要があるが、実用的には生成微粒子径を一定として操作させるため、内部への浸透量をより増加させるためには粒子径を変化させた浸透充填層を作成することが必要となる。例として充填アルミナ粒子径を浸透入口側から大きい順に3種類、また各粒子の充填厚みも変化させて積層した浸透充填層を作成し、ニッケル微粒子を浸透させて傾斜組成体を作製した。得られた傾斜組成体断面のEPMA観察によるニッケルイメージの画像解析結果をFig. 5に示す。各充填層はある厚みを有するために、各層内での分布形状は均一粒子充填層の場合と同様な傾向を示しているが、各層毎

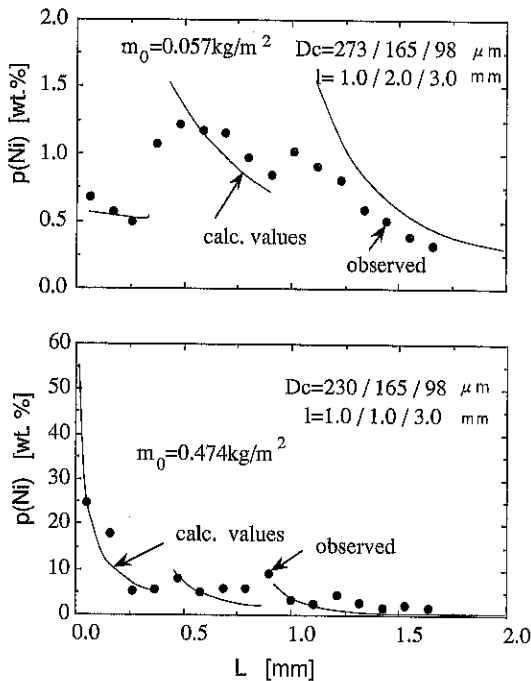


Fig. 5 Compositional gradient profiles fabricated in multi-layer alumina packing

の浸透総量は変化を示している。図の上の例では中間層に多く浸透している傾向が確かめられ、また下の例はニッケル浸透負荷量が増加し、表面層での浸透捕集が次第に支配的になってきた場合の例である。図中の実線は、各充填粒子径を基準にした単位層毎に逐次計算を行なった推定結果で、実測値と比較的良好一致を示している。充填粒子径の変化が大きいため、各層間でニッケル組成分布に断差を生じているが、粒子径の変化をできる限り小さくすることにより分布形状を滑らかにすることが可能である。

2.3 分散状態の評価

粉末冶金的手法のように二成分粒子系を完全混合してから積層する場合と異なり、本報の気相浸透法で作製した傾斜組成体については各成分が各断面において均一な分散状態になっていることを確認する必要がある。一般的に傾斜組成体の材料としての評価は、材料試験結果を組織の形態学的特徴との比較で検討されることが多く、成分の分散状態についての定量的な考察はほとんど行な

われていない。ここでは二成分系の分散状態を評価することを目的として情報エントロピーから導かれる混合度を適用し、作製された傾斜組成体内の各位値における分散状態を定量的に考察した⁹⁾。

一般に多成分系での混合状態は、成分に関する不確かさと着目成分の観測される場所に関する不確かさに基づいた観測結果から評価することができる¹⁰⁾。この場合、数学的に完全混合状態では最小値をとり、完全分離状態では最大値とする相互エントロピーを利用することができる。相互エントロピーは、観測領域を知ることにより観測対象成分が m 成分のどの成分であるかについての不確かさの減少分として定義され、次式で表わされる。

$$I(C; R) = H(C) - H(C/R)$$

$$= -\sum_i P_i \log P_i + \sum_{j=1}^m \frac{1}{n} P_{ji} \log P_{ji} \quad (1)$$

ここで C ($i = 1 \sim m$)、 R ($j = 1 \sim n$) はそれぞれ成分と領域を表わしている。また p_{ji} は j -領域での i -成分の存在確率、 p_i は全観測領域における i -成分の存在確率を表わしている。この相互エントロピーを用いれば、完全混合状態では1をとり、逆に完全分離状態では0となる混合度として次式が定義される。

$$M = I(C; R)_{\max} - I(C; R) / I(C; R)_{\max} - I(C; R)_{\min} \\ = -\sum_{j=1}^m \sum_i \frac{1}{n} P_{ji} \log P_{ji} / -\sum_i P_i \log P_i \quad (2)$$

なお、上式は二成分系として記述した。

上記の混合度を指標として、本報で得られた傾斜組成体の分散状態を比較検討した。混合度の算出はEPMAにおけるニッケルイメージの観察結果から行ない、 n 分割された組成体断面各部でのニッケルの存在確率を観測してエントロピーを算出した。領域サイズは傾斜組成分布の測定と同様で、深さ方向は造粒したアルミナ粒子径相当距離、また横方向は $50 \mu\text{m}$ で一定とした。解析結果の一例をFig. 6に示した。図よりどの試料についても混合度はほぼ1に等しく、本報で作製した傾斜組成体のアルミナとニッケルの分散状態は極めて良好であることが確かめられる。

3. 湿式ケーキろ過法による傾斜組成体の作製

本法は二成分系のケーキろ過において重力沈降の影響が無視できる範囲では、スラリータンク内の攪拌および混合を適切に行なえばスラリーの組成と形成されるケーキ表面での組成が一致することを利用した手法で、スラリー組成を連続的に変化させることにより比較的肉厚の

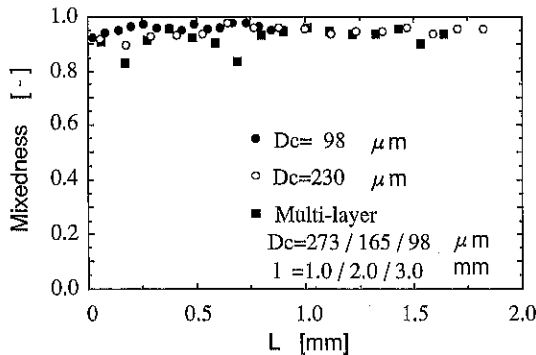


Fig. 6 Observed quality of mixedness at each depth in compositional gradient mixtures

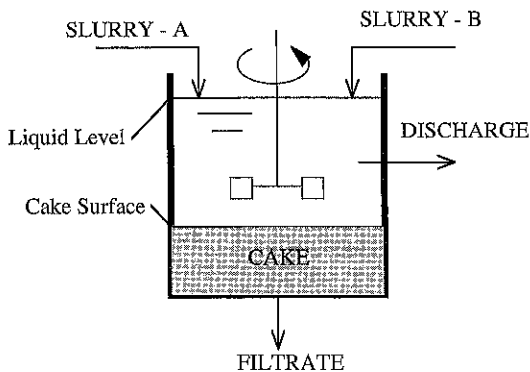


Fig. 7 Packing technique of binary mixture by use of filtration operation

傾斜組成体を得ることが可能である¹¹⁾。

ケーキろ過法の原理を Fig. 7 に示した。予め十分に分散させた任意濃度の二成分のスラリーを混合タンク内で混合し、これを直ちに吸引ろ過してろ過ケーキを作製する。このとき、二成分の供給濃度や供給速度あるいは抜き取り速度を変化させることにより、ケーキ厚さ方向の粒子組成を制御することが可能となる。

3.1 実験装置および実験方法

最も簡単な混合様式として、ここでは予めA成分を混合タンクに全量仕込んでおき、ろ過の開始と同時にスラリーの液位を一定に保ちつつB成分スラリーを供給する半回分式ケーキろ過の様式について検討した。使用した実験装置の概要を Fig. 8 に示す。混合タンクは内径75 mm 高さ100 mm のアクリル製で、中央下部には十字型攪拌羽根が取り付けられており、またタンク下部には内

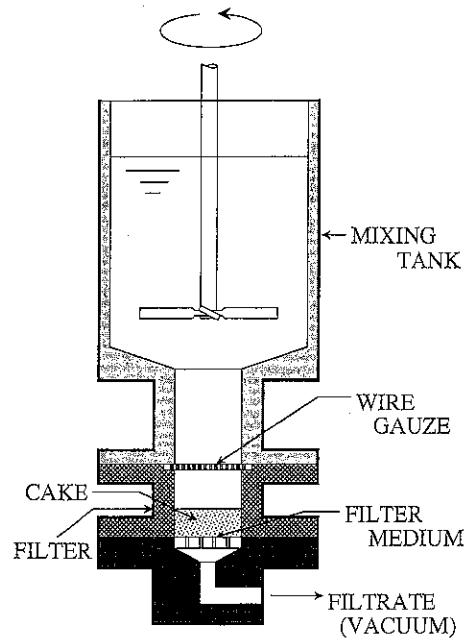


Fig. 8 Schematic view of experimental apparatus (cake filtration)

径20 mm 高さ60 mm の真鍮製ろ過部が設置されている。ろ過圧は一定で96 kPa とした。

試料としては一次粒子径が2.6~3.3 μm のニッケル粒子および気相浸透法で使用したのと同じアルミナ粒子を使用した。ニッケル粒子は溶液中で凝集しており、その二次粒子径は約20 μm である。また二成分系の沈降速度差の影響による傾斜組成分布への影響を調べるために、アルミナ粒子には前述の調整法に従って種々な径(28, 36, 41, 51および97 μm)に整粒したものをを用いた。

実験では予め300 ml のアルミナスラリーをタンク内に仕込んでおき、ろ過速度とニッケルスラリーの供給速度を等しくし、混合タンク内の液面高さを一定に保ちつつ吸引ろ過を行なった。そして所定量のニッケルスラリーを供給した後、タンク内のスラリーを全量ろ過した。ろ過終了後に混合タンクを取り外し、直径20 mm 長さ60 mm のステンレス製ピストンをろ過器に挿入し、一軸成形機により15 MPa で圧密を行なった。圧密ケーキを85°C で24時間乾燥させた後、マウント剤としてペトロボキシ154を使用して固定し、その断面をEPMAによるニッケル成分の面分析に供した。圧密した直後のケーキの例を Fig. 9 に示した。ケーキの上部がアルミナ層、下部がニッ

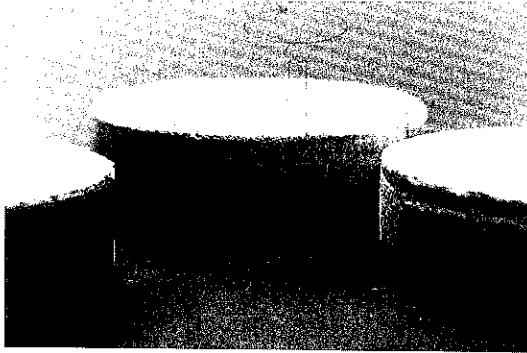


Fig. 9 Fabricated compositional gradient cakes

ケル層でその中間に各成分が傾斜混合されている様子が観察される。また各ケーキはスラリー濃度を変化させて作製したもので、濃度比により傾斜層部分の厚みを変化していることも確認できる。さらに傾斜組成層が連続分布であるため、乾燥過程における組成比の差に基づく割れは生じなかった。

実験では焼結体の作製についても検討した。すなわち、乾燥したケーキをアルゴン雰囲気中1350°Cで2時間焼結操作を行なった。焼結の昇温過程はアルミナの焼結特性に従って制御を行なったが、各成分の組成比によって焼結挙動がバランスせず、多少反りの生ずる焼結体を得られた。良好な焼結体を得るにはHIP等の操作、あるいは気相浸透法で良好な結果を得ているニッケル超微粒子を利用することなどが考えられるが、この点については現在検討をすすめているところである。

3.2 傾斜組成分布

Figs. 10, 11および12には、アルミナとニッケルの総重量を一定となるようにスラリー濃度を変化させた場合に得られるケーキにおける組成分布を示した。図では厚さ方向任意位置におけるアルミナの重量比として表わしてある。図の結果は整粒したアルミナ粒子径が36 μ mの例で、この場合にはニッケル粒子との沈降速度比がほぼ等しくなっている。ここで沈降速度は各凝集粒子の水銀圧入法で測定した空隙を基に算出した見かけ密度で比較を行なった。

二成分の沈降速度差が無視できる場合、任意時間におけるケーキ表面の組成と混合スラリーの組成は一致すると考えることができる。この場合、組成分布は二成分の物質収支とケーキろ過理論により推定することができる¹⁰⁾。図中の実線は理論的に推定した結果で、実測値とも

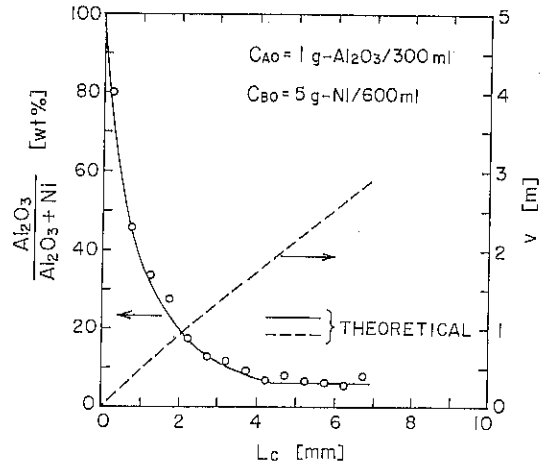


Fig. 10 Compositional gradient profile of alumina in a cake

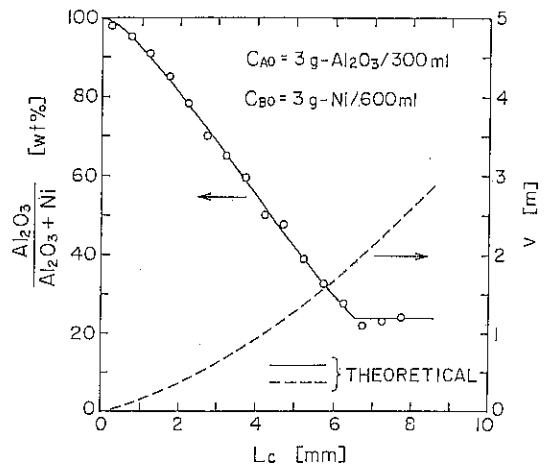


Fig. 11 Compositional gradient profile of alumina in a cake

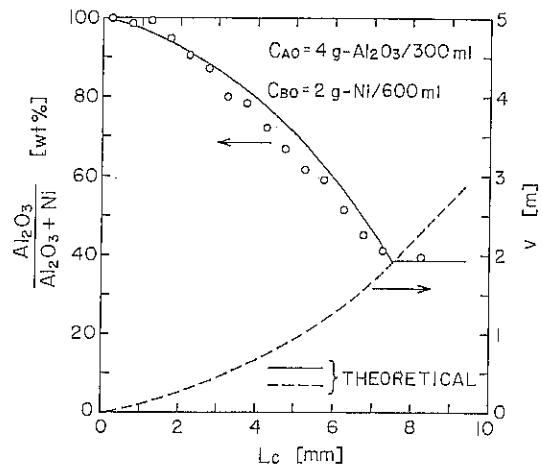


Fig. 12 Compositional gradient profile of alumina in a cake

よい一致を示している。また図には単位面積あたりのろ液量の推定結果も合わせて示した。簡単な混合様式でありながら、スラリー濃度を变化させるだけで図のように組成分布を大きく変化できることが確かめられる。なお、ケーキ上部において現われる一定組成の領域は、ニッケルスラリー注入終了後混合タンク内に残留するスラリーがろ過されて得られる部分である。

湿式ろ過法で得られたケーキについても、任意深さにおける二成分の分散状態を前述の混合度を用いて評価した。観測領域の分割等も前述のとおりである。その結果、沈降速度差のない36 μ m径のアルミナを使用した場合で混合度は0.92~0.97とかなりの一様性が得られたが、沈降速度差がある場合には0.7から0.95の間でかなりのばらつきがみられた。このことは沈降速度差が混合タンク内におけるスラリーの半径方向への分散状態に影響を及ぼしていることを示している。混合タンク内での二成分の分散状態を改善するための攪拌操作条件については、沈降速度差を考慮した傾斜組成分布の推定法と併せ現在検討を続けている。

4. 細孔内拡散機構による 傾斜組成層の作製

炭素系材料は、その優れた高温特性により高温ガス炉の炉心構造物等に広く利用されているが、酸化性雰囲気における耐酸化性の低さが問題となっている。そのため、安定なSiC等で表面を被覆して耐酸化性を改良することが考えられているが、長時間にわたる熱負荷サイクルによる被覆層の剝離が発生しないように工夫する必要がある¹²⁾。そこで、明確な界面が存在しない、すなわち熱応力が集中しない傾斜組成構造を持たせた被覆が考えられる¹⁷⁾。

以上の観点より本研究では、ガス状SiOの炭素系材料表面および細孔内拡散反応を利用して、表面から内部にかけてSiCの濃度勾配を有する傾斜層を形成させるプロセスについての基礎的な検討を行なった。形成されるSiC/C傾斜組成層は多孔質のままであるため、完全な被覆のためにはさらにCVD等によってSiCの緻密層で覆う必要があるが、ここでは傾斜組成層の形成機構に焦点を絞った実験および考察を行なった。

4.1 実験装置および実験方法

電気炉内に配した反応装置の概要をFig.13に示した。使用したSiO(和光純薬、試薬一級)は純度99.9%の粉末で高温にて容易に蒸発し、加熱された基材と表面およびその内部において図中の反応式に従いSiCを形成する。

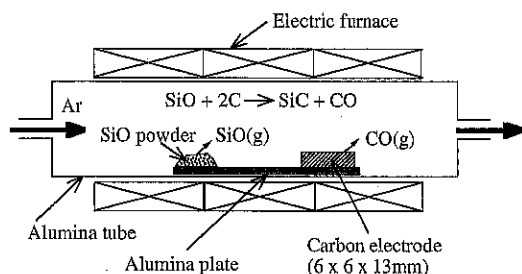


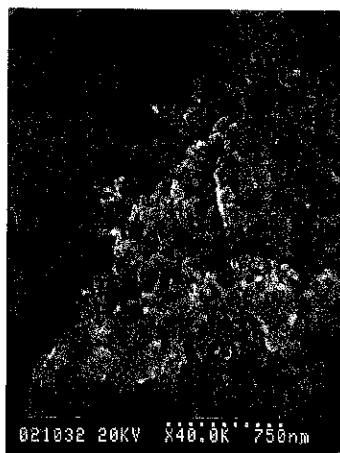
Fig.13 Schematic view of fabrication of compositionally gradient SiC/C layer

ここで基材の炭素電極には、直流モーター用整流子を6×6×13mmの直方体に切りだしたものを使用した。

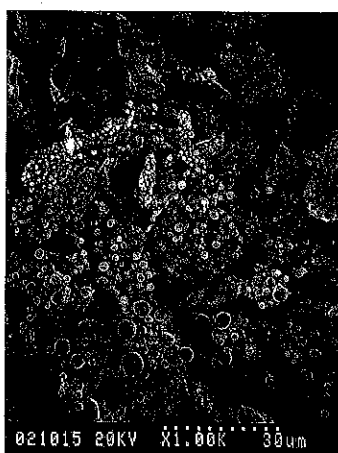
炉内の反応温度は1380°Cとし、反応時間を3から15時間に変化させてSiC層形成厚みの変化を調べた。昇温過程は室温から反応温度までを10時間とし、150°C2時間で基材内の吸着水分の除去を行なった後600°Cで2時間さらに1200°Cで2時間脱脂を行ない、その後反応温度までを2時間と設定した。これにより少なくとも基材表面近傍は炭素のみで、バインダーは完全に除去することができる。また反応速度に関する予備実験により、キャリアーガスの速度を1.2cm/s(0°C, 1 atm基準)、SiOと基材との距離を70mmと設定した。得られた傾斜組成体の流れに対しての正面部分(6×6mm)および上面部分(6×13mm)をSEMによる表面観察に供し、また中央部断面のEPMA観察によりSiに関する線分析を行なった。

4.2 SiC/C傾斜組成分布

Fig.14には、各反応時間後の電極上部表面をSEM観察した結果の例を示した。3時間経過後、SiOが表面の炭素粒子と反応して約50nmのSiC粒子を形成し、その後時間の経過に伴い粒子成長を起こし9時間後で約3 μ m、さらに12時間後ではこれら成長粒子が融合し、表面全体を覆う状態となる様子が観察された。なお生成されたSiC粒子はサンプル量が少ないため、現段階ではその結晶形の同定は行っていない。一方、各時間における内部へのSiC層の成長距離をEPMAによりSiに関して線分析した結果をFig.15に示した。図は反応5時間後の上面部と8時間後の正面部の観察結果である。ここで表面においてSi濃度がやや緩やかに上昇しているのは、脱脂により表面がやや不均一になっているためである。



(1) reaction time-3hrs

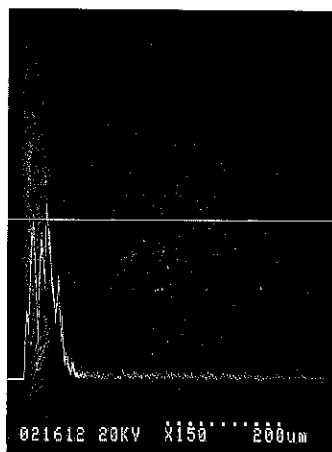


(2) 9hrs

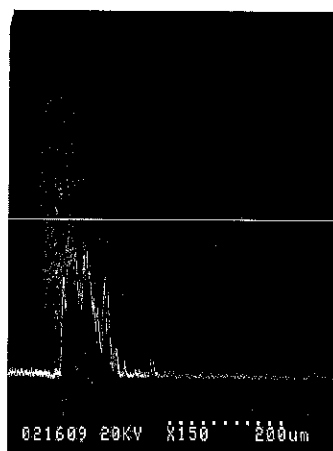


(3) 12hrs

Fig.14 SEM images of SiC on the electrode surfaces



(1) reaction time-5hrs (the front surface)



(2) 8hrs (the side surface)

Fig.15 Compositional gradient profiles observed under the EPMA

図のように、表面から SiC 濃度がほぼ一定に分布した後、内部にかけて減衰する傾斜組成分布が観測される。これらの図より SiC 濃度が一定と考えられる厚みと減衰する距離を測定し、反応時間による変化を調べた図を Fig.16 に示す。3 時間以降 SiC 一定層の厚みはほとんど変化せず、多少ばらつきはあるものの約 30 から 40 μm であった。この距離は電極の炭素一粒子の大きさ 30 μm にほぼ等しく、本実験の操作条件下で反応により完全に炭素を SiC に置換できる距離は表面から粒子一個分程度までであるといえる。また 3 時間以降傾斜層厚みは増加

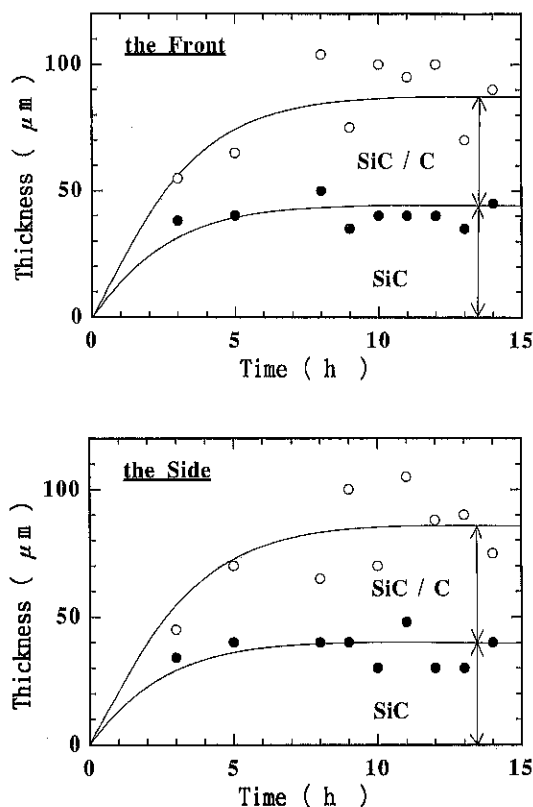


Fig.16 Thickness of SiC/C layer formed by reaction

する傾向がみられるが、8時間以降は基材の正面部および上面部ともに約80から90 μm でほぼ一定となり、それ以上内部での拡散は発生していない。

以上の結果より、 SiO の細孔内拡散反応を利用してSiC傾斜層を電極表面およびその内部に形成することが可能である。拡散距離すなわち傾斜層厚みを制御する因子である SiO の拡散係数と反応操作条件との関係、あるいは結晶構造を有する黒鉛を用いた場合の結晶方向と拡散距離との考察などについては今後検討をすすめて行く予定である。

5. おわりに

気相浸透法、湿式ろ過法および細孔内拡散反応法を適用した二成分系傾斜組成体の作製プロセスを検討し、以下の結果を得た。

1) 金属塩化物の水素還元で生成される金属微粒子をセラミックス粒子層内に浸透ろ過させて傾斜組成体を得るプロセスについて、代表的な材料系としてニッケル／ア

ルミナ系をとりあげて検討した。その結果、生成される金属ニッケルは超微粒子であるため、その効果により焼結温度が低下し、アルミナの焼結特性に応じた焼結操作によって割れや反りなどのマクロな欠陥のない焼結体を作製することができた。また二成分の分散状態を観測される成分と領域に関する相互エントロピーを利用して導かれる混合度を用いて定量的に評価し、極めて良好な分散状態を示していることが確認された。一方、ニッケル成分の傾斜組成分布はろ過モデルにより推定することができることを示し、さらにアルミナ粒子径を変化させた粒子層の利用により、組成分布が制御できる可能性も併せて示した。

2) 二成分系スラリーの湿式ろ過において、半固分式混合様式を用いて傾斜組成体を作製するプロセスについて検討した。その結果、二成分系の重力沈降速度差が無視できる場合には、各成分のスラリー濃度を変化させるだけで生成ケーキ内における傾斜組成分布を任意に変化させることができ、またその分布形状もケーキろ過理論により精度よく推定できることを示した。さらに、任意断面における二成分の分散状態も極めて良好であった。一方、沈降速度差が無視できない場合、混合タンク内における二成分の混合分散状態の改良が必要であり、この点については沈降速度を考慮した傾斜組成分布の推定法と併せて現在継続して検討を加えている。

3) SiO の細孔内拡散反応を利用して安定なSiCの傾斜組成層を炭素電極表面に形成するプロセスについて検討し、SiC/C傾斜組成層が形成される基本的な機構を明かにした。本プロセスに従えば、約3時間で電極表面の炭素粒子のほぼ第一層をSiCに置換することができ、その後は反応時間に応じて傾斜組成層を内部に形成させることができる。本実験条件下では100 μm 程度の傾斜組成層が確認されたが、この傾斜層厚みと反応温度あるいはSiの拡散速度との関係については、現在詳細な検討をすすめている。

引用文献

- 1) 新野正之, 平井敏雄, 渡辺龍三: 複合材料, 13, 257 (1987)
- 2) 新野正之: 化学工学, 53, 283 (1989)
- 3) 新野正之: 第5回傾斜機能材料シンポジウム講演集, p11 (1992)
- 4) 川崎亮, 広瀬仁幸, 橋本等, 渡辺龍三: 粉体および粉末冶金, 37, 929 (1990)
- 5) 新野正之, L. チェン: 表面, 31, 519 (1993)
- 6) 未踏科学技術協会, 傾斜機能材料研究会編: "傾斜

機能材料”，p11，工業調査会（1993）

- 7) 武部博倫，手島卓也，中島真澄，森永健次：日本セラミックス協会学術論文誌，100，387（1992）
- 8) 森英利，石川英二，中村正秋，外山茂樹：粉体工学会誌，29，254（1992）
- 9) H. Mori, M. Nakamura and S. Toyama：Cer. Trans., 34, FGM p393（1993）
- 10) 森英利，桜井幸夫，中村正秋，外山茂樹：粉体工学会誌，31，320（1994）
- 11) 岩田政司，李元徳，中村正秋，外山茂樹：粉体工学会誌，29，762（1992）

会誌，29，762（1992）

- 12) 新藤雅美：傾斜機能材料，No.19，p14（1992）
- 13) 新谷光二，宇田雅広：第4回傾斜機能材料シンポジウム講演集，p103（1991）
- 14) 森英利，木村典夫，外山茂樹：粉体工学会誌，29，18（1992）
- 15) 小川浩平：化学工学論文集，10，261（1984）
- 16) 白戸紋平：“化学工学”，p170 丸善（1980）
- 17) 木下貴史：化学工学会第27回秋季大会講演要旨集（1994）印刷中

特許一言メモ No. 141

—米国「先発明」固執で暗礁に—

各国の特許制度を共通化しようという特許調和条約の締結が，暗礁に乗り上げている．米国が世界の主流である先願主義へ移行の方針を撤回したのが93年9月，94年1月にはブラウン米商務長官が「（日米包括経済協議など）他の国際交渉中は先発明主義を維持する」との声明を発表，行方に注目が集まっている日米包括経済協議は物別れのままで，米国が先願主義に移行する条件は整っていない．講和条約が成立し，研究者や企業が特許を巡る「無用のトラブル」から解放されるのはいつになるのか．

日本とドイツの自動車会社14社が1992年秋から17年間，米国の発明家に多額の使用料を支払わなければならなくなった特許がある．出願されたのは54年，日独の自動車会社から見れば，38年間も「潜航」していた特許が突然「浮上」してきたことになる．米国の特許制度でも，特に悪名が高い「サブマリン特許」の例である．

こうしたことは日本や欧州諸国ではありえない．特許の権利期間は出願から20年と決まっている．日欧には公開制度があるため，特許の内容は出願後1年半で公開され，「突然」に浮上はできない仕組みにもなっている．

経済活動や研究開発が国際化するにつれ，各国の特許制度がまちまちであることが原因となって様々なトラブルが多発するようになった．「ビジネスや研究開発計画に支障をきたす」という声が日欧を中心に起こり，世界知

的所有権機関(WIPO)で特許調和条約締結への動きが始まった．

ところが，特許調和条約交渉の10年は挫折の歴史でもあった．常に焦点となっていたのが米国の特殊性．日米包括経済協議で日本の特殊性をあげつらう米国は，特許の世界では日欧から「特殊な制度を変えろ」と言われ続け，対応を小出しにし，国際公約をほごにし続けた．

米国の特殊性のなかでも批判が強いのが先発明主義である．特許は新技術の発明者の権利を保護する制度だが，発明者と認定する条件「最も早く発明した人」とする方式である．

先発明主義は特許の精神からは理解できるが，制度としては問題が多いとされている．ある人が特許を出願した後に，「その技術は実は私が先に発明していました」と主張する“発明家”が現れ，混乱するケースがどうしても出てくるからだ．日欧ではそのため，最も早く特許を出願した人に権利を与える「先願主義」を採用している．

正確に言えば，米国も原則は先願主義をとっている．ところが米国人に限り出願前の発明段階での優先権を認め，先発明主義を適用することになっている．米国が先発明主義などの特殊性を捨てられない背景には，米国内の発明家の存在がある．……

（日経 6. 3. 7より抜粋）

（特許室）

粒体の供給方法と空隙率特性

The Effect of Filling Methods on Void Fraction
of Bulk Solids in a Cylindrical Vessel

森山 龍一* 大隈 淳二*
Ryuichi Moriyama Junji Okuma

1. 緒 言

容器内粒体層の空隙率は、古くから様々な方面からのアプローチが行われている。しかし、供給方法と空隙率の関係の調べた報告は比較的少ないように思われる。本研究では、サイロやビン内の流動に関するトラブルの観点から、容器への粒体の供給方法の違いと空隙率の変化について調べた。その結果、若干の知見が得られたので報告する。

2. 実験装置及び方法

実験装置の概略を Fig.1-1, Fig.1-2 に示す。試料はガラスビーズ (GB 708)、砂を用い、その性質を Table 1 に示す。

実験 1：平均空隙率の測定

実験方法は、供給器①から試料をシリンダー⑥へ供給した後、ナイフエッジでシリンダー上面を水平にならし充填した試料の質量を測定した。供給方法は、供給器①から試料をシリンダー⑥の中央部へ落下させる中央供給 (C.F.)、試料をボール③に当て円盤④の周りでシリンダー周辺部へ均等に落下させる周辺供給 (P.F.)、周辺供給を100%の開孔率として、周辺供給の円盤の一部を塞いだ円弧周辺供給 (Fig.1-2 の's'を変えて開孔率を変化させる) で行った。

実験 2：空隙率分布の測定

実験 1 と同様に供給して、ナイフエッジでシリンダー上面を水平にならした後、シリンダーの上に円管⑩を置き、工業用掃除機⑩のスイッチを入れて、真空室⑨の圧損をマノメータで読む。そして、シリンダー上面の A -

B 方向 (Fig.1-2) の風速を 1 cm 毎に熱線風速計を用いて測定する。このとき、シリンダーと真空室の間の整流板⑦には 1.2mm の穴を 1 cm² 当り 8 個開けて、その上に 80 メッシュの真ちゅう網を置いた。空筒時の圧損はほとんど

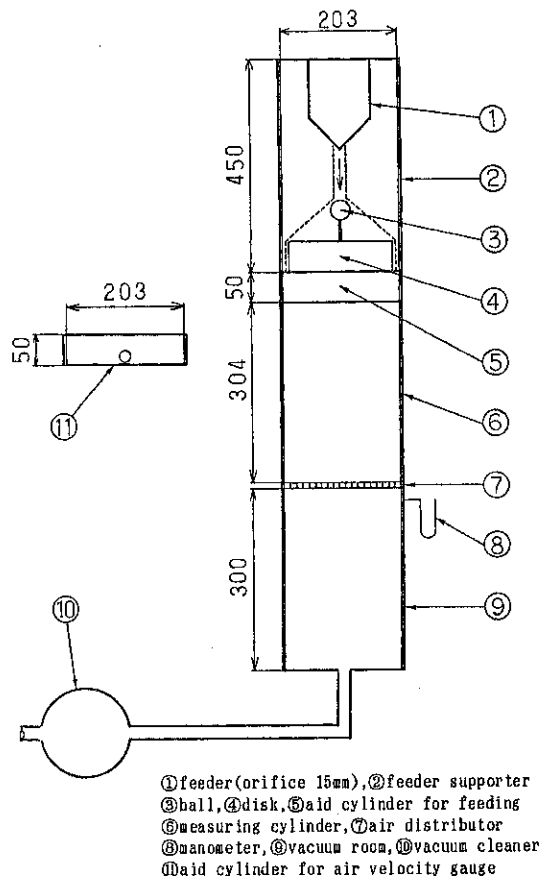


Fig.1-1 Experimental apparatus

* 福岡教育大学 技術科
(〒811-41 福岡県宗像市大字赤間729)
Tel (0940) 35-1400

Table 1 Properties of bulk solids used

Bulk solids	Feeding method	Particle size [mm]	Bulk density [kg/m ³]	Angle of repose [deg.]	Angle of wall friction [deg.]
Glass beads (GB708)	Central f.	0.35-0.59	1468	28.60	19.27
	Peripheral f.		1622		22.23
Sand	Central f.	0.35-0.71	1409	37.85	13.33
	Peripheral f.		1585		18.81

Table 2 Average void friction

	GB708		Sand	
	C.F.	P.F.	C.F.	P.F.
Measuring cylinder	0.417	0.356	0.451	0.382
Ergun's formula	0.415	0.347	0.436	0.362

C.F.; Central feeding P.F.; Peripheral feeding

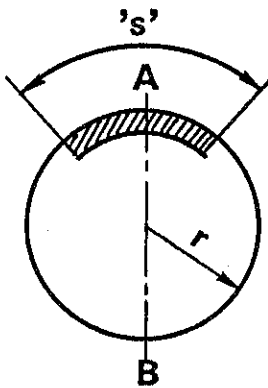


Fig.1-2 A circular arc opening feeder

$S_p = 2 \pi r$; peripheral feeding

$\frac{s'}{S_p} \times 100$; arc opening rate [%]

なく風速は半径方向で一様であった。さらに、空隙率(ϵ)はこの圧損 (ΔP) と風速 (u) を使って、次の Ergun の式で求めた。

$$\frac{\Delta P}{L} = 150 \cdot \frac{(1-\epsilon)^2}{\epsilon^3} \cdot \frac{\mu u}{d^2} + 1.75 \cdot \frac{1-\epsilon}{\epsilon^3} \cdot \frac{\rho_a u^2}{d}$$

3. 実験結果及び考察

まず、A-B方向の風速分布の1例を Fig.2に示す。この結果、粒体の供給方向の違いでかなり風速分布の傾向が異なることがわかる。

3.1 容器全体の平均空隙率

1) 中央供給と周辺供給の違い

先の風速分布を面積積分して、平均の風速を算出し、中央供給と周辺供給の平均の空隙率を Ergun の式から求めると Table 2 のようになる。すなわち、ガラスビーズ (GB708)、砂共に、中央供給が周辺供給より約10%程度かさばることがわかる。これは次のような粒体の性質から考えることができる。

- ① 供給時の落下点は粒子の衝突などがあり、再配列によって安定した層構造になり、密充填する。
- ② 粒体層は落下点から流れ込む方向で支持される。したがって、中央供給は粒子が中央から周辺へ流れ込み、周りの壁方向で支持されて (passive 場) 疎充填になる。一方、周辺供給は、その逆で、周辺から中央へ流れ込むが、その中央部に粒体支持面がなく、鉛直方向に作用し active 場になる。^{1),2)}

2) 円弧周辺供給の空隙率

円弧の開孔率を変えて供給した時の平均の空隙率の違いを Fig.3に示す。この結果、開孔率が小さいほどかさばり易いことがわかる。そして、その値は中央供給の結果に近い。この理由は、供給口の円弧が小さいと、中央供給の充填構造とほぼ同じ充填パターンになるからと思われる。すなわち、落下点から反対壁面方向へ Fig.4のように流れ込むとき、流れ込む側で粒子が支持される性質¹⁾によるものと思われる。

3.2 容器断面方向の空隙率分布

1) 中央供給と周辺供給の空隙率分布

中央供給と周辺供給に基づく空隙率分布を Fig.5に示す。

これによると、

- ① 中央供給が大きく、周辺供給が小さい。
- ② 中央供給は落下点の中央部で低く、壁方向で高くなり、そして、壁面付近で低くなっている。

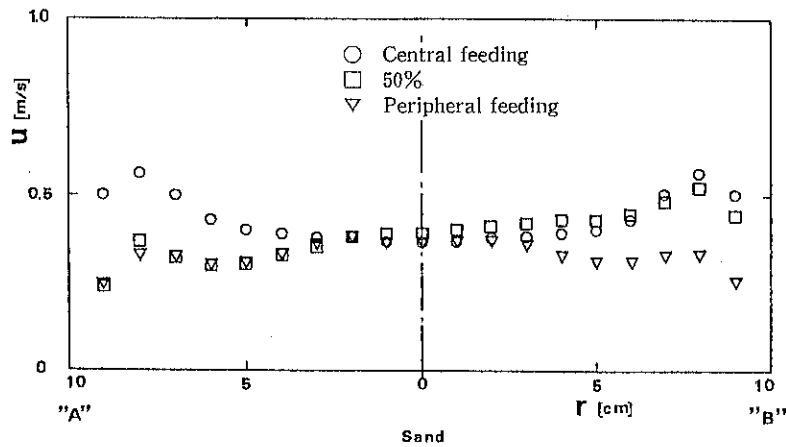
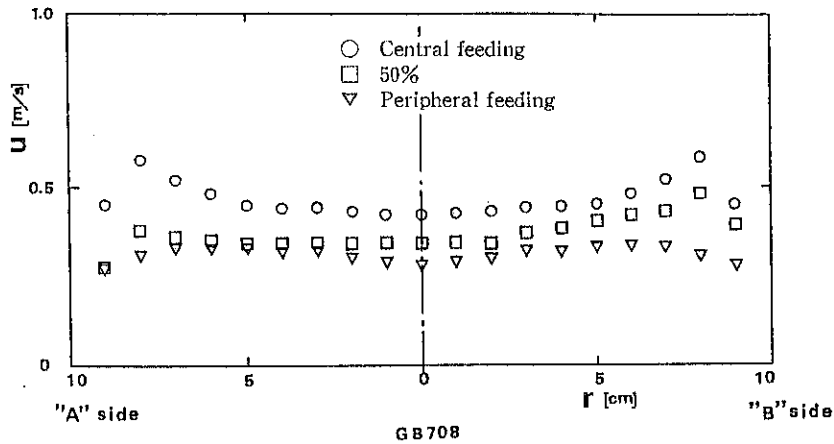


Fig.2 Air velocity distribution

③ 周辺供給の場合、砂は落下点の周辺でやや低く、中央部で若干高くなっている。ガラスビーズは砂ほどはつきりしないが、中央供給に比べるとやはり周辺で低くなる傾向がみられる。

ここで、Ergun の式で計算した平均空隙率と実験 1 で求めた値を比較すると Table 2 のようになり、平均空隙率がほぼ一致することがわかった。

これらの結果から、容器内の空隙率は粒体の落下点部が低く、流れ込む側の方でいくらか高くなる傾向があると言える。これは先に述べたように、落下点部は粒子間

の衝突や再配列によって比較的密充填になる。そして、密充填部は粒子間の摩擦力が強く、その質量の一部は水平方向に支持されるように波及する。したがって、その支持点は、中央供給の場合は周辺部で、周辺供給の場合は中央部で支持されるようになり、支持される方向に鉛直質量が増すことが考えられる。すなわち、中央供給は壁面方向で支持されて passive 場となり、平均の空隙率も大きくなる。一方、周辺供給は、中央部に壁のような粒体支持面がないので、その支持質量の一部は鉛直方向 (active 場) に加わる。そのとき、壁面付近の落下部は

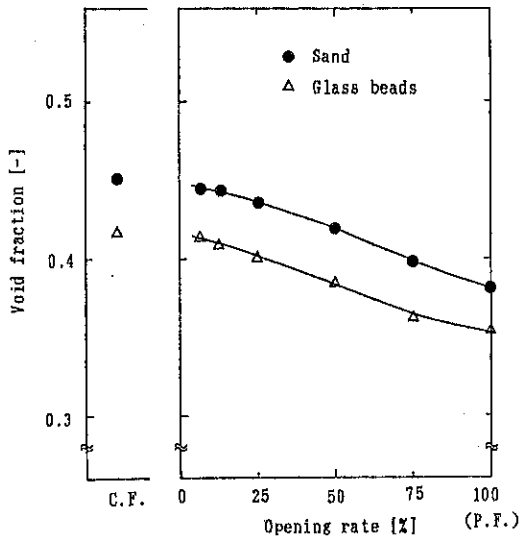


Fig. 3 Average void fraction for central feeding, a circular arc opening rate and peripheral feeding

粒子間の衝突や再配列によって密充填になる。これらの結果は、先に報告した円筒形容器の底圧分布と同じ傾向を示す^{2b,3)}。すなわち、粒子の落下点付近で底圧が低く、流れ込む方向に底圧が増加する傾向があった。

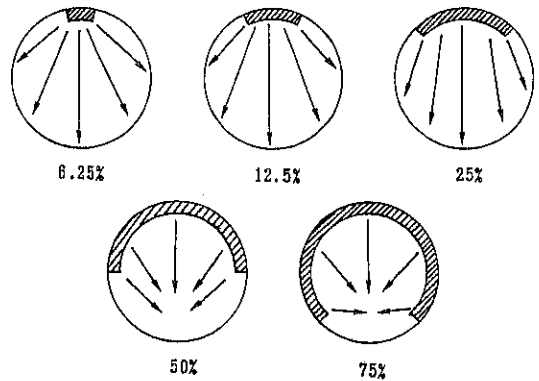


Fig. 4 Illustration of the arc opening feeding

2) 円弧周辺供給の空隙率分布

円弧供給の開孔率を変えたときの空隙率分布 (A-B断面) を Fig. 6 に示す。ここで、図の "A" は粒の落下点側, "B" はその反対側の壁面を示す (Fig. 1-2 参照)。これによると、

- ① 開孔率が小さいときは、全体的に空隙率が大きく、特に落下点側とその反対側の空隙率に変化が見られない。
- ② 開孔率が50%に近いとき、落下部とその反対側で空隙率が大きく変わり、落下部が低く反対側で高くなる。

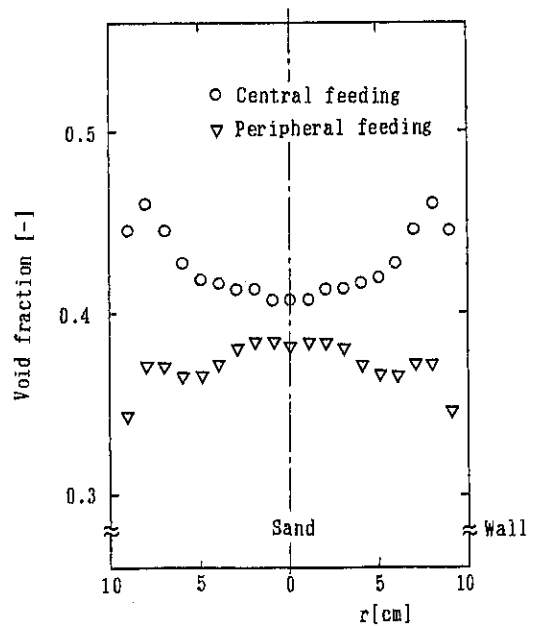
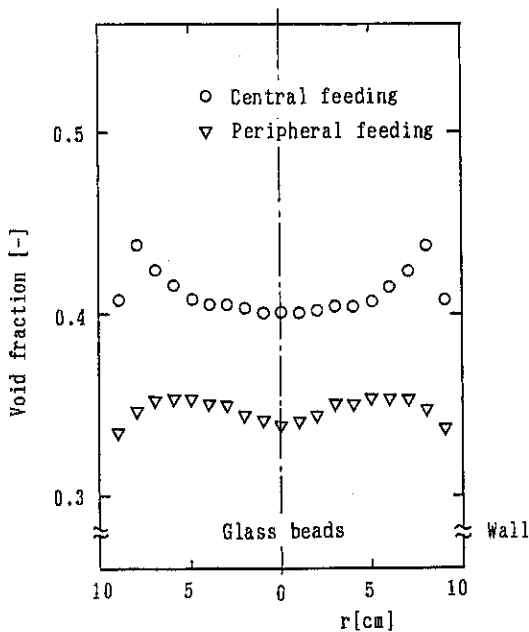


Fig. 5 Void fraction distribution

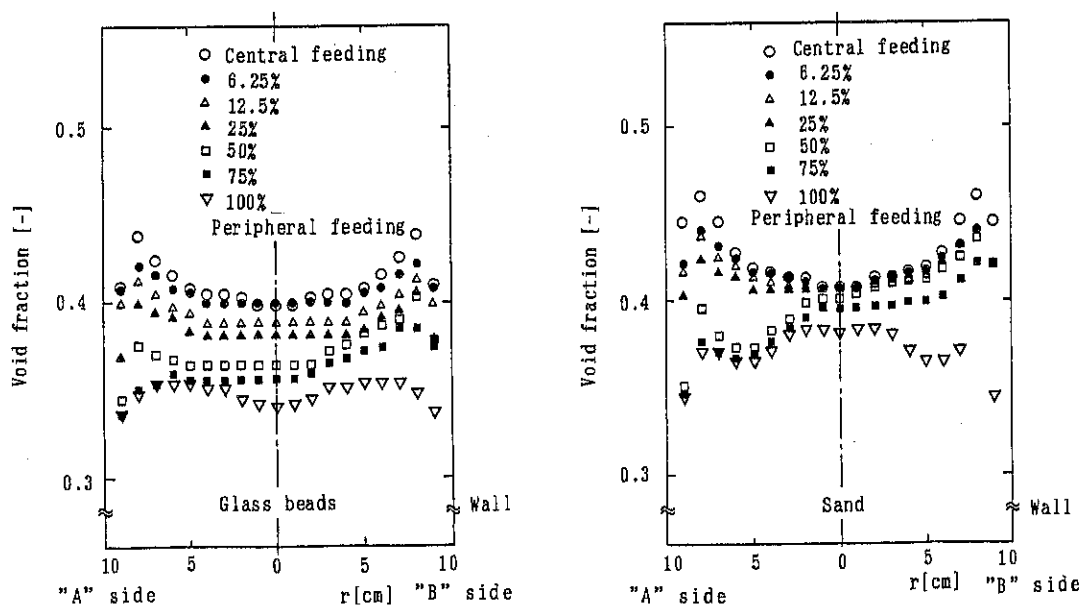


Fig.6 Void fraction distribution for the arc opening rate

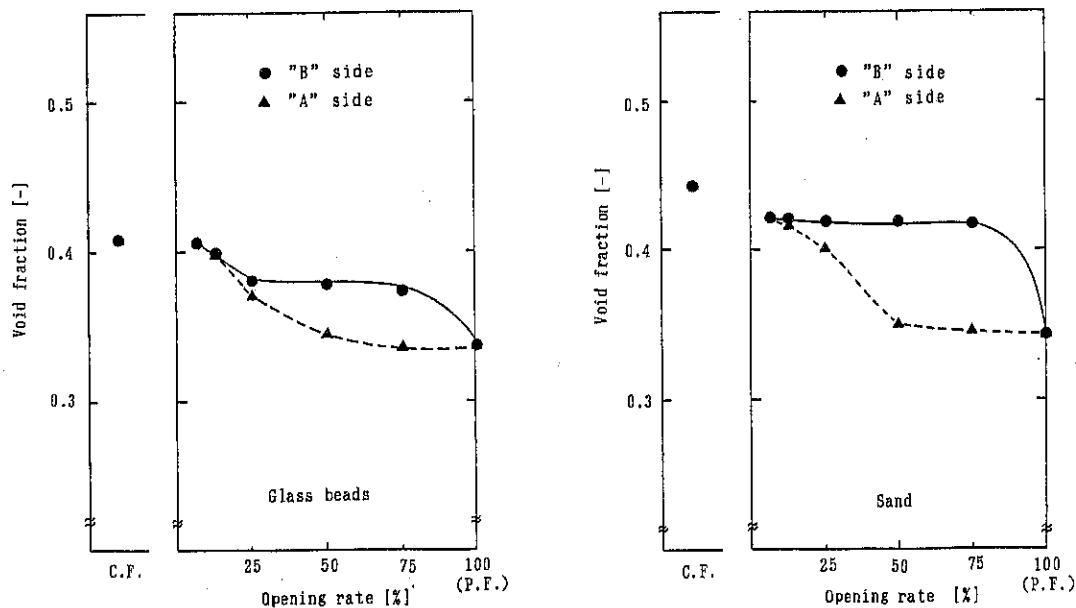


Fig.7 Void fraction of dropped side and opposite side measured at $r/R=0.9$

この傾向はガラスビーズ、砂ともに見られるが、特に砂ではっきりする。

③ 開孔率がさらに大きくなると、反対側の空隙率も低くなって周辺供給の結果に近づく。

次に、容器中央から $r/R=0.9$ (中央から壁面方向へ r 、壁面までの距離を R) の落下点側 (A点) とその反対側 (B点) の空隙率を Fig.7に示す。

これらの結果から、円弧供給の開孔率が狭いと全体的に中央供給の特性のようにかさばる。しかし、開孔率が半円弧近くになると、落下点側が密充填になり、その反対側の方だけが疎充填になる傾向があらわれ、先の中央供給と周辺供給の中間の特性になる。

4. 結 言

以上のことから次のことが言える。

1) 中央供給は周辺供給より約10%位かさばる。

2) 円弧周辺供給の平均空隙率は、開孔率が小さいときは中央供給に近く、開孔率が大きくなるにつれて周辺供給に近づいていく。

3) 円弧周辺供給の開孔率が50%位になると、落下点側と流れ込む反対側の空隙率に差が生じてくる。これは反対側が passive 場でかさばり易いからと思われる。

4) Ergun の式で求めた平均空隙率と、実測した平均空隙率とは比較的良好に一致する。

参 考 文 献

- 1) 上滝具貞, 森山龍一: 粉体工学会誌, 16, No.4, 184 (1979)
- 2) 上滝具貞, 森山龍一: 粉体工学研究会誌, 14, No.11, 609 (1977)
- 3) 上滝具貞, 富田侑嗣, 森山龍一: 粉体工学研究会誌, 10, No.3, 131 (1973)

特許一言メモ No. 142

一新・実用新案の活用一

1. 無審査主義とは

(1) 新・実用新案の特徴は、考案の新規性や進歩性などの登録要件が審査されることなく実用新案登録される点にある。

このように、実体的な要件を審査することなく登録する主義を、一般に無審査主義とよんでいる。

しかしながら新・実用新案権も特許権と同様に、新規な考案を公開する代償として与えられる独占権である以上は、従来通りその考案が実体的要件を満たし、技術内容が理解できる程度に開示された書面を出願され、かつ権利範囲が明確にされていなければならない。

(2) 書式的方式審査は従来通り行われる。

(3) 基礎的要件の審査

物品の形状、構造、組み合わせか

公序良俗に反しないか

出願が単一性か

必要項目があり、不明確記載がないか など

2. 無審査主義の特徴

(1) 企業から見た長短

出願人・権利者の立場で見ると、出願から6ヶ月程度で登録され独占権が発生し、実用新案技術評価書の提示など一定の条件下で権利行使ができるメリットがある。しかしながら、権利が出願から6年と短い、補正は出願から2ヶ月以内、また登録後の明細書補正は請求項の削除だけ、などで先行技術は十分な調査を要する。

第三者の立場で見ると、登録後2ヶ月程度で公報が発行されるとして早期に権利内容が把握できる。「評価書」を請求して権利の“強さ”を判断できる。登録無効の審判も6ヶ月程度で処理されるようで決着が早い。権利も出願から6年で短い。しかしながら、広報は権利書としてチェックしなければならず、この点負担は増える。また、有効性に疑問があるものでも権利行使の可能性はあり無用の紛争に巻き込まれるおそれも出てくる。また、従来の公告に対する異議申し立てがなく、無効審判請求の手続きのみとなる。

(発明 Vol.91 No.4 P84より抜粋)

(特許室)

強力な音場によるエアロゾル分散相の凝集

Agglomeration der dispersen Phase von Aerosolen durch starke Schallfelder[†]

著者 Bernhard Schetter* Joachim Funcke*

訳者 小室 弥栄** 中島耀二**
Yasaka Komuro Yoji Nakajima

1. はじめに

強い音波の作用によって、エアロゾル粒子が100個以上集まって一個に凝集することは約60年前から知られていた。これは音波凝集と呼ばれ、固体や液体のエアロゾル分散系に見られる。固体のエアロゾルは、音波の照射により凝集しブロックを形成する¹⁾。また、液体のエアロゾルでは、表面張力に基づき凝集し、球状の液滴になる。音波凝集の周波数特性は、粒子の大きさ、密度、エアロゾルの濃度に強く依存する。音場の強度に対しても同様である。はっきりした凝集作用は音圧が120~160dB、またはそれ以上で観測され、今までに有効であった周波数は可聴域の500Hz から中域の超音波である100kHzまでの範囲にわたっている。

音波凝集は含塵ガスの処理に利用できる²⁾。高温高压下での微小粒子の完全な除去は、現在でも困難な問題である。しかしこのような含塵ガスを音波処理すると、粒径分布が粒子径の大きな方向に移動すると予想される。音波凝集により生じた凝集塊は高温であっても大きな圧力損失なしに通常のサイクロンやセラミックフィルターで分離できる。このため例えば流動層ボイラーのような加圧燃焼プロセスの煙道ガスを精製した後、駆動ガスとしてタービンに直接送り込むことができるようになるかもしれない。また、換気装置の中で粉塵爆発を起こしやすい炭塵などを音波処理により予め分離してしまう事も

考えられる。

しかし実用スケールでの音波凝集は今日でもまだ実施されていない。これは音波凝集の原理と効果について今までに明解な結論が出されていない事による。このため実験室スケールの研究装置について繰り返し報告されている^{3,4)}。実用機のための最適な運転条件も検討されてきたが、それに必要な周波数範囲の音波を十分な出力で発生できる適当な音源がないことでいつも挫折している。

2. 実験装置

2.1 エアロゾルと凝集器

実験装置の構造は幾つかの点で、従来の実験装置と全く異なっている。この実験では可能な限り理想化された条件での音波凝集の経過を、測定技術的に申し分なく追跡したい。このため実用的な装置構造をとらず、音波凝集の原因を良く理解できるように、できるだけ理想的な条件が実現できる構造にした。

実験装置に関して次の点に留意した。

①エアロゾル粒子の形状と密度：エアロゾルへの音波の照射は気相中で個々の粒子を運動させる。この運動は粒子の形と密度が分かっているれば、流体抗力と慣性力のバランスによって記述することが出来る。最も簡単な場合は一様な密度の球形粒子である。噴霧あるいは凝縮した液滴が最適である。2つの液滴が合体すれば単一の大きな液滴を形成し⁵⁾、表面張力のために球状となる。凝集粒子の形と再分裂の問題は液滴粒子を用いれば生じない。そこで体積平均直径が約5 μm の水滴を発生する超音波噴霧器を使用することにした。

②一様な音場：凝集器内の全ての場所で音波の強度が同じでなければならない。このために、定在音場で生じ

[†]原典 (Fortschritt-Berichte VDI Reihe 3 Nr.196. Düsseldorf:VDI-Verlag 1990)

* RWTH Aachen

**北海道大学工学部合成化学工学科
(〒060 札幌市北区北13西8)

Tel (011) 716-2111 Ext.6592

るような音波強度の位置依存性をなくす。音波の照射を進行波の形で行うと、音圧と変位速度が位置によらない。

(変位速度：音波を媒体の振動として捉えたとき、媒体の変位の速度のこと。音響学ではこれを粒子速度と呼ぶようであるが、エロゾル粒子の速度と紛らわしいのでここでは混乱を避けるため変位速度と呼ぶことにした。) このため、音の反射を完全に避けなければならない。定在音場は入射波と反射波の重なりにより生じるからである。この目的に凝集空間の音響終端には吸音材を用いた。またエロゾルによる音の減衰にも考慮した。このことが凝集空間の長さを決定する。凝集空間が長すぎると音の強度は音源付近よりも終端付近で弱くなり、音場の一様性が得られない。このため、凝集器の長さは500mmに決められ、エロゾルによる音の減衰を3 dB以下に抑えた。

③音源：音圧レベル、周波数、音波の照射時間に関して、できるだけ簡単に、かつ広範囲に変化できる音源として中域用ホーンスピーカのドライバを用いた。実験の照射音波は145～150dBの音圧強度で、800～3200Hzの純粋な正弦波である。この条件は予備実験により決めた。予備実験では500Hz～10kHzの範囲で凝集の周波数依存性を調べたが、はっきりした依存性はなかった。また140dB以下の音圧では凝集過程が遅かったが、160dB以上では非常に急速な液滴の成長が見られた。

④凝集空間の流体の流れ：音波の照射の間、スピーカの周囲に対流が起きるために、エロゾル中に流体の流れが生じる。その上、凝集空間に速度分布があれば、壁面近くの体積要素は中心部よりも長い滞留時間を持つ。このため、流通系で実験を行うと、エロゾル中の各々の体積要素は異なった時間の音波の照射を受けることになり、測定された液滴の粒度分布の変化を一定の照

射時間の結果として見なす事ができない。これを防ぐために、後述の音波凝集管を用い、密閉した凝集空間に音波を照射する事にした。

⑤エロゾルの処理量：凝集の過程で粒子数は著しく減少し、個数濃度は1桁も2桁も変化する。上記のようにここでは密閉式の音波凝集管を用いて実験するが、一本の凝集管は限られた量のエロゾルしか収容できない。そこで凝集管を自動的に交換する装置を製作して繰り返し実験を行ない、統計学的に確かな測定結果を得るために充分な量のエロゾルを処理できるようにした。

Fig.1は凝集器の構造の概略を示す。これは6本の音波凝集管(内径25mm、長さ500mmのパイレックスガラス管)を円周上に等間隔に配置したリボルバー構造になっている。リボルバーは60°ずつ回転し、音波凝集管を次々と目的の異なった開口部に食い違いなく正確に接続する位置で停止する。第一の開口でエロゾル(水滴)が充填され、次の開口で音波が照射される。第三の開口では、空気圧により制御されたピストンにより音波凝集の終わったエロゾルが音波凝集管から押し出される。排出口下部にはノズルがあって、凝集管の直径の25mmを口径5 mmまで細く絞り、エロゾルを光学式粒子計数装置の測定部に射出する。残りの3つの開口では、圧縮した清浄な空気を吹き込んで凝集管内部を洗浄、乾燥する。

2.2 供給と測定法

Fig.2に実験装置全体の概略を示す。圧力7 barの圧縮機で空気とエロゾル(水滴)が実験装置に供給される。この空気はマイクロフィルターにより濾過された後、エロゾルの発生や凝集管の洗浄などに使われる。エー

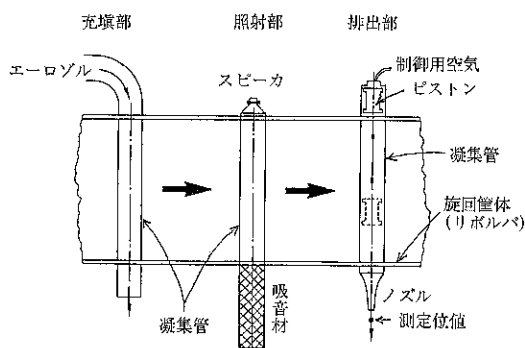
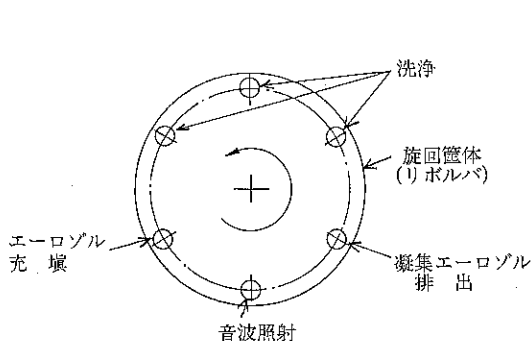


Fig.1 凝集部説明図

ロゾルの発生には市販の超音波噴霧器を用いた。この超音波噴霧器に供給する空気と蒸留水の量は流量計により管理され、これにより水滴の濃度を調節できる。

照射する音の周波数の信号を発振器で発生させ、増幅器に必要なレベルに増幅する。この信号の持続時間、つまり音波の照射時間は、水晶タイマーで制御された。実験は50～800msの音波の照射時間で行われた。また音波凝集管内の音圧測定のために外径2.36mmの小さな半導体音圧計を用いた。この音圧計は増幅器を通してオシロスコープと交流電圧計に接続されている。

音波凝集管の終端部に接続される吸音部からの反射は周波数に依存するが、およそ7%であった。

液滴の粒度分布を測定するために散乱光測定装置が用いられた。音波凝集管より押し出されたエアロゾルは測定部の測定体積 ($20 \times 20 \times 20 \mu\text{m}$) を一定速度で通過する。この測定体積には5Wのアルゴンレーザー光が集束されていて、エアロゾルにより散乱光が生じる。この散乱光は側方におかれた光電子増倍管で電気信号に変換される。この出力信号は高速波高解析装置と時間解析装置で記録され、プロセスコンピュータで統計的に誤差が補正された後、粒子径分布に換算される。

3. 実験結果

エアロゾルの凝集は音圧の上昇と共に促進され、また

凝集には最適な周波数が存在すると予測されている。そこでエアロゾルの凝集に対する音圧、周波数、音波の照射時間、及びエアロゾルの濃度の影響を実験的に調べた。なお、すべての実験は同一条件に対して40回繰り返し、統計的なゆらぎの少ない直径 $30 \mu\text{m}$ 以下の粒子を考察の対象にした。

超音波噴霧器からは約 $1 \sim 20 \mu\text{m}$ の粒径範囲で、質量基準の最頻直径が $2.5 \sim 3 \mu\text{m}$ (理論値 $2.67 \mu\text{m}$) に存在する水滴が発生された。その粒子径分布は対数正規分布に良く従っていた。発生水滴の個数濃度を $1.05 \times 10^{12} [\text{m}^{-3}]$ に調整し、周波数は800, 1600, 3200Hzの3種、音圧は145dBと150dBの2種とし、音波の照射時間は0, 50, 100, 200, 400, 800msの条件で測定した。音波凝集によるエアロゾルの粒度分布の変化の様子は後述のシミュレーション結果との対比の節で例示する。いずれの凝集条件でも明らかな凝集が観測され個数濃度が減少し、直径 $50 \mu\text{m}$ に成長した粒子もあった。同じ音圧で周波数を変えて比較するとわずかだが周波数の影響が認められた。周波数依存性についてははっきりした結論は出せないが、強いて言えば3種類の周波数の内、1600Hzが最も効果があるように思われた。音圧が145dBでは150dBのときと同じ粒径分布スペクトルを得ようとすると、約2倍の音波の照射時間が必要であった。(6 dBの差が2倍の強度差に相当する。) また音の照射時間が長くなると、粒径

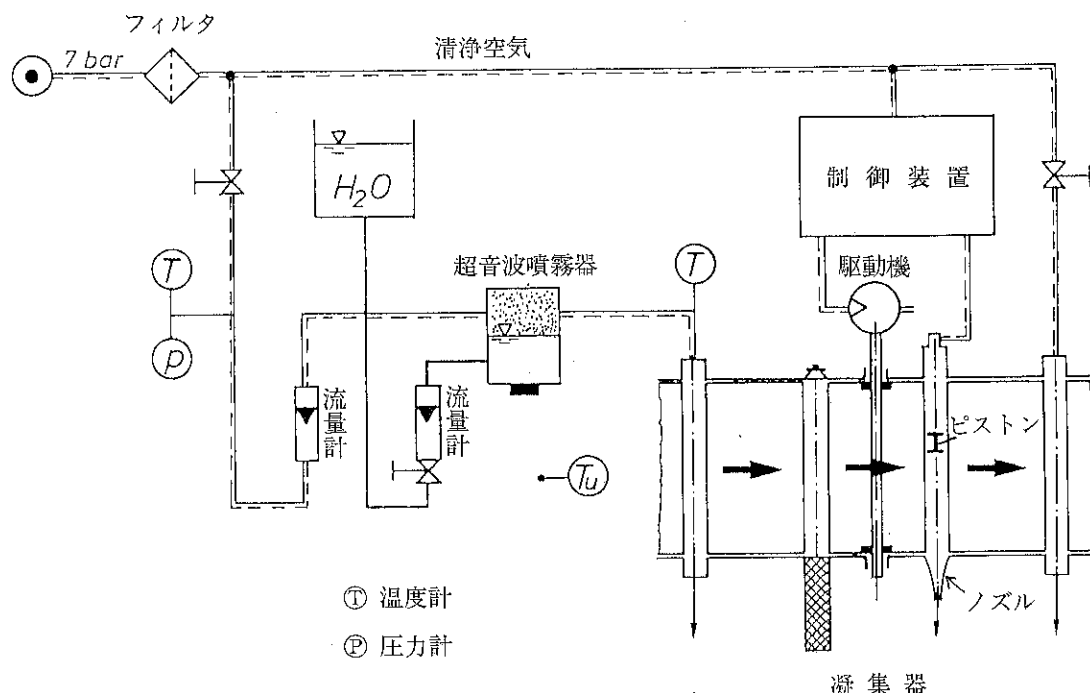


Fig. 2 実験装置全図

分布が広がり凝集が促進されることが分かった。次に同じ音圧、周波数で、水滴の個数濃度を $0.38 \times 10^{12} [\text{m}^{-3}]$ と $1.69 \times 10^{12} [\text{m}^{-3}]$ で測定したところ、液滴の成長速度は濃度の高い方が明らかに速かった。これは粒子間距離の差が原因である。

このような測定結果を次のように無次元量でまとめた。まず音波凝集の効果を重量基準の粒度分布の最頻粒子径の相対的な変化、つまり $\Delta D_{\text{max}} / D_{0\text{max}}$ で表す。ここで $D_{0\text{max}}$ は音波照射前の最頻粒子径、 ΔD_{max} は音波照射後の最頻粒子径の $D_{0\text{max}}$ からの変化量である。実験から、音圧 $\bar{p}$ と照射時間 t の積が等しければ凝集の効果が同じである事がわかった。また初期の平均粒子間距離 s_0 が小さいほど凝集が進む事がわかった。そこで $\bar{p}t / s_0$ を凝集の進行の指標にしてみるが、これは無次元量でないので音圧を変位速度 $\bar{v} [= \bar{p} / (\rho_a c_0)]$ に書き換える。ここで ρ_a は空気の密度、 c_0 は音速である。すると無次元量 $\bar{v}t / s_0$ が作られる。この量はストローハル数と同形なので Str で表す。すべての実験結果を Fig. 3 にまとめて示した。(訳注 1)

この測定結果から音波凝集では、短時間で粒子同士の凝集を促進する強力な効果が作用していることがはっきりわかる。

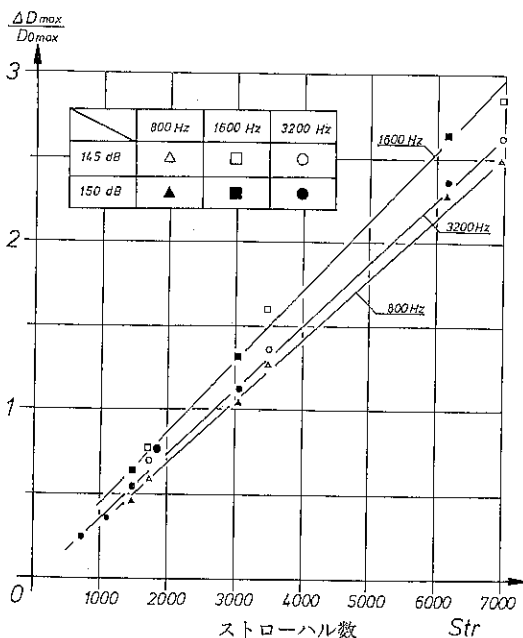


Fig. 3 実験結果の無次元表示図

4. シミュレーションモデルと測定結果の比較

4.1 熱運動による凝集（ブラウン凝集）

多分散エアロゾルの凝集の計算では、まず計算する粒子径範囲を多数の区間に分割する。次に任意の2つの粒径区間に属する粒子に着目し、微小時間の間の衝突を計算して、着目した2つの粒径区間の粒子数の減少と、合体によって新たに生じる1つの粒径区間の粒子数の増加を計算する。この結果を区間同士のあらゆる組み合わせについて総合すれば、微小な凝集時間が経過した後の粒子径分布が求められる。したがって、2つの粒子径区間に属する2つの粒子群の凝集の計算が基本になる。ここでは2種の粒子径からなるエアロゾルの熱運動による凝集（ブラウン凝集）を簡単に説明する。

粒子の平均熱運動速度は次式のようにになる。

$$\overline{v_\theta} = \sqrt{\frac{8}{\pi} \frac{kT}{m_p}} \quad (1)$$

ここで k はボルツマン定数、 T は絶対温度、 m_p は粒子質量である。このような熱運動によって2粒子がある範囲内に接近すると衝突が起こる。この範囲を凝集体積と呼ぶ。

2つの粒径区間 D_1, D_2 に属する粒子の衝突頻度は、それぞれの粒子の個数濃度 c_{n1}, c_{n2} および2粒子の相対的な熱運動速度 v_{rel12} に比例するから

$$r_{12} = c_{n1} c_{n2} A_{w12} v_{rel12} \quad (2)$$

ここで r_{12} は空間単位体積、単位時間当たりの衝突回数（衝突頻度）、 A_{w12} は後述の衝突断面積である。

2粒子の相対熱運動速度の平均値は次式になる。

$$\overline{v_{rel\theta}} = v_{gr} \left\{ 1 + \frac{1}{3} \left(\frac{v_{gr}}{u_{k1}} \right)^2 \right\} \quad (3) \quad (\text{訳注 2})$$

ここで両粒子の速度（絶対値）の大きい方が v_{gr} 、小さい方が u_{k1} である。

相対速度の方向が一様に分布している場合には、衝突断面積は凝集体積の表面積の1/4に等しいので次式を得る。

$$A_{w0} = \frac{1}{4} S_{agg1} \quad (4) \quad (\text{訳注 3})$$

以上の議論は微粒子のブラウン凝集の解析の基礎であるが、(4)式によってどのような形の凝集体積にも利用できる。次節ではこれを音波凝集に適用してみる。

4.2 Orthokinetic モデル

エアロゾルに音波を照射すると、粒子は往復運動をする。この運動は粒子の流体抗力と慣性力の間の力学的平

衡で定まる。非常に小さな粒子では流体抗力が支配的であるために、ほぼ完全に流体の運動に従う。一方、大きな粒子は粒子の慣性力のために静止している。

音場中での2粒子間の相対運動の大きさをストークスの抵抗則を用いて計算すると Fig. 4 が得られる。この図は空気中での水滴に対して計算された。Fig. 4 の横軸は大粒子の半径で、縦軸の μ_{12} は2粒子間の相対的な振幅と音波の振幅の比である。パラメータは周波数と粒径比である。2粒子の半径比が小さくなるほど相対運動は大きくなり、粒径に対して相対振幅を最大にする最適な周波数が存在する。

音場中の粒子の運動を、大粒子が小粒子の浮遊した空間内で振動していると見る事もできる。このとき、小粒子の運動が大粒子の運動の影響を全く受けないならば、Fig. 5 のような円筒状の空間内の小粒子は大粒子にぶつかり凝集する。このような空間を凝集体積と呼ぶ。図では円柱の直径は大小両粒子の直径の和に等しい。円柱の長さは両粒子の相対運動の振幅の2倍に等しい。(実際には大粒子の周りの空気の流れによって小粒子の一部は大粒子を避けて流れ去るので、凝集体積はもっと小さなものとなる。)

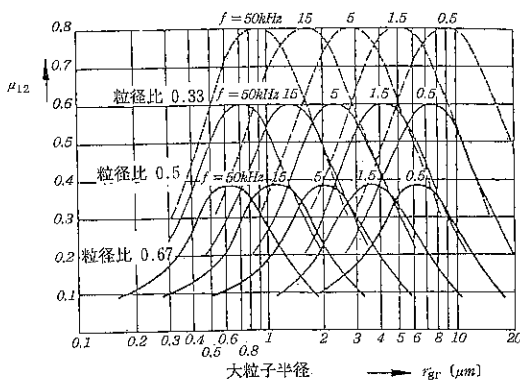


Fig. 4 異径水滴間の相対振幅

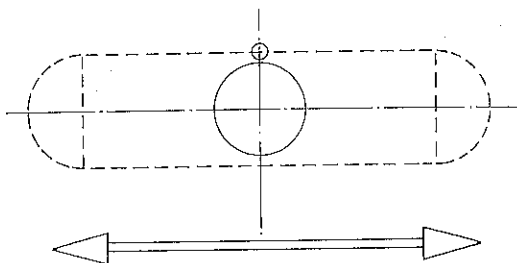


Fig. 5 凝集体積

Orthokinetic モデルでは大粒子が音波によって振動すると凝集体積の内部の小粒子を附着凝集すると考える。このモデルに従えば、凝集体積内の小粒子は振動の1周期で全て捕集されてしまい凝集はそれ以上進まないことになる。ところが現実には凝集は更に進行するので、従来のモデルでは何の根拠も与えることなく、凝集体積内の粒子濃度は常に周囲の濃度と同じであると仮定してきた。この仮定を健全にするためには、粒子を凝集体積内に供給する何らかの機構を想定する必要がある。この研究では、まず、粒子の熱運動によって凝集体積の表面を通して粒子が供給されると考えて、(1)~(4)式を適用してみた。Fig. 6 は150dB, 3200Hz, 0.4秒間の音波の照射をしたときの計算結果と実験の比較である。図からこの供給機構の仮定では実験結果に合わないことが分かる。

4.3 Hydrodynamic モデル

Orthokinetic モデルでは粒子間の相互作用が無視されていた。Hydrodynamic モデルでは、流れの中で粒子間の相互作用を考える。Oseen⁹⁾は二つの球に働く力を解析した。Fig. 7 は流れの上流側にある粒子1の中心を座標系の原点とし、下流側の粒子2の中心を次式の換算距離で表したとき、粒子2が受ける力を評価するための抵抗係数 c_{kl} ($j = x, y$) を与える。(訳注 4 参照) すなわち、 ρ_0 , η_0 を空気の数密度、粘度として

$$R_{ex} = \frac{\rho_0 v_{rel} l_x}{2\eta_0}, \quad R_{ey} = \frac{\rho_0 v_{rel} l_y}{2\eta_0} \quad (5)$$

ここで v_{rel} は粒子1と流体の相対速度であって、音場中の粒子1の運動を定常ストークス近似で計算し、それから任意の瞬間の v_{rel} を求めればよい。(Fig. 4 から求めら

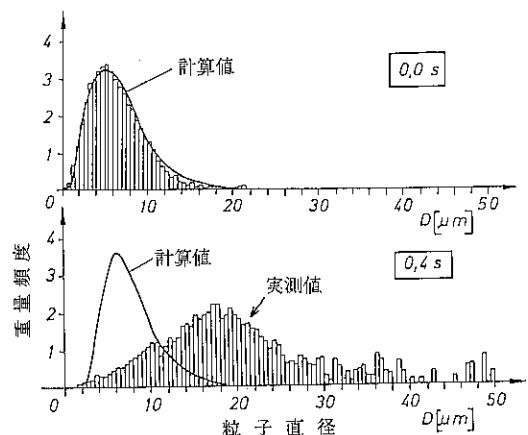


Fig. 6 Orthokinetic モデルによる計算結果と実測値の比較 (150dB, 3200Hz)

れる粒子1と2の相対速度ではないことに注意。) また l (m) は第2粒子の位置を表すが、添え字 x, y はそれぞれ流れに平行な方向と垂直な方向を示す。 c_{kj} が正の領域では引力が作用する。この図から c_{kj} を読み取ると第2粒子に作用する力が次式で計算できる。

$$\Delta F_{hx} = c_{hx} \frac{\rho_G}{2} v_{rel}^2 \pi r_1 r_2, \quad \Delta F_{hy} = c_{hy} \frac{\rho_G}{2} v_{rel}^2 \pi r_1 r_2$$

あるいはこれをベクトル表示して

$$\Delta \vec{F}_k = \vec{c}_k \frac{\rho_G}{2} v_{rel}^2 \pi r_1 r_2 \quad (6)$$

ここで r_1, r_2 は第1粒子および第2粒子の半径である。この力は Oseen 力あるいは流体力学的干渉と呼ばれている。この力の流れに平行な成分は後方の粒子に対しては常に引力を生じる。流れに垂直な方向では引力を生じる領域と反発力を生じる領域がある。この力の結果、2つの粒子は相対的に運動し、その相対運動の速度はストークスの抵抗則により次式のように求められる。

$$\vec{v}_{21} = \frac{1}{12} \vec{c}_k r_1 \frac{\rho_G}{\eta_G} v_{rel}^2,_{ak} \quad (7)$$

速度 $\vec{v}_{21}$ は後方の粒子の直径によらないことが分かる。

Hydrodynamic モデルでは、凝集体積の外側にある小粒子が(7)式で表される速度で内側に引き込まれることにより凝集体積へ供給されると考える。このことを分かりやすくするために Fig. 7 に実際の凝集体積が記入してある(メッシュの部分)。ここに示した無次元の凝集体積は、3200Hz, 150dB の音場での直径 $18\mu\text{m}$ の大粒子と直径 $2\mu\text{m}$ の小粒子間の凝集体積に対応する。凝集体積の

直径は $20\mu\text{m}$ であり、長さは $100\mu\text{m}$ で両粒子の相対運動の片振幅にほぼ等しい。この図から Oseen 力は凝集体積の表面上で一様ではないことが分かる。そこで(7)式を凝集体積の表面上で平均化した。

$$\overline{v_{21}} = \frac{r_1 \rho_G}{12 \eta_G} v_{rel,ak}^2 \frac{1}{S_{AEBI}} \int_{S_{AEBI}} \vec{c}_k \cdot d\vec{A} \quad (8)$$

$d\vec{A}$ は凝集体積の表面要素の法線ベクトルである。

しかし粒子は振動しているので空間平均だけでは十分であるため、(8)式を振動周期 T_p で時間平均した。

$$\overline{\overline{v_{21}}} = \frac{1}{T_p} \int_0^{T_p} \overline{v_{21}} dT \quad (9)$$

Fig. 8 は(9)式を用いて粒子の供給速度を評価し、音波凝集を模擬した結果と実験結果の比較である。音波の照射は 150dB, 3200Hz で行われた。音波の照射時間ごとにスペクトルが粒径の増大する方向にシフトし、最頻直径が約 $5\mu\text{m}$ から 0.4 秒後には $20\mu\text{m}$ まで成長することが分かる。シミュレーション結果はどの音波照射時間の測定結果にも良く一致している。

5. まとめ

エーロゾルが強い音波の照射にさらされると粒子同士が衝突し凝集が起こる。この効果の満足いく説明は、今までなされていなかった。そこで、できるだけ理想化した条件で音波凝集の実験を行い、その結果と2種のシミュレーションモデルによる計算結果を比較した。

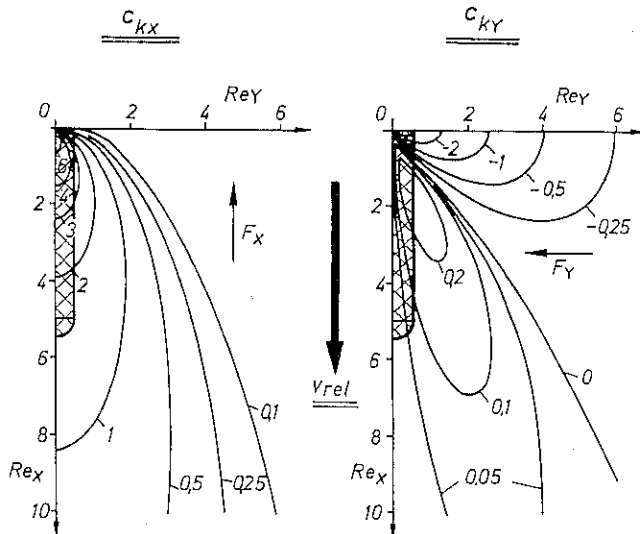


Fig. 7 流体力学的干渉力 (オセーン力)

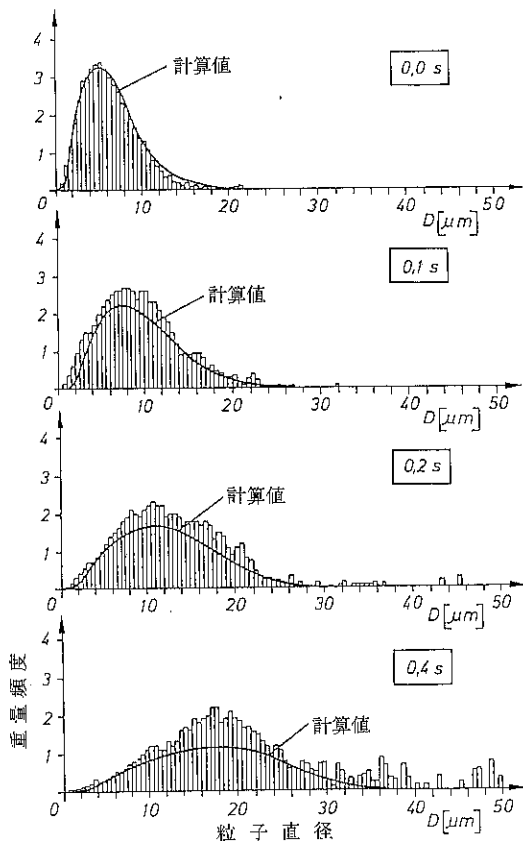


Fig. 8 Hydrodynamic モデルによる計算結果と実測値の比較 (150dB, 3200Hz)

音波凝集の計算モデルでは、エアロゾル中の大、小粒子間の音波によって生じた相対運動に基づいて凝集体積を想定する。凝集体積内の微粒子は振動の一周期で大粒子に捕集されると考える。この凝集体積に、粒子の熱運動（ブラウン運動）が粒子を供給すると考えるのがこの研究での Orthokinetic モデルである。このモデルによる計算結果は実験結果と全く合わなかった。

第二の Hydrodynamic モデルは凝集体積への粒子の供給が、粒子間の流体力学的相互作用（Oseen 力）で生じると考えた。この研究では流体力学的な相互作用として、定常流の中の 2 つの球に作用する力を Oseen の理論にしたがって計算し、振動流に関してその力を空間的、時間的に平均して使用した。Hydrodynamic モデルによる計算結果は実験結果と非常によく一致した。またこのモデルによって、音波凝集の周波数特性がなぜ弱いのかの説得力のある説明が始めて可能になった。これらの事から判断して、Hydrodynamic モデルは音波凝集の機構を明らかにするのに適切なモデルであると考えられる。

引用文献 (抜粋)

- 1) Mednikov, E.P. : Acoustic Coagulation and Precipitation of Aerosols, New York, Consultants Bureau, 1965
- 2) Boericke, R.R. and Moore, W.E. : Dust Removal Concepts for Pressurized Fluidized Bed Systems, ASME-Paper, 82-GT-210, New York, 1982
- 3) Cheng, M.T., Lee, P.S., Berner, A. and Shaw, D.T. : Orthokinetic Agglomeration in an Intense Acoustic Field, J. Colloid Interface Sci. 91, 176-187 (1983)
- 4) Tiwary, R. and Reethof, G. : Numerical Simulation of acoustic Agglomeration and Experimental Verification, Trans. ASME, J. Sound Acoustics, 109, 185-191 (1987)
- 5) Moore, H.J. and Sieverding, C.H. : Two Phase Steam Flow in Turbines and Separators, New York, McGraw Hill, 1976
- 6) Oseen, C.W. : Neuere Methoden und Ergebnisse der Hydrodynamik, Leipzig : Akad. Verlagsgesellschaft, 1927

訳者注

訳注 1

Fig. 3 の表現は一見すると一般的に利用できるように見えるがそうではない。ストローハル数の代表時間と代表長さに音波照射時間と平均粒子間距離を採用したとき、ストローハル数の物理的な意味がどのような物であるかが明確にされていない。このため、同一のストローハル数でも、この実験で変化しなかった影響量（例えば初期の粒度分布）を変えたとき、同じ結果が得られる保証は与えられていない。実際、原著者らは、この図の一般性については何も主張していない。

訳注 2

(3) 式はミスプリントと思われる。正しくは

$$\overline{v_{rel}} = v_{kr} \left\{ 1 + \frac{1}{3} \left(\frac{v_{kl}}{v_{kr}} \right)^2 \right\}, \quad v_{gr} \geq v_{kl} \quad (A1)$$

となる。念のためこの式の誘導の概略を示す。

2 つの粒子の相対速度はそれぞれの速度ベクトルの差で表せる。いま、第 1 の粒子の運動方向に対して第 2 の粒子が角度 θ の方向に運動したとすると、2 つの速度ベクトルの差の絶対値は次式で表せる。

$$v_{12} = \sqrt{(v_1 - v_2 \cos \theta)^2 + v_2^2 \sin^2 \theta} \quad (A2)$$

ここで v はそれぞれのベクトルの絶対値である。Fig. A1

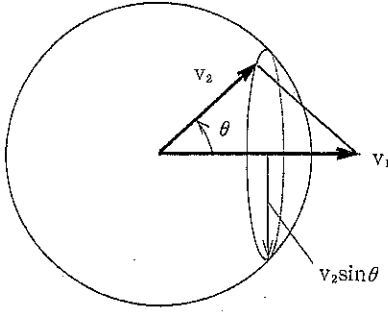


Fig. A1

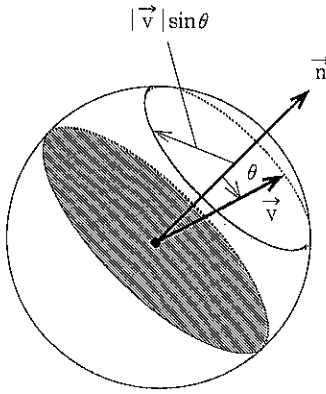


Fig. A2

から、第1の粒子の運動方向に対して、それに全く無関係な方向をとる第2の粒子が θ の方向に運動する確率密度は $\sin(\theta)$ ($0 \leq \theta \leq \pi$)に比例することがわかる。したがって、2つの粒子の平均相対速度の絶対値は

$$\overline{v_{12}} = \int_0^\pi \sqrt{(v_1 - v_2 \cos \theta)^2 + v_2^2 \sin^2 \theta} \sin \theta d\theta$$

$$\int_0^\pi \sin \theta d\theta = v_1 \left\{ 1 + \frac{1}{3} \left(\frac{v_2}{v_1} \right)^2 \right\} \quad (\text{A } 3)$$

ただし $v_1 > v_2$ とした。

訳注 3

ここでは凝集体積の表面積 S_{Aggl} を1/4にして(2)式の衝突断面積 A_v にしているが、(2)式では S_{Aggl} をそのまま使い、そのかわりに $v_{\text{rel}12}$ を1/4にする方が訳者らには理解し易い。なぜなら、勝手な方向を一樣な確率で向く速度ベクトル $\vec{v}$ の、任意の微小面に立てた法線方向の成分の平均値は、Fig. A2から

$$\vec{v} \cdot \vec{n} = v \cos \theta, \quad \overline{\vec{v} \cdot \vec{n}} = v \int_0^{\pi/2} \cos \theta \sin \theta d\theta /$$

$$\int_0^\pi \sin \theta d\theta = v / 4 \quad (\text{A } 4)$$

と簡単に計算できるからである。なお、法線方向と反対向きの速度を除外するので、分子の積分領域は θ の全域でなく、 $0 \sim \pi/2$ になる。

訳注 4

Oseen の著書⁶⁾にはこの図が直接計算できるような記述が見当たらなかった。訳者が検討したところ、球形粒子の周りの流れ場に関する Oseen 近似に、次の Faxen の法則を適用するとこの図が求められることがわかった。

Faxen の法則によれば、物体がないときの速度分布 U が与えられているとして、その中に半径 a の球を持ち込んだときにその球が受ける力 F と回転モーメントを計算できる。(日本流体力学会編、混相流体の力学, p38, 朝倉書店1989) ここでは静止した球に働く力 F だけに着目する。この力の第一近似は次式で表すことができる。

$$F = 6 \pi \eta_0 a U_0 \quad (\text{A } 5)$$

ここで U_0 は粒子がないときの粒子の中心位置での速度を意味する。

球の中心からの距離を球の半径で無次元化した球座標 (r, θ) において、 $\theta = 0$ の方向に流れる一樣流の中に置かれた球の周りの流れ関数は Oseen 近似によれば

$$\psi = \left(\frac{r^2}{2} + \frac{1}{4} r \right) \sin^2 \theta - \frac{3}{2 R_e} (1 + \cos \theta) \left\{ 1 - \exp \left(-\frac{1}{2} R_e r (1 - \cos \theta) \right) \right\}, \quad R_e = \frac{a U_\infty \rho_0}{\eta_0} \quad (\text{A } 6)$$

と表せる。なおこの表現では速度も一樣流の速度 U_∞ で無次元化してある。流れ関数のうち $\sin^2 \theta$ を含む項は、粒子の中心点に対して対象な位置では等しい速度ベクトルを与えるので、等しい大きさの2球間の相互作用を Faxen の定理によって考えるならば、第1の球が第2の球に与える影響力と第2の球が第1の球に与える影響力は、大きさも方向も同じになり、この項は2球の相対運動の考察には関係しない。Faxen の定理で考察する限り、流体力学的な相互作用によって同一径の2球間で相対運動を生じるのは (A 6) 式の第2項である。

$$\psi_0 = -\frac{3}{2 R_e} (1 + \cos \theta) \left\{ 1 - \exp \left(-\frac{\rho}{2} (1 - \cos \theta) \right) \right\}, \quad \rho = R_e r = \frac{a U_\infty \rho_0}{\eta_0} r \quad (\text{A } 7)$$

これを速度場に直すと

$$v_r(\rho, \theta) = R_0^2 U_\infty \frac{(\partial \psi_0 / \partial \theta)}{\rho^2 \sin \theta},$$

$$v_\theta(\rho, \theta) = -R_0^2 U_\infty \frac{(\partial \psi_0 / \partial \rho)}{\rho \sin \theta} \quad (\text{A } 8)$$

$$v_x(x, y) = v_\rho \cos \theta - v_\theta \sin \theta,$$

$$v_y(x, y) = v_\rho \sin \theta + v_\theta \cos \theta \quad (\text{A } 9)$$

(A 9)式は $\theta=0$ の軸を x 軸、それに垂直な方向の半径を y とした無次元円筒座標(代表長さ $=a$)での速度成分である。第2粒子は第1粒子より見て $x(>0)$ 、 y の位置にあるとすると、第1粒子の存在によって生じる第2粒子の位置での流れの速度の変化分と、第2粒子によって生じる第1粒子の位置での速度の変化分は同一でない。このため2粒子に働く力には、この速度差に相当する力の差が現れる。(A 5)、(A 9)を用いてその力の差を計算すると

$$\Delta F_x = 6 \pi \eta_0 a \{v_x(x, y) - v_x(-x, -y)\},$$

$$\Delta F_y = 6 \pi \eta_0 a \{v_y(x, y) - v_y(-x, -y)\} \quad (\text{A } 10)$$

この力によって2粒子は接近したり反発したりするので、これを流体力学的相互作用あるいはOseen力と呼

ぶ。

一様流の速度を粒子と流体の相対速度 v_{rel} として、この相互作用力を抵抗係数 c_{kj} ($j=x, y$)を用いて表せば

$$\Delta F_j = 6 \pi \eta_0 a \{v_j(x, y) - v_j(-x, -y)\} =$$

$$\pi a^2 \frac{c_{kj}}{2} \rho_0 v_{rel}^2 \quad (\text{A } 11)$$

これから c_{kj} を求めれば

$$c_{kj} = 12 \frac{v_j(x, y) - v_j(-x, -y)}{R_0 v_{rel}} = 12 \phi(R_0 x, R_0 y)$$

(A 12)

上式中項の分子は $R_0 v_{rel}$ に比例し、しかも空間座標は (ρ, θ) 系で表せることが(A 7)～(A 9)から理解できる。このことから c_{kj} は $R_0 x$ と $R_0 y$ だけの関数として表せることがわかる。なお x, y は粒子半径 a を代表長さにした無次元距離であって、 $R_0 x$ と $R_0 y$ はそれぞれ(5)式の R_{ex} 、 R_{ey} の2倍になる。訳者はこのような考え方で計算したところ Fig. 7 を再現することができた。

特許一言メモ

No. 143

一新・実用新案の費用一

平成6年1月の出願から実用新案は無審査、権利期間は出願の日から6年になった。

この新・実用新案の権利行使には特許庁に請求、作成してもらう「実用新案技術評価書」を相手方に示して警告することになっている。また、新・実用新案では出願料、14,000円。登録料3年分、25,500円。この合算で最

初に例えばクレーム請求項1の場合、39,500円。同じく「技術評価書」の請求手数料は43,300円。(平6.4現在)

なお、平成5年12月までの出願は従来通りの法律によって取扱われ、審査もあり、権利期間は公告の日より10年で、出願の日より15年以内。(特許室)

多機能型流動造粒機アグロマスタの計測制御技術

辻本 広行* 横山 豊和*
Hiroyuki Tsujimoto Toyokazu Yokoyama

はじめに

最近、粉体プロセス制御分野でのファジィ制御の利用が進められている。これは従来のPID制御では満足できない高レベルの自動化の要求と同時に、マイクロプロセッサ技術の発展に伴う制御装置のロープライス化が、これまで自動化をあきらめていた分野への適用を期待し始めたことによるものと考えている。弊社ではこのような気運の中で、パソコン用アドバンスコントロールシステム『ORPX システムによるファジィ制御と最適制御』を次世代の各種粉体プロセス化のための基本制御技術と位置付け展開を進めている。

本稿ではその一例として、最近開発した多機能型流動造粒機アグロマスタでの実施例とともに、このアグロマスタで使用している先進のプロセスセンサである流動検知センサと光ファイバ式赤外線水分計について紹介する。

1. 流動造粒装置とプロセス制御技術

1.1 最近の流動造粒装置とアグロマスタ

同一容器内で混合、造粒、乾燥などの単位操作をシーケンシャルに処理できる流動層造粒装置は、多品種生産への対応、コンタミおよびマテハン部分の削減、工程の簡素化などに適しており、またこれにより製される顆粒（造粒体）が流動性と溶解性に優れ、適度な圧密により良くつぶれることから、打錠用顆粒や食品顆粒などの生産機として医薬品製剤や食品製造プロセスで古くから利用されている。最近では、攪拌と転動の造粒原理を流動造粒装置に組込んだ、いわゆる複合型造粒装置¹⁾により多くの造粒体形への適応と造粒プロセスで必要であった複数の単位操作の統合が可能になり、これが急速に普及

しつつある。

弊社では、多機能型流動造粒機アグロマスタがこの種の造粒装置として開発され製品化されている。本機の一例として、後記する自動運転支援システム対応型ラボタイプ（AGM-2、最大処理量2リットル）のフローシートをFig. 1に示す。流動層の中心底部に攪拌羽根を取付けた回転円盤を配し、粉体層に空気流での流動、攪拌羽根による攪拌ならびに回転円盤による転動の各造粒作用を同時に与え、この作用効果を調節することで所望の粒径、密度ならびに形状を有した造粒体が得られることになる。特にFig. 2に示す回転円盤は半径方向外向きに透過風量が大きくなるようにしたもので、外周付近での高速上昇気流との組合せにより転動流動状態にある粉体の流動パターン（半径方向に偏在）に応じた通気を可能にしている。この流動層上部にはパルスジェット方式のバグフィルタが取付けられており、微粉が流動層へ効率的にリサイクルされる。尚、本機のラボタイプとしては、AGM-2型の他に処理量が1リットルのAGM-1型が既に販売されている。また生産機としては処理量が30～60リットルに対応するAGM-50型試験機が弊社校方技術センタに設置され、これにより最大処理量1000リットルのAGM-1000型までのスケールアップの仕様が検討されている。

1.2 流動造粒プロセス制御技術

流動造粒プロセスは、市場全体としては今なお自動化が遅れているものの、昨今のFA化、無人化の指向や、センサ技術、制御技術の発展もあって、自動化²⁾とその最適化技術が急速な進展を見せている。大学を始め、装置メーカーやユーザの研究機関においては、粒子特性（流動化状態、造粒の進行度）を光ファイバ式赤外線水分計³⁾⁴⁾⁵⁾、超音波変位センサ⁶⁾及びCCDカメラによる画像解析装置⁷⁾⁸⁾などによりモニタリングしつつ、その情報に基づいてタイムリーな制御操作を実現しようとする試みが活発に行われている。今や流動造粒プロセスは、粉体処理プロセスの中でも最新の計測制御装置類を用いたプ

* ホソカワミクロン(株) 技術本部 粉体工学研究所
(〒573 大阪府枚方市招提田辺1-9)
Tel. (0720) 55-2220

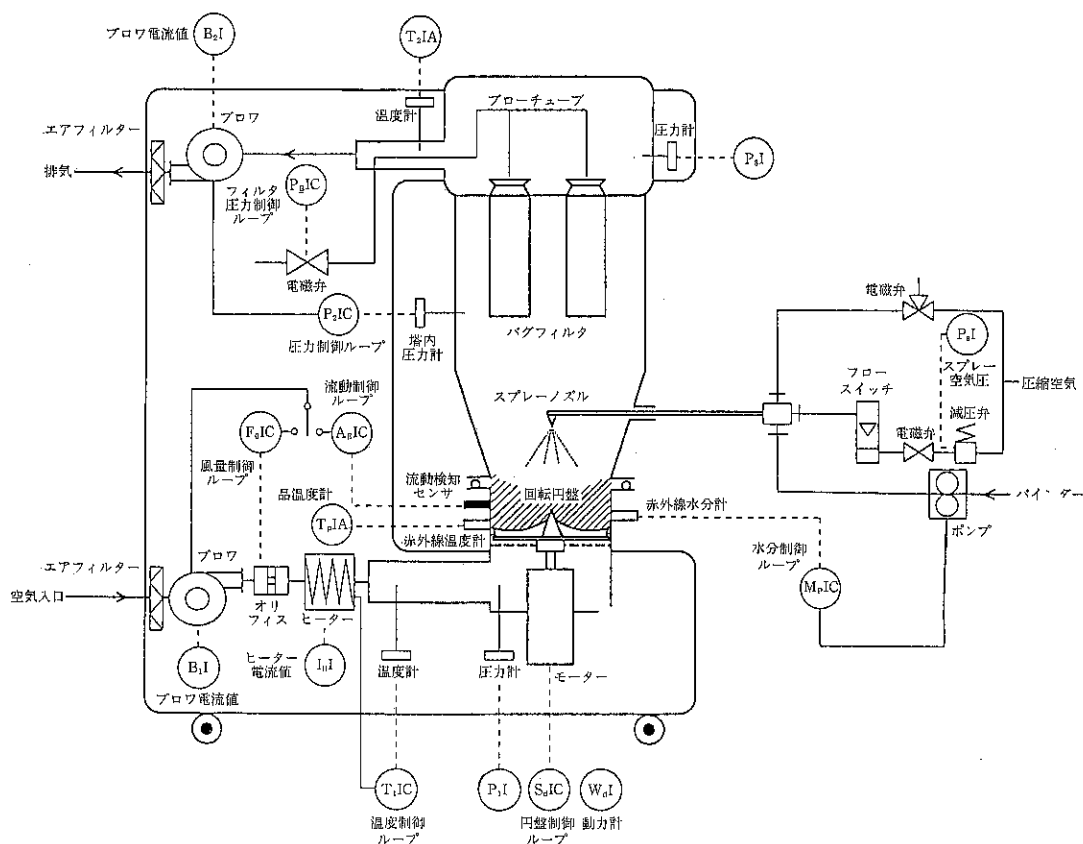


Fig. 1 多機能型流動乾燥造粒機 アグロマスタ (AGM-2) 自動運転対応型フローシート

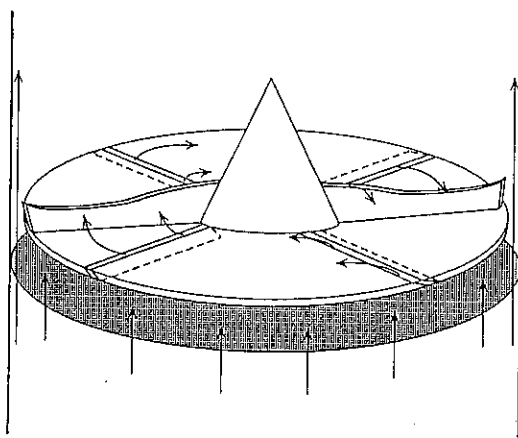


Fig. 2 回転円盤の構造

プロセス制御技術が試行されている感があり、それらが実用化の段階になりつつある。

従来、自動化を困難にしていた原因を整理してみると、顆粒の成長機構や品質に対して複雑に絡み合う操作因子が多岐にわたり、顆粒品質との相関性を数値的モデルだけでは表現できない部分があることや、オペレータの優れた監視能力に置換えて使用できるオンラインセンサが限定されていたこと、さらにその操作技術を体系的に利用することが困難であったことなどが挙げられる。従って、装置の安定運転と品質の安定化には、適当なセンサを応用してゆくとともに、オペレータの持っているノウハウを継承した制御システムが有効な手段になると考えられる。

弊社ではこの観点にたち、オペレータが持つ経験的要素を表現することが可能なファジ理論が使用できる ORPX システム (オーシーエンジニアリング (株) 製) をベースにして流動造粒プロセスの自動化に適した監視、制御パッケージソフト『自動運転支援システム』の開発を行った。また粒子特性のオンラインモニタリングセンサに

については流動検知センサと光ファイバ式赤外線水分計の販売を開始した。次章以降にそれぞれの概要を記す。

2. 自動運転支援システム

2.1 ORPX システム

近年、プログラマブルコントローラ、パーソナルコンピュータの進歩はめざましいものがあり、『ORPX システム』はこれらのハードウェアを活用した MS-DOS パソコン用のリアルタイム監視操作システムとして、開発された。この ORPX システムはオペレーターズステーションとしての機能の他に汎用のファジィ制御と共に自己回帰モデルによる最適制御もインストールでき、両者のコンビネーション制御をも可能としたものである。これまで極めて制御のしがたいプロセスの代表といわれてきたセメントキルンのスタートアップからシャットダウンの全域のプロセスコントロール⁹⁾など従来の PID 制御では満足できない高レベルの自動化などに使用されている。

2.2 アグロマスタラボシステム

弊社で開発した流動造粒プロセス向け自動運転支援シ

ステムではファジィ制御ツールをインストールした ORPX システムを使用している。これによりオペレータの持っている経験や知識を継承した制御システムの構築がユーザサイドで可能になる。ここで自動運転支援システムを使用した一例として、前記のアグロマスタ (AGM-2) に搭載しラボシステムを構成した例を Fig. 3 に示す。

一般にこの種の造粒装置の生産形態としては多品種生産が多く、品種毎に造粒条件を変更する必要がしばしばある。この最適造粒条件を決定するには、ラボスケール機を用いた実験による試行錯誤はつきもので、その決定までに多くの判断材料と時間を要しているのが実状である。このような状況の下で、新製品を効率的により早く市場へ送出するという命題が課せられる各企業の研究開発部門や生産技術部門においては、『生産機の最適運転条件をラボスケール機を用いて如何にして正確に効率良く見出すか』が問われることとなるが、これを効率良く行うには、造粒装置専用の各種計測器、制御装置及びデータ処理解析装置を統合したシステムが求められることとなる。アグロマスタラボシステムは、特にこのようなニーズに答えるべく開発された統合システムであり、後記する自動運転支援システムの機能を利用することで造粒条

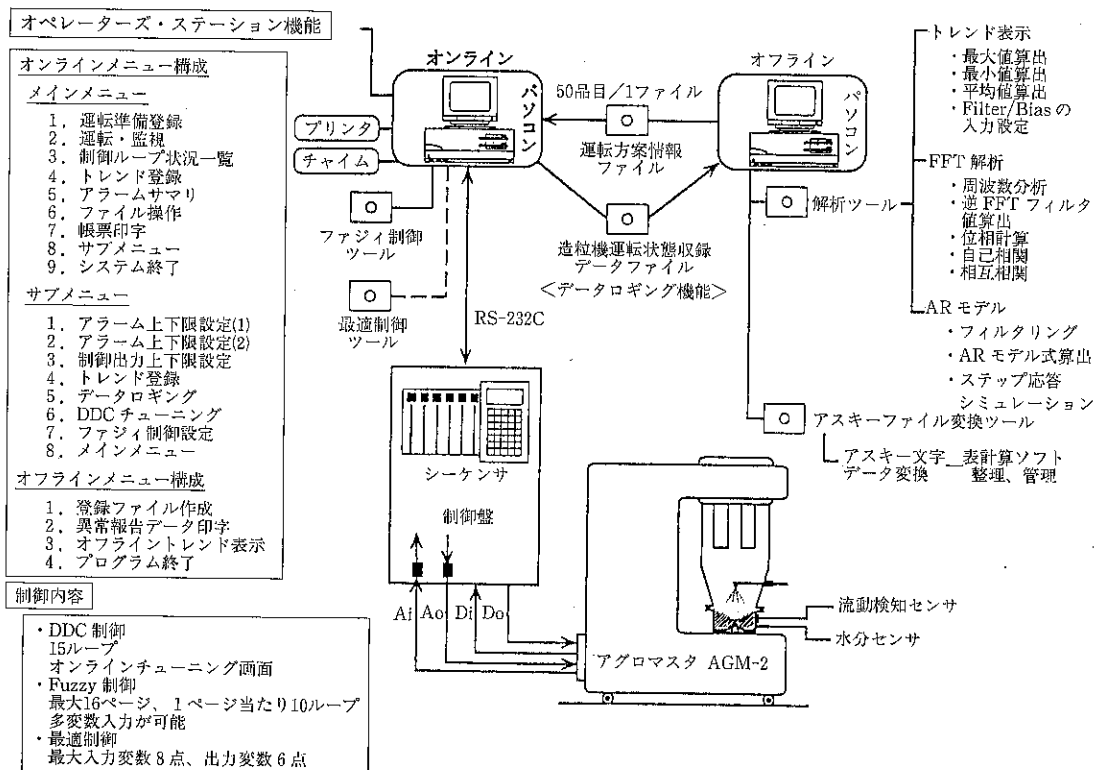


Fig. 3 アグロマスタ自動運転支援ラボシステム

件決定に係わる作業の飛躍的な効率の向上が期待できる。

2.3 自動運転支援システムの適用範囲

自動運転支援システムと造粒装置とのプロセスデータの入出力は汎用のシーケンサを介して行うことを基本とし、シーケンサとパソコン間は通信回線でリンケージしている。そのため、弊社製のアグロマスタのみならず、制御盤にシーケンサを使用している既設の造粒装置類であれば、造粒形式(流動造粒、攪拌造粒、転動造粒など)やその装置サイズ(ラボ機～生産機)を問わず、ラダープログラムの変更など必要最小限の改良により本システムが利用できる。既設ラボ装置に本システムを搭載してラボシステムを構築することで、生産機向けの新しい制御方法や自動化手段およびその最適化の検討が実施できる。また生産機でのシステム導入も容易に行え、ラボ機から生産機までの効率的なシステム展開が可能となる。弊社では本システムのトータルエンジニアリングを行っている。

2.4 自動運転支援システムの機能

本システムは Fig. 3 に示すように、オペレーターズステーション機能ツール、ファジィ制御ツール、データ解析ツール、アスキーファイル変換ツールがパッケージ化されたものである。以下に各ツールの概要を紹介する。

1. オペレーターズステーション機能ツール

本ツールは流動造粒装置の運転に必要となるもので、運転方案を設定するオフラインメニューと、装置の運転を開始し、監視と制御を行うオンラインメニューから構成される。ここではオンラインメニュー内の機能について記す。以下に示す各機能の選択は、マウス(又は抵抗角膜式タッチパネルに手を触れて入力ができる)を用いてメニュー画面上から簡単に行える。

1) 運転準備登録画面

本画面は運転情報をオフラインにて登録する際に使用する①製品毎運転方案ファイル一覧画面、②工程設定画面及び③制御設定画面と共通で、オンラインではオフラインにて登録されている情報の確認、修正、及び修正後の再登録が行える。

①製品毎運転方案ファイル一覧画面

1フロピィディスク当たり50製品の運転方案が登録でき、そのファイル名が一覧される。マウスによりファイル名を選択すると、その製品の運転情報(工程設定情報、制御設定情報)が表示される。

②工程設定画面(Photo. 1)

①で選択された製品の運転で使用する工程情報(予熱、供給、混合、造粒、コーティング、乾燥、冷却、排出)と各工程内で使用する機能部品(回転円盤、攪拌羽根、バグフィルタ、スプレーノズル、特殊センサ)を選択する。これにより各工程毎で使用する制御ループが自動的に選択される。次に各工程毎の運転時間を設定し、さらに必要に応じて工程移行時の条件(熱風温度、材料水分、排気温度などの因子の選択とその許容範囲)を入力することで、自動工程移行が可能となる。

③制御設定画面(Photo. 2)

②で自動的に選択された制御ループのパラメータ設定画面で、制御周期、PID制御パラメータ、制御目標値、操作量の上下限值、制御モード(定値制御、プログラム制御)を設定する。

以上の設定を予めオフラインで行い、オンラインのファイル操作画面の機能にてオンライン側にロードする。これによりオンライン側から内容の再確認が実施できる。そして、②の工程設定画面内にある運転モードをマウスで指定すると、運転方案情報がシーケンサへダウンロードされ運転準備が終了する。

2) 運転、監視画面(Photo. 3)

流動造粒プロセスに応じたグラフィック画面を作成し、この画面を監視しながら、機器の起動、停止の操作が簡単に行える。運転は先に設定された運転方案に従って自動的に行う自動運転モードと、機器の起動、操作、停止をオペレータがマウスを用いて行うマニュアル運転モードがあり、いずれかのモードを選択すると運転が開始される。

3) 制御ループ状況一覧表示画面(Photo. 4)

プロセスデータの一覧表示、プロセス状態の変化による表示色の切替え、また、画面からのデータの設定、変更などができる。

4) DDC チューニング画面(Photo. 5)

DDC 制御ループのチューニングは、各ループ毎に用意された画面において、計測値、設定値、出力値のトレンド表示を見ながら、設定値、制御パラメータの変更ができる。

5) アラームサマリ画面

発生中のアラームが一覧表示できる。アラーム機能としては、異常発生時、CRT アラームウィンドとプリンタの両方にメッセージを出すことができる。アラームの発生条件はアラーム上下限界設定(Photo. 6)で設定、変更できる。

6) トレンド表示画面(Photo. 7)



Photo. 1 運転準備登録工程設定画面

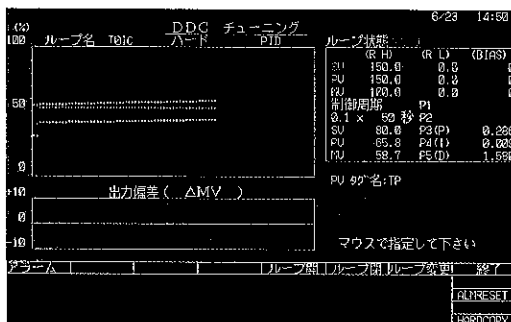


Photo. 5 DDC チューニング画面

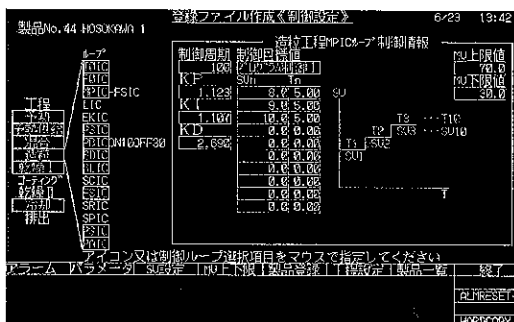


Photo. 2 運転準備登録制御設定画面
(プログラム制御モード)

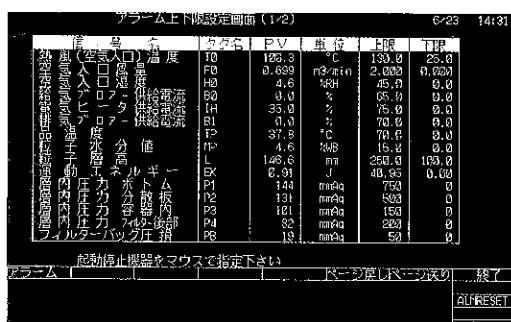


Photo. 6 アラーム上下限設定画面

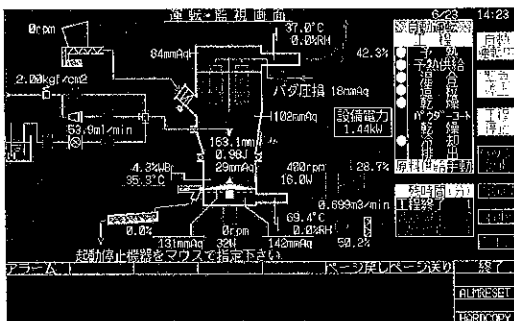


Photo. 3 運転・監視画面

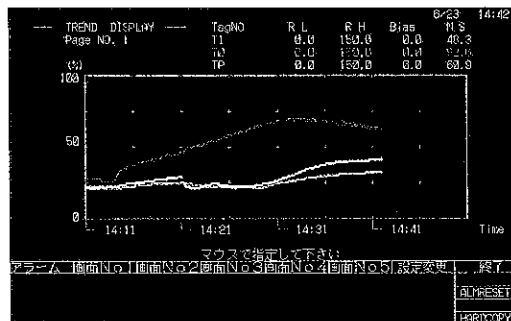


Photo. 7 トレンド表示画面



Photo. 4 制御ループ状況一覧表示画面

1画面に6データずつ、計5画面のデータを3種類の表示周期の選択に応じてトレンド表示ができる。表示データはトレンド登録画面内に設定登録した空気温度、流動風量などのアナログデータの中から任意に選択、変更できる。

7) データロギング画面

オフラインでのプロセスデータの解析やそのデータの保管のために、アナログデータの中から任意の32点を選択し、フロッピーディスクにプロセスデータを保管することができる。

オンラインで使用できるその他の機能としては、制御

出力の操作量の上下限值を設定、変更できる制御出力上下限設定画面、自動運転モード時に使用できる帳票印字機能がある。

II. データ解析ツール

造粒条件の決定のための実験においては、流動造粒装置により実験の対象となる粉粒体がある状態に制御し、その状態における粉粒体のパラメータを計測し、さらにそのデータを解析処理して評価するという一連の作業が存在するため、柔軟性・拡張性を備えた汎用性の高いデータ収録解析装置を必要とされることが多い。そのような用途に本システムでは流動造粒装置に搭載された水分センサ、空気温度、湿度、圧力、風量、円盤回転数などの各種センサによって計測される造粒条件の決定に係わるハード側のデータを高精度に効率よく解析・評価できるデータ解析ツールが用意されている。本ツールは前記のデータロギング機能によりサンプリングしたプロセスデータを解析するもので、造粒条件の決定などに活用される。機能は以下の通りである。

1) オフライントレンド表示機能

① 平均値、最小値、最大値の算出

データロギング機能で収集された全てのデータの平均値、最小値、最大値を算出し表示が行える。

② トレンド表示

トレンド表示画面に最大7点までのデータの表示が行える。

③ 表示画面のハードコピー

本ソフトウェアで表示される全ての画面をプリンタへハードコピーすることができる。

2) 高速フーリエ変換 (FFT) を用いた周波数分析 (Photo. 8)

① 周波数解析によってスペクトルパワーを表示し、周波数の成分と大きさから制御対象が主にどのような周期で動作しているかを判断するのに効果がある。

② Low-Pass により高周波数 (ノイズなど) をカットして、逆 FFT 演算をすることによって Bare Data と比較することができる。これによってフィルタの参考の値が計算できる。

③ 位相関係の表示

FFT 演算の中で、実部と虚部の値の比から周波数の位相を求め、制御周期の進みや遅れが考察できる。

④ 自己相関、相互相関を計算し、データの周期性や類似性を考察したり、雑音に埋もれた信号の抽出に効果がある。

3) 自己回帰 (AR) モデルの作成とシミュレーション機能 (Photos. 9, 10)

① サンプリングデータのフィルタリングと AR モデルの構成要素 (制御変数、操作変数) の選択を行い、設定された内容で AR モデル式を算出し、これを表示する。

② ①により作成されたモデル式に対し、ステップ応答シミュレーションを行い、その結果を波形表示する。

III. アスキーファイル変換ツール

本ツールを用いてアスキー文字データへの変換が可能で、データロギング機能で収集したプロセスデータを市販の表計算ソフトなどで整理することができる。

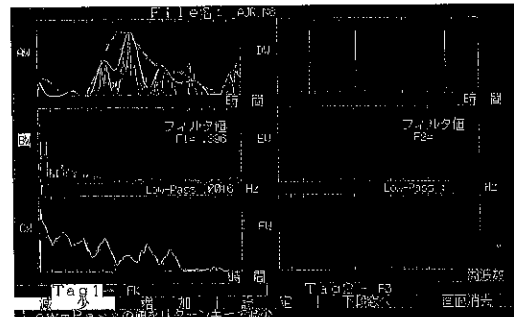


Photo. 8 FFT 解析波形表示画面



Photo. 9 ステップ応答シミュレーションパラメータ設定画面

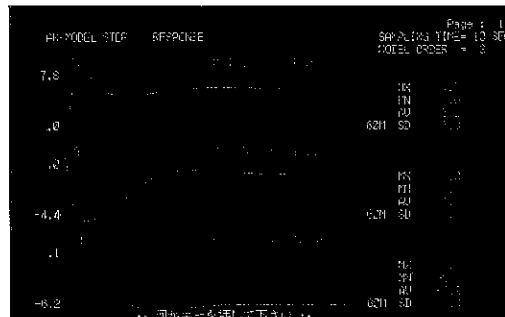


Photo. 10 ステップ応答シミュレーション波形表示画面

IV. ファジィ制御ツール

オペレーターステーション機能ツールにインストールすることで、ファジィ制御の運用が可能となる。

本ファジィ制御は比較的少ないルールで精度の高い推論を高速で行い、また制御ルールの構築を行いやすいものにするため、以下の特長を有している。

1) マルチページ処理

非定常用として、過程を複数のステージに分け(最大16ページ)、状況に応じたルールに切替えて制御することができる。

2) マルチループ処理

全制御ループを複数(最大10ループ)の周期の異なるブロックに分けて記述することができ、各ループ間の動作(起動・停止・同期)を後件部で記述できる。また、制御周期も固定と特定入力変数値に比例させる可変が選択できる。

3) 入力変数

制御周期に対応した過去のデータを最大4回前まで残すことができ、過去の値を制御ルール内で変数として使用できる。さらに、これらの変数、定数を使用して、演算処理の記述により制御ルールで使用する変数を新たに作成できる。(最大60変数)。

4) 制御ルール

制御ルールは入子型IF文の記述をAND関係で許し、NBからPBまでのファジィ集合を表現する“=”以外に、“>”、“<”、“<=”、“>=”、“<>”の記号と定数によるクリスプ集合(0, 1の値のみとる)の表現も併記できる。また、2つ以上の関係式を結合させる“AND”、“OR”や関係式の適合度を反転させる“NOT”の論理演算子を使用できる。

5) 前件部、後件部

前件部(もし～ならばの部分)では、NB, NM, Z, PM, PBの5種類のメンバーシップ関数の使用ができ、後件部(～せよの部分)では、NS, PSを加えた7種類のグレードが使用できる。前件部、後件部の命題数には特に制限はない。

6) 出力変数

出力変数は1ページにつき、最大16変数まで記述でき、出力推論は速度型の重み付け平均化法を使用し、少ないルールで効率のよい推論ができる。また、同一出力変数を複数ループで記述することにより、出力値の重ね合わせもできる。

ここで、本ファジィ制御ツールを使用して流動造粒プロセスの安定化を検討した一例を紹介する。

従来のPID制御法では、それぞれの制御因子を個々に

制御することにより、制御を形の上で成り立たせている場合がある。しかし流動造粒操作のように操作因子間に強い相互作用がある場合には、外乱などに対しては個々の制御ループ内での修正動作の結果、それに影響される他の制御因子が変動することがあり、この影響が大きい場合には安定した流動層が得られない。この問題解決のためには、顆粒の生成と成長に及ぼす作用因子を特定し、この作用因子に関わる制御因子を、その他の因子へ及ぼす影響を考慮したうえでプロセス全体の状態から判断して最適値に制御しうる制御技術が必要であろう。弊社では、この作用因子として粒子水分 M_p 、粒子群の流動エネルギー E_k 、流動空気熱エネルギー E_t に着目し、これらが適切にバランスされている場合には、顆粒の凝集速度と破碎速度が動力学的に釣り合った安定な流動層が形成されるのではないかと考えられる。各作用因子間には強い相互作用があり、かつ多変数制御系となるので従来の制御法では精度の高い制御が望めず、ファジィ制御とDDC(ダイレクトデジタルコントロール:離散型PID制御)のコンビネーション制御系を構築した。その結果、顆粒の成長に及ぼす相互作用の強い作用因子が適切に目標値に制御され、そのバランス指数($I_b = M_p / (E_k \cdot E_t)$)に応じた粒度の顆粒を再現性良く製造できるようになった。この詳しい内容については参考文献10) 11) に記されているので参照されたい。

3. オンラインセンサ

製品品質の再現性の向上を念頭においたプロセスの最適化は、粒子特性を適当なセンサによりモニタリングし、その情報に基づいて最適な制御操作を行うことである。弊社では制御手法とともに、この粒子特性をオンラインモニタリングしうるセンサ開発を進めている。本章では、最近販売を開始した粒子流動化特性を定量しうる流動検知センサと粒子水分を計測する光ファイバ式赤外線水分計について、その概要を紹介する。

3.1 流動検知センサ

流動風量の設定は、例えば低風量運転では造粒の進行に伴い顆粒の造粒速度が増して、ブロッキングの危険やダマの生成率が高まったり、逆に高風量運転では顆粒の破碎速度が増して、微粉の生成率が高まるなど、収率に大きく影響するため、粒子特性の経時変化を考慮した最適な流動状態に維持される値に設定することが重要である。従来の設定方法としては、造粒の進行を考慮に入れて原料毎に目視で最適な流動風量を選定し固定(定値制御)したり、造粒の進行に応じてパターン化できるもの

はプログラム制御を実施するのが一般的であるが、その決定は個人差のところで、かつ制御上、外乱に対して追従性のない扱いの難しい操作因子であった。

この問題を解決するために弊社では、流動状態が定量できる『流動検知センサ』(Photo.11)を使用して最適流動風量のフィードバック制御を試みている。一般に流動に基づく粒子群同士の衝突、摩擦や、攪拌羽根・回転円盤、および造粒容器内壁との衝突、摩擦等の現象において、造粒容器はその衝撃力により振動し、周囲に微弱な高周波音波（アコースティックエミッション、AE波）を放射しているが、本センサはこのAE波を検知し定量するものである。またAE波特性は粒子特性に依存しているので、流動造粒プロセスのように、粒子特性の経時変化を考慮に入れた流動状態の定量的評価のうえで有用ではないかと考えている。尚、流動造粒装置における本センサの特性については、参考文献11) 12) で検討しているので参照されたい。

ここでは本センサの他の使用例として、Fig. 4 に示すペレタイザ装置の流入口で、半乾燥状態のテンサイパル

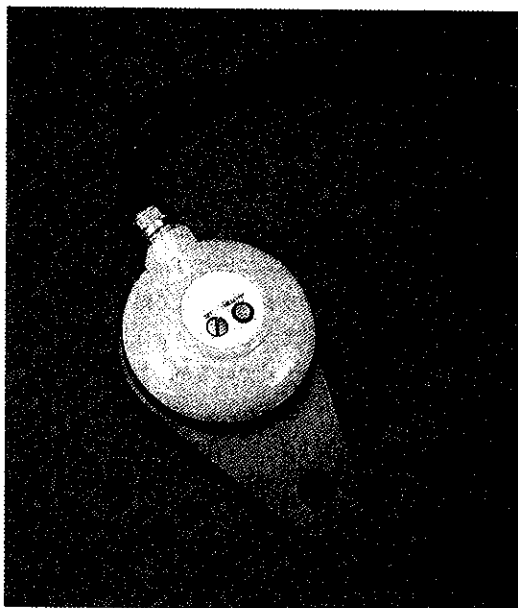


Photo. 11 流動検知センサ

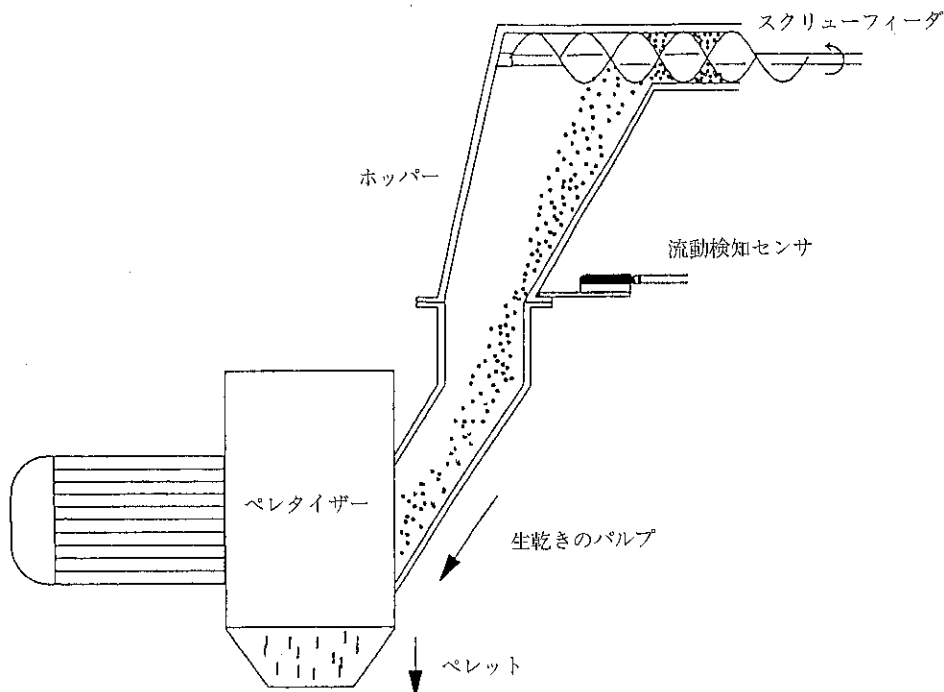


Fig. 4 テンサイパルプの供給、押出し工程フロー

プ(砂糖抽出工程で残るもの)の流れの有無の検知に応用した例を示す。パルプはスクリーフィードから切出され、アルミニウムのホッパ内を重力落下してペレタイザで押出しされる。この際、押出し工程を容易にするために蒸気を送られており、ペレタイザが詰まると流量損が発生する。しかし現状ではこの詰りが頻繁に起こり、これを取除くには手動で装置を停止しなければならず、そのために平均5〜10分を要していた。Fig. 5は、ホッパのフランジに本センサをクランプ固定して得られたセンサ出力値の経時変化を示している。図中にはこの間に観察された種々の事象が記入されているが、これを見ると、センサ出力はペレタイザ装置からの激しいノイズや振動ではなく、パルプのホッパへの衝突、摩擦によるものであることが判る。またパルプが十分に流れている状態から停止状態に移行する間には、センサ出力レベルの66%の減少が認められ、逆にパルプの流量増加時には、これに伴ってセンサ出力値の増大が認められる。以上のことから、ペレタイザ装置から出るバックグラウンドノイズから、テンサイパルプの流れを検知し定量できることが判り、センサ出力を基に蒸気量の制御ならびにペレタイザの詰まり防止対策が計れることになった。

本例のように流動検知センサは粉粒体の供給や、パイ

プ内での閉塞現象、流動層、混合機などの固体/気体比の値が比較的大きな粉体処理機械内での付着、固着現象などの流動異常を即時に検知できる。取付方法もセンサ先端部の穴を利用して簡単にボルト締めできるようになっている。弊社ではこの流動検知センサを流動層装置のみならず他の粉体装置においても、現場で手軽に使用していただけるように、専用のコントロールボックスと組合わせて販売している。また貸出器も用意されている。

3.2 光ファイバ式赤外線水分センサ

流動風量の制御とともに、材料水分の顆粒物性に及ぼす影響は大きい。最近ではこの水分制御に光ファイバ式赤外線センサが使用されるようになり、目的とする粒径、密度の顆粒を製する制御技術が確立されつつある。通常、流動造粒装置にファイバ式水分センサを設置する場合には、安定した測定を行うために専用治具が用いられている。従来の治具は、オープン管を挿入し、エアージェにより赤外線の光路をパージしつつ、照射スポットを安定化させるものが主流である。この種の治具の共通の問題点としては、実際には安定した測定面を維持することが難しいために長時間の平均測定を行わなければならない、そのため応答性が悪くなったり、また、パージエアー

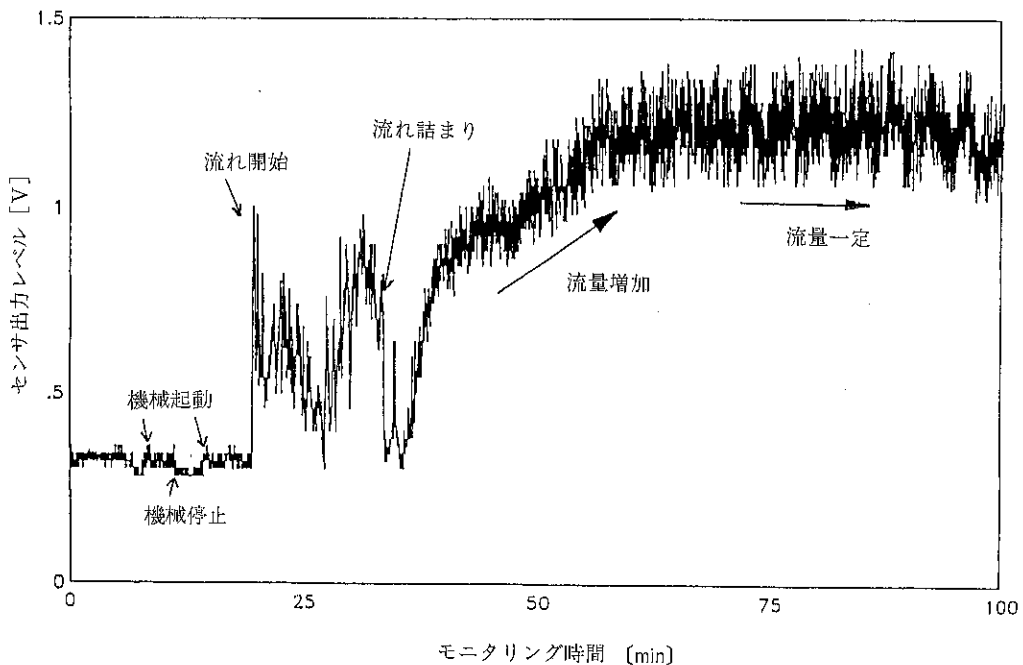


Fig. 5 流動検知センサによるモニタリング結果

の流入により装置内部の流動性や温度、湿度などに影響を及ぼすことなどが知られている。弊社では流動造粒装置に最適な光ファイバ式水分計として Fig. 6 に示す KM-50 (倉敷紡績㈱製)¹⁹⁾を使用し、倉敷紡績㈱と協力して上記の問題点を解消した治具の開発を進め、ほぼ実用化の目処がついた。本治具ではエアージャグが不要で、付着対策が十分になされたものであり、非常に安定した測定が可能となっており、現在、弊社のアグロマスタ AGM-50 に設置されユーザーテストに対応している。この詳細については別の機会に紹介させていただく。

終わりに

弊社では今後とも多様な観点から流動造粒装置における安定運転、品質の再現性向上ならびに品質操作の自在化を実現するためのプロセス制御技術について検討を進めてゆきたいと考えている。

尚、本稿で紹介したアグロマスタ、自動運転支援システム、流動検知センサ及び光ファイバ式赤外線水分計は、いずれも弊社枚方技術センタに設置され、ユーザーテストに対応している。皆様方の設備検討、あるいは研究のお役に立てれば幸いである。

参考文献

- 1) 伊藤義弘：PHARM TEC JAPAN, 9 (8), 65 (1993)
- 2) 伊藤義弘：粉体と工業, 24(7), 45 (1992)
- 3) 西井和夫：粉体と工業, 22(6) (1990)
- 4) 柴田岳男：粉体と工業：23, (6), 31 (1991)
- 5) 寺下敬次郎, 綿野哲, 宮南啓：粉体工学会誌, 28(6), 24 (1991)
- 6) 綿野哲：平成4年度第2回造粒分科会技術討論会要旨集, p. 28
- 7) 綿野哲, 宮南啓, 伊藤義弘, 川上登：第10回製剤と粒子設計シンポジウム講演要旨集, p129
- 8) 井上速男：第10回製剤と粒子設計シンポジウム講演

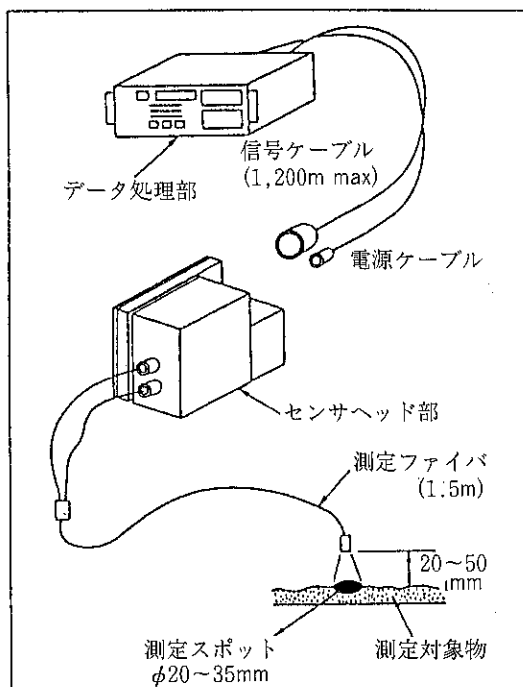


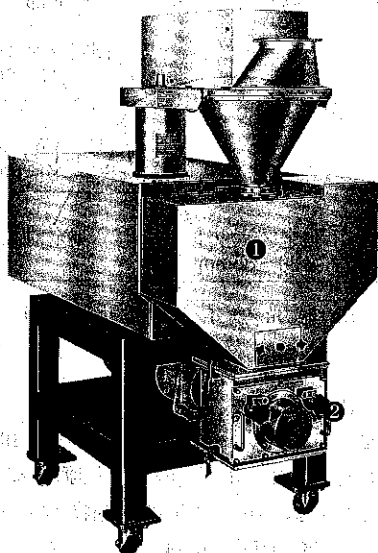
Fig. 6 光ファイバ式水分計 KM-50

要旨集, p111

- 9) 柳原弘彦：オートメーション, 35(4), 41 (1990)
- 10) 辻本広行, 横山豊和, 井上義之, 祝原栄治, 笠松孝幸, 桑野勢起, 関口勲：第10回製剤と粒子設計シンポジウム講演要旨集, p124
- 11) 辻本広行, 横山豊和, 井上義之, 祝原栄治, 笠松孝幸, 桑野勢起, 関口勲：粉体工学会秋期研究発表会講演要旨集, p 6 (1993)
- 12) 辻本広行, 横山豊和, 井上義之, 関口勲：粉体工学会秋期研究発表会講演要旨集, p 1 (1993)
- 13) 藤村啓：センサ技術, 13(5), 31 (1993)

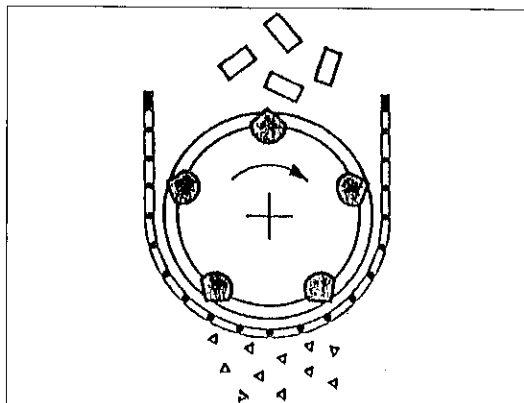
ファーマパクタ (L200/50P 型) および フレーククラッシャ (FC-200型)

ホソカワ/ビーベックス造粒機シリーズのうち、乾式造粒機「ファーマパクタ (L200/50P 型) および解砕・整粒機「フレーククラッシャ (FC-200型)」を表紙で紹介した。このシリーズには前記のほか乾式造粒機「コンパクタ」、半湿式造粒機「ギヤーペレタイザ」、連続式混合・混練造粒機「エクストルド・オー・ミックス」等があり、医薬品を始め、食品、化学薬品、プラスチックなど多くの分野において豊富な納入実績がある。



①ファーマパクタ L200/50P 型

②フレーククラッシャ FC-200型



フレーククラッシャの概念図

ファーマパクタ

ファーマパクタ (L200/50P 型) は、GMP 仕様に対応した特に医薬品、食品等の処理に最適な実験室・小規模生産用の乾式圧縮造粒機で、ロールの脱着を容易な構造とし、機械清掃を簡単にできるよう設計したものである。

◎構造

原料粉体は上部のホッパーに供給され、縦型スクリーンにより等速で回転しているロール間に押し込まれ圧縮作用を受ける。ユニット化された圧縮ロールとベアリングはフレームに固定されており、それらは数分で装置から取り外すことができる構造となっている。さらに、供給部（ホッパー、スクリーン、駆動部）についても昇降装置により上部に持ち上げ水平に回転させることができるので清掃が容易である。また、発塵および外部からのコンタミ防止の為にロール部カバーも取り外しが容易である。成形体の硬さ調節はロールとスクリーンの回転速度比により行い、フレームに取り付けられたロードセルにより材料に加えられた圧縮力を測定する。ロールの形状は平滑型、波型、ブリケット型を使用することができ、様々な要求に対応することが可能である。

フレーククラッシャ

フレーククラッシャ (FC-200) は比較的柔らかな原料や凝集塊の解砕と整粒が効率良く、発塵させずに行うことができ、特に、ファーマパクタの後処理として圧縮成形品の解砕・整粒に使用の場合、一層高い効果が得られる。

◎構造

本機は外部への発塵を防ぐコンパクトな構造で、概念図に示すように、原料は所定の速度で回転するロータとスクリーンとの間で解砕・整粒される。ロータとスクリーンとの間隙は外部から容易に調整することができる。

また、ファーマパクタのロール部カバーと密着して接続できるため、発塵・外部からのコンタミを防止できる。

造粒のシミュレーションとモデル実験

砂田 久一*
Hisakazu Sunada

近年、医薬品工業では、凝集あるいは造粒は重要な製剤工程の一つと考えられているが、この現象の研究は設定された実験条件で実験を行うのは非常に難しいために、これまであまり行われなかった。そのために、コンピュータを用いたシミュレーションによる研究が有効な手段となる。

造粒のシミュレーション

造粒には、粒子同士が衝突・凝集し、凝集塊を形成する過程と、その凝集塊が圧密されてペレット状になる過程がある。また、造粒方法によっては、形成された凝集塊やペレットが強い剪断力のために破壊される過程もある。このような過程をコンピュータを用いて具現化し、凝集の速度過程や形態変化などの機構を検討するために、3種類の二次元モデルについてモンテ・カルロ・シミュレーションを試みた。

その位置を二組の乱数により定められた数個の基本粒子、あるいはいくつかの基本粒子からなる凝集粒子を、乱数により任意の方向に運動させて粒子同士を衝突させる。衝突させた粒子あるいは凝集粒子が凝集し、更に大きな凝集体になるかどうかは、その都度発生させた乱数と一定の凝集確率との比較により決定する。

衝突・凝集の結果、元の粒子の合一した大きさの粒子を生成させるのが Random Coalescence Model であり、凝集後も、凝集体に元の粒子の形状が保存されるとしたのが Random Walk Model である。

また、中心粒子に向かって、任意の方向から粒子を飛翔させて衝突させ、その際、飛翔・衝突させる粒子の発生率、方向、衝突・凝集させるかどうかを、乱数と一定の確率と比較して決定し、凝集体を形成させるのが Random Addition Model である。

Fig. 1, 2には Random Coalescence Model, Fig. 3,

No.	1	2	3	...	99	100
Time						
0	①	①	①	...	①	①
100	②	①	②	...	②	①
200	④	②	④	...	②	①
300	④	②	④	...	③	③
400	⑤	②	⑥	...	③	⑦
500	⑦	③	⑥	...	③	⑧

Fig. 1 100 Discs Numbered from 1 to 100 at Time Zero and at Various Later Times

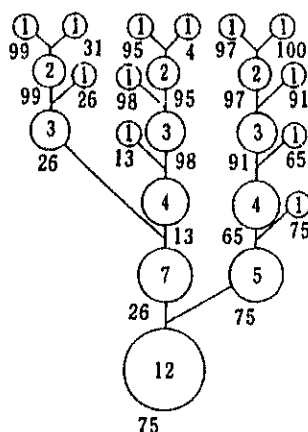


Fig. 2 Collision Sequence by Method A for a Disc Containing 12 Units
The number in and under each disc represent the number of unit discs involved and the disc number, respectively.

* 名城大学薬学部 薬品物理化学教室
(〒468 名古屋市天白区八事山150)
Tel. (052) 832-1781

4には Random Walk Model が示されており、これらの凝集過程は二次過程であり、Smolchowski の理論に良く適合した。それに対し Random Walk Model は一次過程であり、Capur の layering 機構が支配的であることがわかった。

Fig. 5は Random Addition Model の生成過程を、Fig. 6は付着力を変化させた場合の生成物の結果を、Fig. 7は多分散系についての結果である。

さらに、生成物が外力が加わり、圧密が生じる過程についてもシミュレーションを行った。(Fig. 8)

モデル実験

シミュレーションの結果と実際の系との比較検討のために、二次元モデルについて実験を行った。造粒ステアリルアルコールの一定量を、種々の濃度に調整した界面活性剤水溶液の表面に散布し凝集させる。その過程を経時的に写真撮影し、粒子形状、粒子数、粒子径などの変

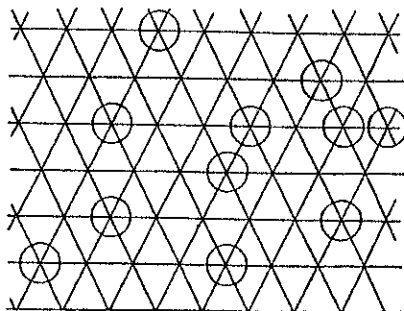


Fig. 3 Example of the three-directional grid, showing six primary particles (singles) and two types of agglomerates: two with two particles (doublets) and one with three particles (triplets).

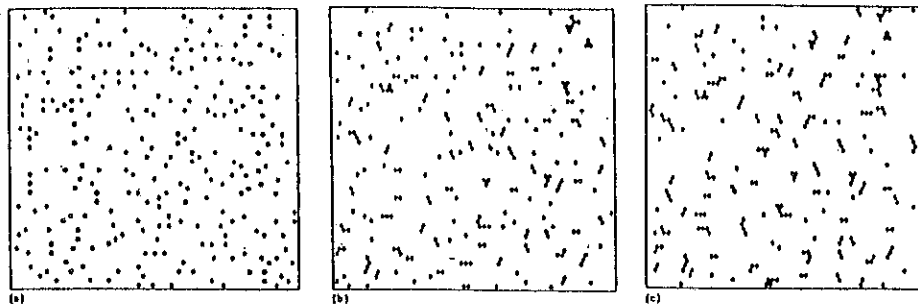


Fig. 4 Simulation result of agglomeration process with $P = 0.75$, $N_0 = 250$ (a), $t = 0$; (b), $t = 5$; (c), $t = 10$

化を測定した。

Fig. 9は界面活性剤濃度により、粒子形状の変化の様子が異なることを Fig. 10は凝集速度が異なることが示されている。粒子間摩擦力や付着力の変化についても調

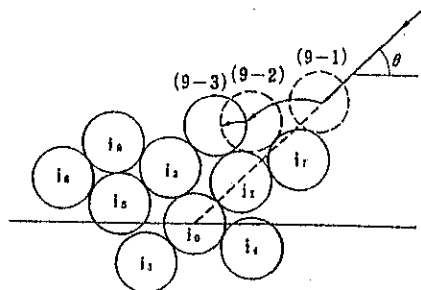


Fig. 5 Procedure of Random Addition of Discs

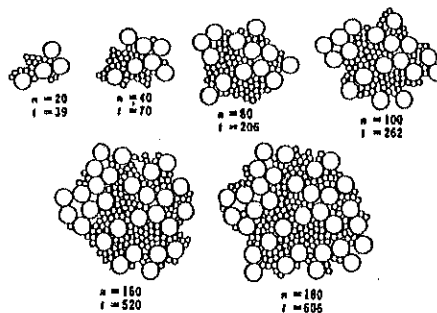
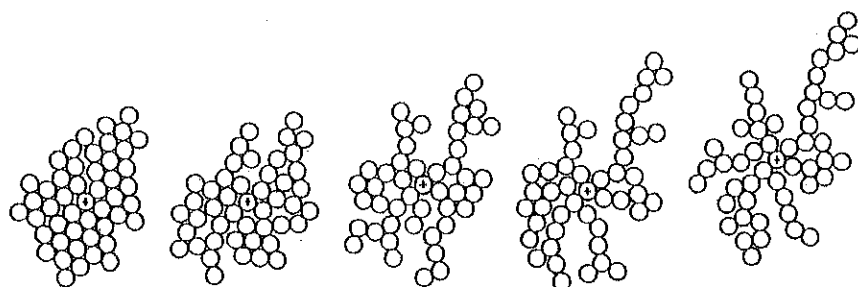


Fig. 6 Simulation Result for the Growth of Agglomerates Diameter ratio of circles: 1:3 t : agglomeration time, n : number of circles composing the agglomerate.



(a) $P = 0\%$ (b) $P = 25\%$ (c) $P = 50\%$ (d) $P = 75\%$ (e) $P = 100\%$

Fig. 7 Typical Figures of Agglomerates obtained by Varying the Cohesion Probability P

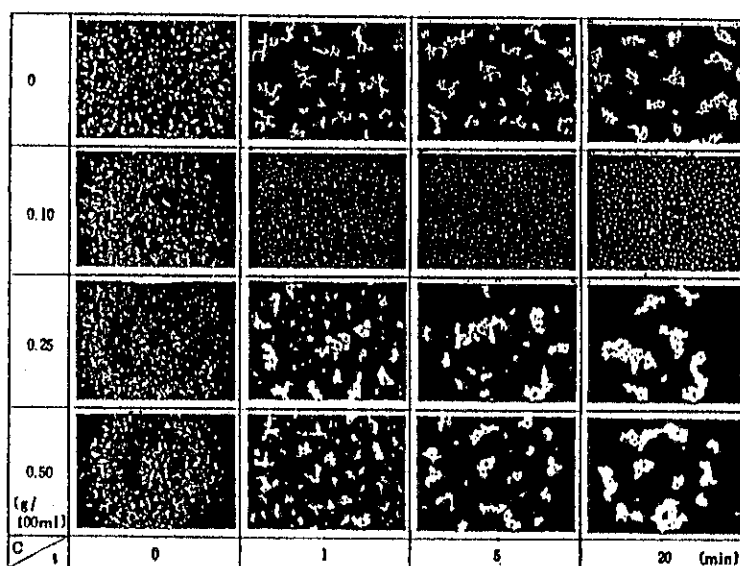


Fig. 8 Flocculation process of agglomerated stearylalcohol under the various concentration of sodium lauryl sulfate

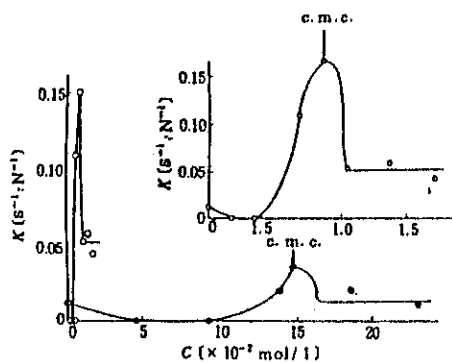


Fig. 9 Rate constant k as a function of the concentration of aggregating agents

● 1-Octanesulfonate. ○ Sodium lauryl sulfate

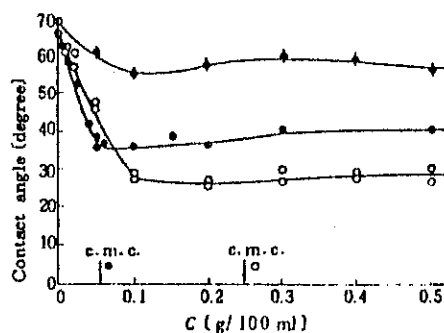


Fig.10 Wettability of stearylalcohol

● sodium 1-octanesulfonate : ○ sodium lauryl sulfate : ● benzalkonium chloride

べたところ Fig. 11に示されているように界面活性剤濃度により、粒子表面の漏れ性に変化し、粒子間に働く力の大きさが変化するためにこのような現象が見られ、特に c.m.c を境にして粒子間に働く力が変化するために、大きく変化することがわかった。

その結果、凝集速度は二次過程であり、シミュレーションの結果と、モデル実験の結果を対比させた Fig. 12で示されているように Random Walk Model と良い一致を見た。

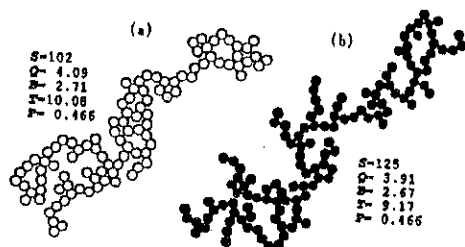


Fig.11 Comparison of the Experimental Aggregate Shape (a) with the Simulation Results (b)
Simulation condition is $N_0=125$, $C_p=1.00$.

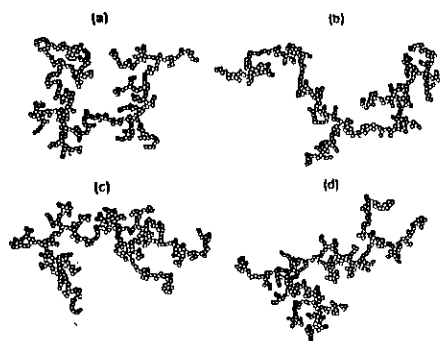


Fig. 12(a) Simulation Results of Structure of Aggregates without Compaction
(T1) : (a). $P_b = 0.00$ (C0), (b). $P_c = 0.00$ (C1)
(T0) : (c). $P_b = 0.00$ (C0), (d). $P_c = 0.00$ (C1)

上記の研究内容の詳細については、下記論文を参照されたい。

1. 充填のシミュレーション

薬誌, 81, 1570(1961) : 82, 629(1962) : 83, 73(1963) : 88, 651(1968) : 88, 705(1968)
88, 1419(1968) : 192, 59(1972) : 92, 1034(1972) : 96, 899(1976) : 96, 938(1976) : 97, 1207(1976)
粉体工学会誌, 7, 3(1970) : 10, 337(1973) : 12, 25(1976)
材料, 21, 508(1972) : 22, 620(1973)

2. 造粒(凝集)のシミュレーション

材料, 27, 610(1978) : 27, 614(1978) : 29, 864(1980)
Chem. Pharm. Bull., 27, 3061(1979) : 29, 273(1981) : 30, 280(1982) : 30, 4457(1982)
34, 833(1986) : 34, 4308(1986) : 40, 1582(1992)
粉体と工業, 13, 38(1981)
Powder Tech., 38, 211(1984)
粉体工学会誌, 18, 666(1981) : 23, 685(1986)

3. モデル実験

粉体工学会誌, 23, 636(1986)
Chem. Pharm. Bull., 36, 3584(1988)

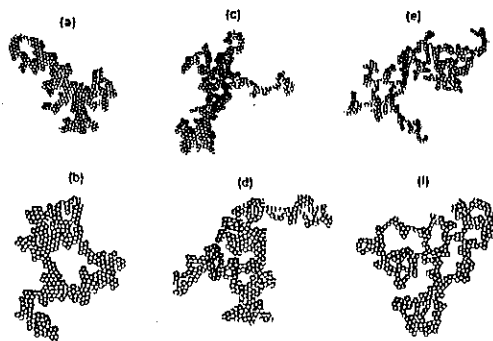


Fig. 12(b) Simulation Results of Structure of Aggregates with Compaction (T1)
(C0) : (a). $P_b = 1.00$, (b). $P_b = 0.60$, (c). $P_b = 0.20$
(C1) : (d). $P_c = 1.00$ $N_s = 10$: (e). $P_c = 0.50$ $N_s = 1$.
(f). $P_c = 0.10$ $N_s = 1$

造粒技術の体系化に伴う装置・操作上の諸問題

関口 勲*
Isao Sekiguchi

1. はじめに

造粒技術は、「粒」の多面的な機能化を目指して業種特有の造粒品を製造する分野であり、その応用面が拡大しつつある現状である。しかしながら、その対象とする材料が余りにも多様で、かつ装置類も複雑化しつつあるため、造粒の基礎技術は学術上においても幅広く広がっている¹⁾。一般に特定目的の技術は、「広さ」×「深さ」により拡大し、それと共に中味の質的充実が必要である。まだまだ「深さ」の点では造粒に係わる工学上の問題が山積しているが、ここでは造粒全般の中から特に主要な装置・操作に関連した内容を横断的に特徴を取り上げ、それらの基礎面の概説を試みた。

2. 造粒の目的・分類からみた多様化

造粒の目的は要約すると Table 1 のようになり、その操作のための方法は多様であって、Table 2 のような例があげられる。造粒体の形状は一般に球状であり、これに破砕状、円柱状、その他の成形体（錠、ブリケット）などがある。構造の点では Fig. 1 に示すような例があげられる。

さらに、造粒では業種特有の目的をもって多様な原料を調整し、最適な造粒体をつくることにあるから、造粒の方法は多角的に検討される。しかしながら、造粒体を取り扱う道筋は Table 3、あるいは Fig. 2 のように要約される。また、これらに含まれる造粒技術の分野は、Fig. 3 のように多くの学術分野にまたがっており、まさに境界分野の典型例である。このように表わすと、造粒技術特有の指向性は明確になり難く、かつ発散してしまうため、Fig. 4 では装置・操作の観点からイメージを与えやすいように気体または液体連続相内での造粒、さらに粉体

濃厚相（層）での造粒のように大分類してある。

3. 液滴群の発生・固相転換による造粒

3.1 気液系、液液系における分散滴

気液系における液体の細分化については、すでに総説²⁾で整理したことがあるが、最近のように液液系を含めた高粘性液あるいは高濃度スラリー、エマルジョンなどを対象とした精密な滴化技術（特に非ニュートン流体系）に類する造粒の面では多くの問題が残されている。まずノズル口径 d_n の先端での懸垂小液滴は徐々に膨張し、静的に表面力と重力（液液の場合：浮力）のエネルギーが釣り合い、その液滴体積 V_s は $F(-)$ を Harkins-Brown 補正係数³⁾として示される（通常、 $F \approx 1$ ）。

$$V_s = F \pi d_n \sigma \cos \theta / (g \Delta \rho) \quad (1)$$

つぎにノズルと液滴を結ぶネックが切断し、最終的な液

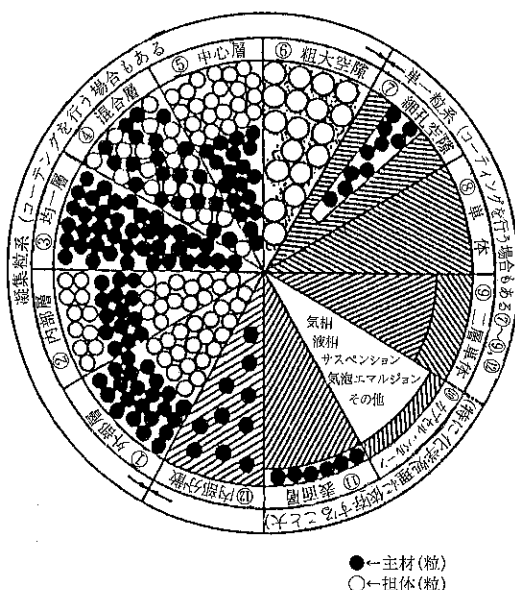


Fig.1 多様な造粒体の構造形態

* 中央大学理学部応用化学科
(〒112 東京都文京区春日1-13-27)
Tel. (03) 3817-1913

Table 1 造粒の目的

分類		造粒処理による効果
粉体自体の処理	偏析	密度、粒度、形状の差による異成分系の混合粉体の分離現象を防ぐため、その均一性を保持する。
	圧縮(密)	粉体圧縮時の応力伝達の向上、キャッピングの防止、かさ比重の増大に寄与するための予備造粒を行う。
	流動	各種粒子間力、吸湿などによる粒子間相互作用を低減し、重力流動、機械的流動などを円滑にする。
熱物質移動・反応	溶解(融)	液相に溶解(融)する際のまま粉の発生を防いで、適正な液相内での浮遊、溶解(融)を制御する。
	通気(液)	固定層、移動層などの通気(液)抵抗を低減し、同時に熱・物質移動、反応などの定量化と制御を行う。
	機能	吸着、イオン交換、触媒反応、徐放制御、マスキングなどの高度な機能をもつ造粒体にする。
粉体管理上の対策	移送	搬出入の省力化と自動化、輸送容量の低減、発じんの防止、容器内での付着・凝集の防止などに有益である。
	保全	作業環境の浄化、粉じん爆発や自然火の予防、長期貯蔵時の品質保障などに効果的である。
	計量	供給、包装などの自動化と精度の向上、重量から個数への計量転換、包装資材の改良などがある。

Table 2 気体連続相、液体連続相および粉体濃厚相での粉体調製法と造粒法

1. 気体連続相の場合

- (1) 蒸発凝結法* (抵抗加熱、アーク加熱、プラズマ加熱、高周波誘導加熱、化学炎等の利用)
- (2) 気相反応法* (粉体噴霧加熱、気相合成、固・気反応等の利用)
- (3) 加熱発泡法 (発泡剤混入・融解・冷却・解砕・加熱、芯物質の熱分解等の利用)
- (4) 噴霧冷却法 (融解・スプレー・冷却・固化)
- (5) 噴霧乾燥法 (水溶液、コロイド液、スリラー液等の噴霧乾燥)

2. 液体連続相の場合

- (1) 沈凝反応法* (沈凝反応、加水分解、水熱反応等の利用)
- (2) 溶解析出法* (加熱冷却、容媒蒸発、容媒抽出、分別結晶等)
- (3) 界面反応法 (無機合成、界面重合、in situ 重合等)
- (4) 高分子溶解硬化法 (3成分系コアセルペーション、滴下硬化等)
- (5) 分散系高分子重合法* (浮化重合、懸濁重合等の利用)
- (6) 凍結乾燥法 (低温化学法、凍結解砕、凍結噴霧等)
- (7) 懸濁凝集法 (高分子凝集剤、高分子金属捕集剤、選択ぬれ等)
- (8) 滴下ブリリング (ウォーターブリリング、オイルブリリング等)

3. 粉体濃厚相の場合

- (1) 転動造粒法 (回転バン、回転ドラム、回転頭切円錐等)
- (2) 流動層造粒法 (流動層、変形流動層、噴霧層等)
- (3) 攪拌造粒法 (バグミル、ヘンシェル、アイリッヒ等)
- (4) 解砕造粒法 (回転刃(垂直)、回転刃(水平)、回転バー等)
- (5) 圧縮造粒(成形)法 (圧縮ロール、ブリケットングロール、打錠等)
- (6) 押出造粒(成形)法 (スクリュウ、回転多孔ダイス、回転ブレード等)

(備考) *：特に微粉体の調製法に属する。

Table 3 目標とする造粒体に至る主要関連事項

造粒体の目的
Fig. 1 の造粒体構造例
使用目的に応じた特定の場合 (気相, 液相, 粉粒体層, 生体など)
場での外的要因 (機械的強度, 熱・物質移動, 反応, 吸着など)
造粒体の形態設計 (最適な寸法, 形状, 構造, 成分, その他の物理的・ 化学的修飾など)
原料調製—造粒装置・操作—目標造粒体

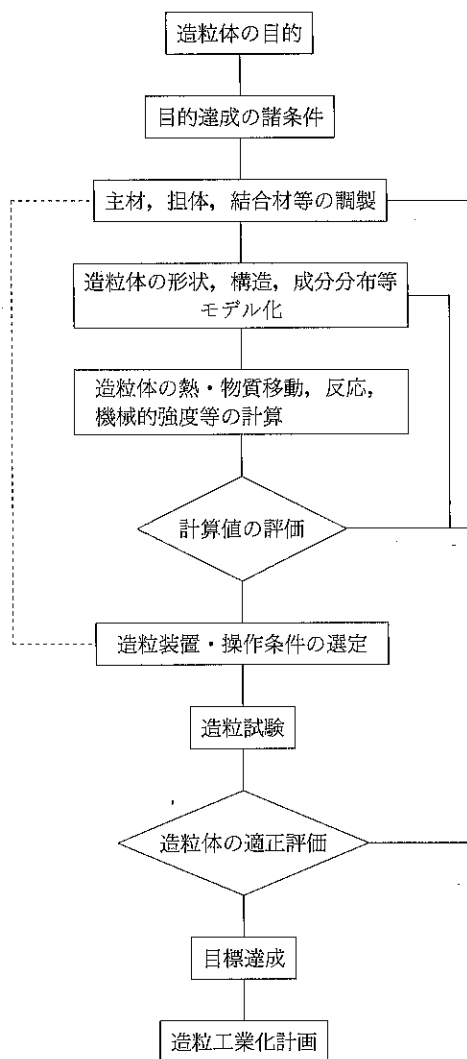


Fig. 2 造粒体の基本設計手順

滴体積 V_F は Q を滴生成体積流量, θ_c を液滴の離脱時間として $V_F = V_s + Q\theta_c$ のように整理されるが, この θ_c の扱いは一般に Rao⁴⁾ の液滴中心運動 (降下) の研究が参考にされる。この研究内容ではニュートン流体中の非ニュートン流体 (指数法則モデル) またはニュートン流体の静的液滴生成, あるいは連続相を非ニュートン流体とした場合にも適用される⁵⁾。液柱での分裂による液滴生成では, Rayleigh⁶⁾ の液柱分裂理論 (後に Weber⁷⁾ は粘性を考慮) を基礎とし, この液柱の最大不安定振動数 f が液柱速度 u_l とその直径 d_l の間に $f = u_l / (4.508d_l)$ であるため, 均一液滴の発生にはノズル, 液柱周囲媒体またはノズル液流入側に周期的振動を与えればよい。各種スプレーによる噴霧液滴生成については上記の総説を参照されたい。

液相内分散滴の制御 (管内, オリフィス, 攪拌等) では, 液相の乱れのマイクロ渦流に関する Kolmogoroff 理論を適用した分散滴径の決定 (解説⁸⁾) が理解しやすい。要するにマクロ的に取り扱ったとき, 液滴分裂に寄与するマイクロ渦流に相関する平均的な液単位質量, 単位時間当りの消散エネルギー ε ($\text{Kg} \cdot \text{m} \cdot \text{kg}^{-1} \cdot \text{s}^{-1}$) は, たとえば管内の不溶性 2 液体 (密度 ρ_m) の流動過程において

$$\varepsilon (\pi/4) D^2 L \rho_m = (f/2) \rho_m u^2 \pi D L u \quad (\text{Kg} \cdot \text{m} \cdot \text{s}^{-1}) \quad (2)$$

ただし, D は管内直径, L は管長, u は平均流速, f は摩擦係数とする。また一般化して Bernoulli の定理の運動エネルギー E ($\text{Kg} \cdot \text{m} \cdot \text{kg}^{-1}$) と質量流量 m_f ($\text{kg} \cdot \text{s}^{-1}$) によって $E m_f$ が (2) 式と等しいから, たとえば $\Delta P / \rho_m = \Delta E$ (ΔP : 圧力損失) のときの分散滴 ($A = 6/d_{vs}$ ($\text{m}^2 \cdot \text{m}^{-3}$ —滴群体積) の界面エネルギー $A\sigma$ は $f(\phi)$ を液・液体積比の関数として

$$A\sigma = f(\phi) (\Delta E \rho_m)^{1/3} \quad (3)$$

で示せば, 基本的には消散エネルギー ε が液液分散に結びついてくる。攪拌では攪拌動力を P_v ($\text{Kg} \cdot \text{m} \cdot \text{s}^{-1}$), 液相体積を V (m^3) として $\varepsilon = P_v / (\rho_m V)$ で示されるが, この他には攪拌槽, 攪拌翼, 邪魔板など形状や位置, 液物性を考慮し, 分散滴径は特に Weber 数, その他の因子とともに整理されている⁹⁾。

3.2 溶液等の液滴から固相への転換

一見, 静止気体中の純液滴蒸発速度 (Langmuir) は実用上, 対象とされないが, この関係については低 Reynold 数において滴径 x の時間的変化を次式で示されている¹⁰⁾¹¹⁾。

$$-d(x^2) / d\theta = 8D_v \rho_f (p_s - p_a) / p_f = 8K = \text{const} \quad (4)$$

ここに D_v ($\text{m}^2 \cdot \text{s}^{-1}$) は蒸気拡散係数, p_f , p_0 , p_s (mm-Hg) は気体境膜での分圧, 気体本体の分圧および滴温基準表面の蒸気圧である. すなわち, $x^2 = x_0^2 - 8K\theta$ である. 液滴は造粒の場合に溶液, コロイド液, 懸濁液等であるから, まず第1条件としては滴表面の固相析出を考えると濃度 C ($x/2, \theta$) = C_s (飽和濃度) と仮定できる. 内部・表面循環のない液滴球の滴内濃度分布式(Fickの拡散第2法則)からは簡略式として

$$C(x/2, \theta) = C_0 \exp [4 \phi^2 D_v \theta / (x_0^2 - 8K\theta)] \quad (5)$$

があり, $\phi = \tanh \phi = \phi / (1 + \beta)$, $\beta = (\Delta p M_v \rho_m D_v \text{Sh}) / (p_{BM} M_m \rho_v D_L \phi_{AB})$ である. ただし, $\Delta p = p_s - p_0$, p_{BM} : 境膜内非拡散成分の分圧, M_v , M_m : 蒸発成分分子

量, 境膜での混合ガス成分平均分子量, ρ_{fm} , ρ_v : 混合ガス成分および蒸発拡散成分の密度, D_v , D_L : 蒸発拡散成分の気相と液相内拡散係数, Sh : Sherwood数, ϕ_{AB} (≈ 1): 物質移動係数における移動速度効果. 以上の関係は液滴表面の固相形成条件を満足するものであるが, この点はいわゆる恒率乾燥区間での表面蒸発速度が乾燥速度を律速することに対応する. これは滴表面での固相殻や皮膜の形成に該当するが, 懸濁粒子を含むような場合には乾燥滴内においても恒率乾燥を継続することがあり, これに続く減率乾燥での乾燥粒は一般に高い蒸発速度のもとで中空, 破裂などの形状を生じやすい. いずれにしても多様な液滴の乾燥については, 気流中での乾燥特性曲線を実測した結果から乾燥機構が特定される. 参考例

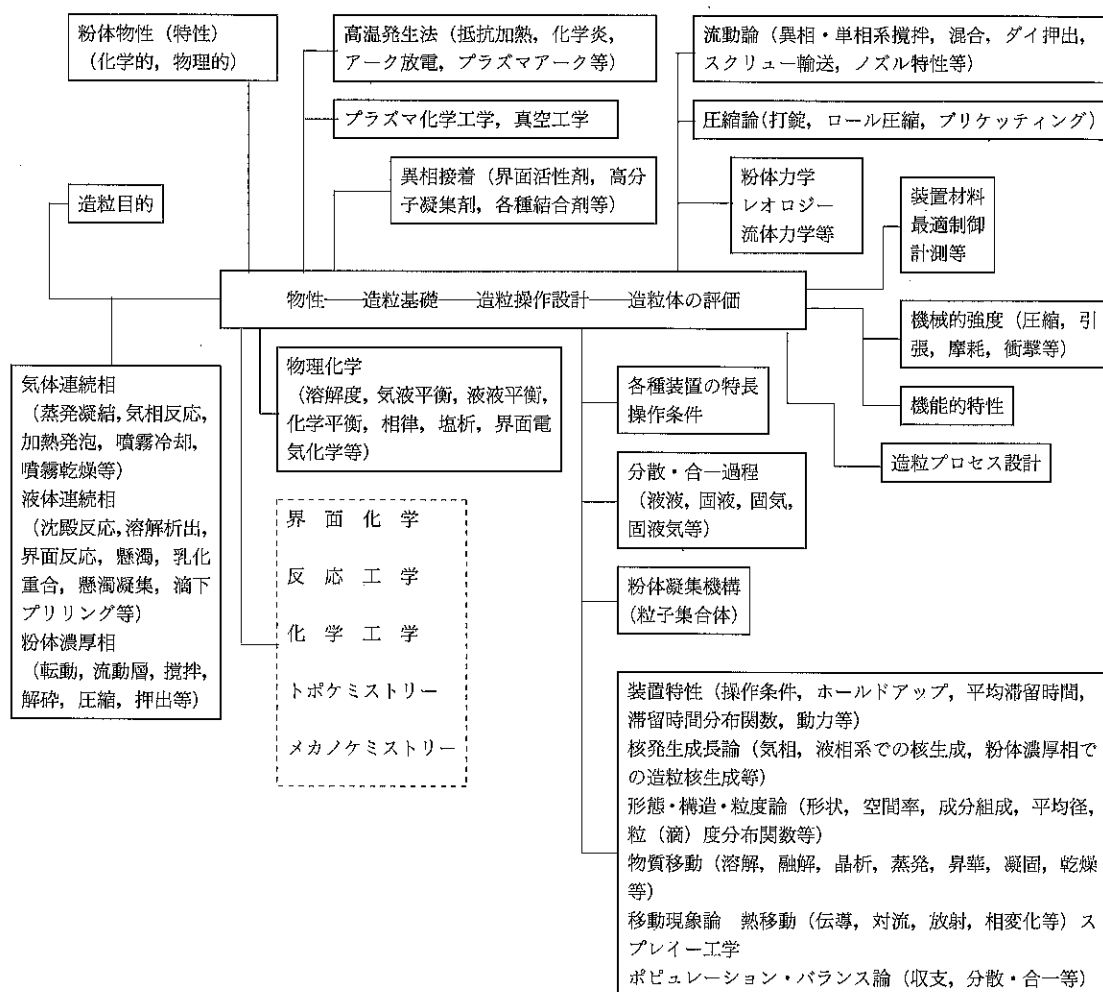


Fig. 3 造粒技術に関する諸事項

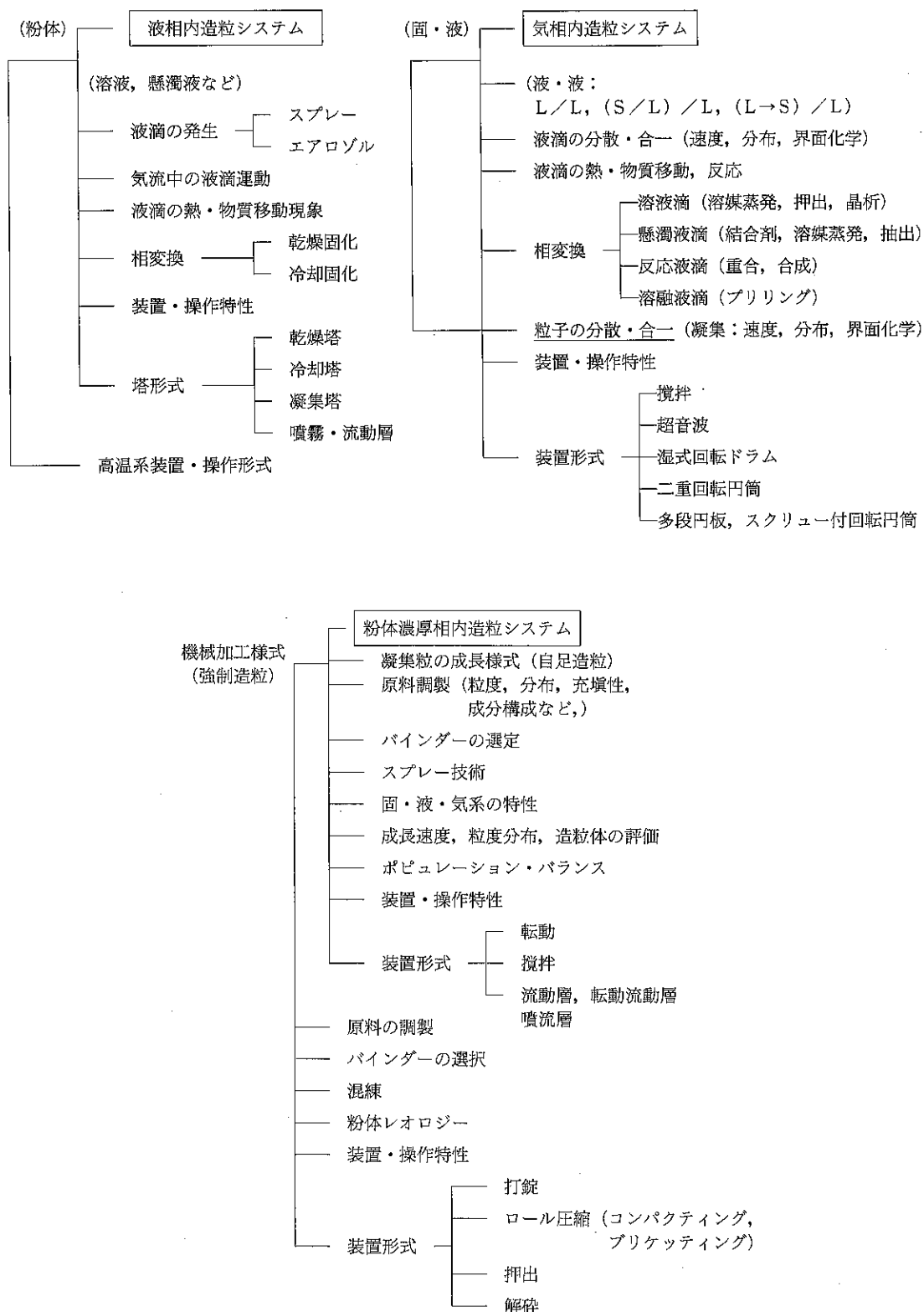


Fig. 4 気相内, 粉体濃厚相内および液相内における造粒システムの概要

としては溶液(例:食塩,ゼラチンなど)や懸濁液(例:ベントナイト)の液滴¹²⁾, O(香気性成分)/W(アラビアゴム)型エマルジョン滴¹³⁾, 高分子溶液滴¹⁴⁾, 香気成分含有液体食品滴¹⁵⁾などがある。この他, 冷却気流中での熔融液滴の固化¹⁶⁾, 液液系での分散滴の熱・物質移動または反応における固相形成の物理化学的処理(例, 界面反応法¹⁷⁾, 本特集号中の川島教授による掲載記事など)もあるが, ここでの記述は省略する。

4. 粉体の凝集・圧密による造粒・小成形体

4.1 固液気系での粒子集合・分散状態

まず, 固液気系における粉体原料の物理化学的な諸性質については, 造粒操作以前の問題として十分に調べておく必要があろう。たとえば, 模式的に Fig. 5 のような物理化学的な取り扱いが造粒操作に関与することが多い。ここでの詳細な説明は省略するが, 基本的には粒子間相互作用に及ぼす固液気系の界面化学であって, 一般に熱力学的平衡論が理論の構成となる。しかしながら, 造粒処理プロセスについては濃厚な粒子群系が強力な剪断や転動の場にあるか, あるいは通気流動場のような運

動状態にあって, しかもそのような力学的抵抗と釣り合いつつ粒子間(または凝集粒間)力を推進する方向で実施される。この力学的な釣り合いがとれたときには最終的に凝集粒の成長(造粒体)が停止し, いわゆる力学的平衡状態となる。固液気系としての湿潤粉体はその原料調製(混合)において十分な時間経過(熟成)を得ていると, ぬれ関連の特性化は熱力学的平衡論の適用範疇に入り, このような湿潤粉体については激しい剪断作用の無い転動のような造粒時での力学的平衡に到達した造粒体の形態特性(例:粒径, 分布, 構造, 強度など)と, そのぬれ特性(例:熱力学的平衡論に立脚した架橋液体, 吸引ポテンシャルなど)の関連性が一つの道筋となって現れてくる。しかし, そのような湿潤粉体であろうとも, 高速での剪断作用, あるいは衝撃作用のもとでは含有液体の粘性を無視できないであろう¹⁸⁾。また, 乾燥状粉体に対してスプレー滴, あるいは所定の蒸気圧のもとで造粒操作を行なう場合には, 固液気系としての粒子表面のぬれ特性関係が動的, かつ経時的に変化(例:蒸発)するため, 熱力学的平衡論の適用が困難となり, むしろ速度論的な展開が不可欠となる。たとえば, 特定の運動状態の粒子群に対する蒸発性純液体の液滴ないしは蒸気の混合系については, 液滴付着(吸着の場合には一般に相対

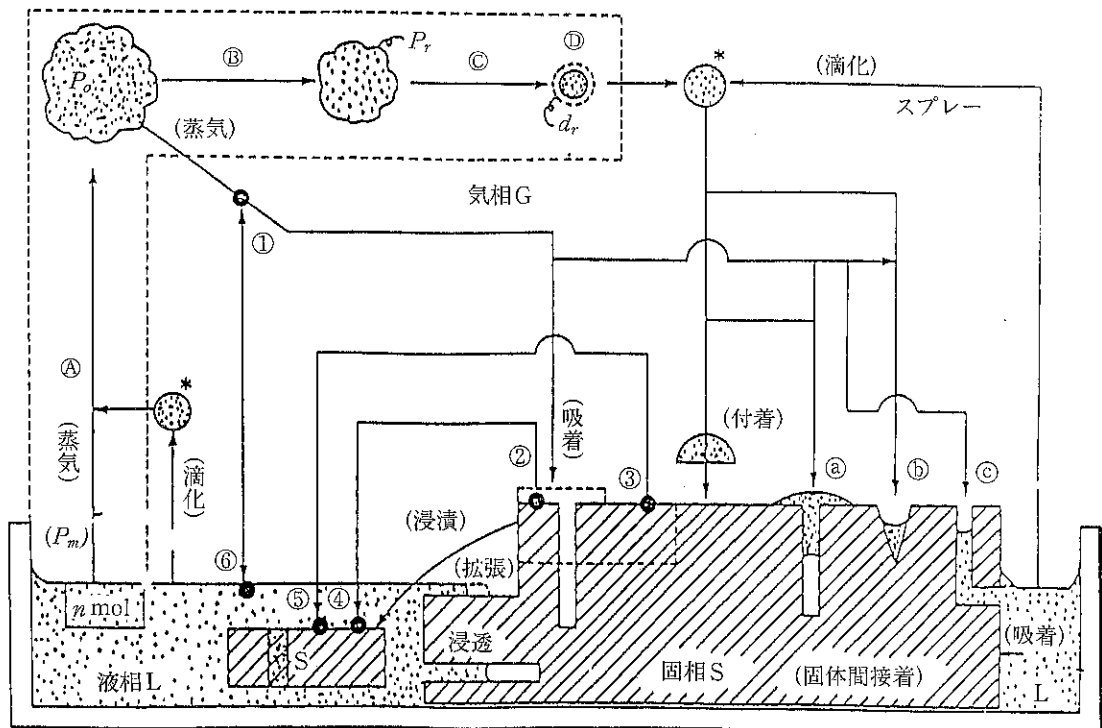


Fig. 5 固液気系の相互関係を示す模式図

蒸気圧が高い) 速度に対する蒸発(脱着)速度の比(γ)を $\gamma > 1$ とすることが造粒の前提条件であるが、溶液液滴を用いる場合には蒸発固相析出(固体架橋)により $\gamma < 1$ の条件の方が安定な凝集粒を生成することになる。もちろん、これには運動中の凝集粒の相互干渉による崩壊作用も加わり、すなわち回分式流動層造粒のような例¹⁹⁾ではスプレー加液速度、蒸発速度、粒子(凝集粒)群の運動量、ならびに凝集粒の表面積(時間依存性)などを全体的に考慮した造粒速度論の取り扱いが必要になる。あるいはスプレー滴によるコーティング造粒の例^{20,21)}では、装置内の断熱増湿を仮定して湿度線図の利用による増湿パラメーターとコーティング効率の関係を決めるような方法が挙げられる。なお、固液気系としての造粒操作では、模式的に示すと Fig. 6 のような粉体濃厚相において実施されている。もし剪断摩擦抵抗(攪拌抵抗)が粒子(凝集粒)間の相互作用の結果として現れたと仮定すれば、④を中心軸にして左側は気相分の増加、そして右側は液相分の増加を意味し、それぞれの領域において多様な造粒操作が行なわれていることに注目されたい。ここでは、いわゆる凝集現象を伴う粉体レオロジーとい

うようなキーワードで整理でき、かつ固液気系の造粒操作として結び付けられることが望ましい。このように見ると、粉体工学には単に造粒技術分野に限らず、まだまだ多くのテーマが山積している状況といえよう(詳細説明:省略)。

4.2 装置・操作上の対応

造粒体の成長様式に依存するタイプの造粒装置類は、前出の Fig. 6 を参考してみると、おもに回転パンや回転ドラムのような転動型(⑥—⑦)、ベッセル底面での高速攪拌型(⑤—⑥)、あるいはその底面側壁スリットから乾燥用通気を伴うような転動用円板付の攪拌転動型(⑤—⑦)、スプレー付転動流動層型(③—④)、スプレー付流動層型(②—③)などの典型的な装置があげられる。括弧内の番号は Fig. 6 中の番号に対応する一つの目安であるが、もちろん造粒過程での攪拌抵抗(攪拌機構を用いない場合も多いが、ここでは粉体材料として攪拌流動を便宜的に対象とした)は経時的に変動することに留意されたい^{22,23)}。これらの装置については、より良い操作性とともに最適な造粒品を目指して著しい改良と考案が

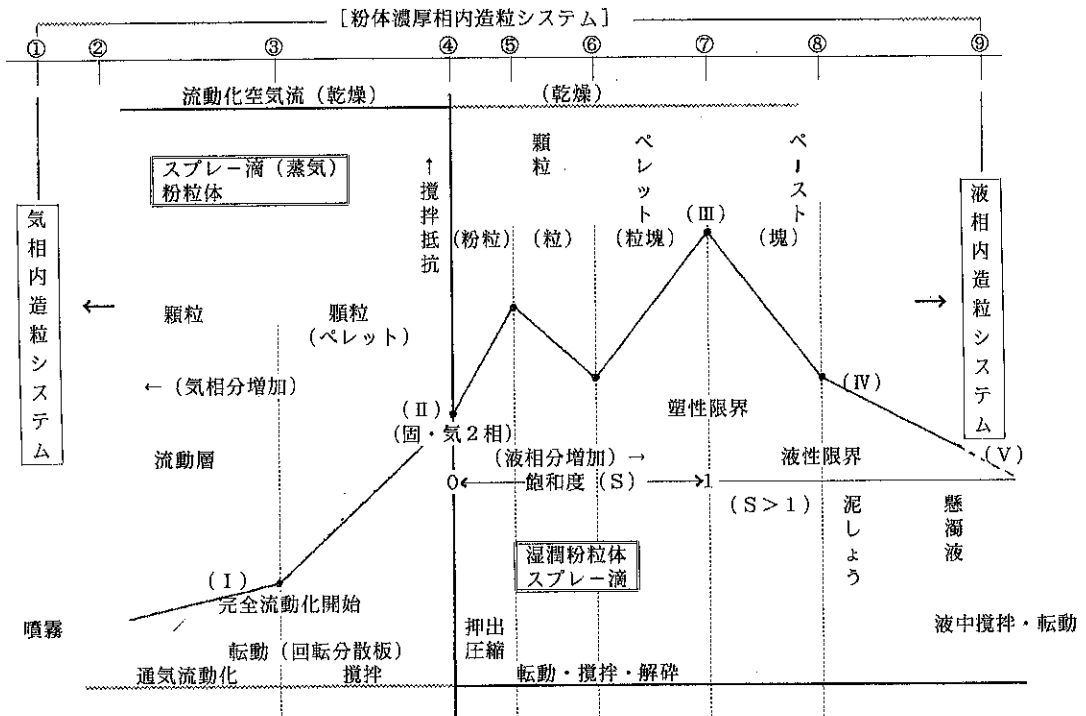


Fig. 6 粉体濃厚相(固液気系)の気相増分と液相増分における攪拌抵抗と凝集造粒現象を示す模式図

なされ²⁴⁾、Fig. 7 で示すように部分的な改良が進み、あるいは多様な造粒用途向けに拡大されている。これらの装置の特徴と見なされる機能的な部分は、総合的に分類す

ると、たとえば Fig. 8 のような要素から構成されている。この図はそれらを表わしているのか、どうかについて十分に検討したわけではないが、ほぼ重要な構成要素

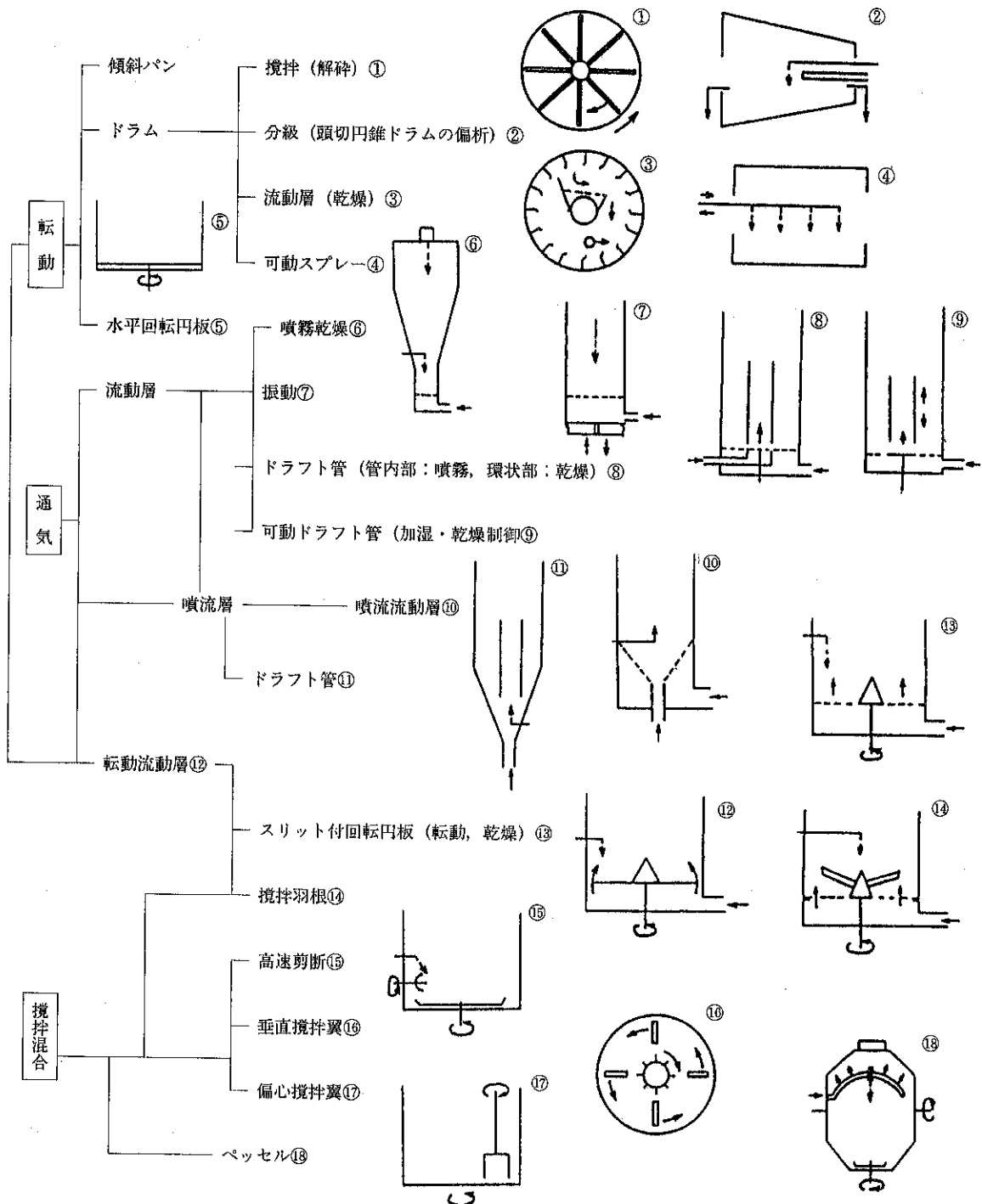


Fig. 7 回転、通気および攪拌混合をベースにして発展してきた各種造粒装置類の例

(ユニット)と思われる。これらの諸要素については、造粒の特徴である粒子間相互作用（粒子間力）を伴う粉粒体の挙動として取り扱われるため、さらに問題が難しくなる。このような基礎的な部分を要素としてみた場合、新しい造粒装置類は諸機能をもつ要素の組み合わせ、すなわち原料から最適な造粒品に至るまでの要素の合成システムとして取り扱うことが必要になってくるであろう。

以上のように装置類はますます複雑になっているが、それらの工学面での基礎的な展開は追いつけない現状である。しかし、今後の発展のためには、なるべく問題を単純化して基礎的な造粒現象を見極めることが肝要であり、つぎのような事項が基本となろう。(1)凝集造粒速度論、粒度分布論および最終到達（平衡）造粒物径、(2)回分操作および半回分操作（スプレー液滴添加、分級、飛散などを含む）における造粒収支式、(3)連続操作（完全流れ、押し出し流れ、非理想流れ）における造粒収支式。これらのうち、(1)はまず独自の展開で基礎論の構築が望ましく、それに(1)・(2)または(1)・(3)についてはいわゆるポピュレーションバランス法の展開となる。しかしなが

ら、最適な造粒品を得るには、粉体原料の調製と物性、さらにバインダー類の選定の物性から造粒装置特有の粒子群挙動、粒子付着、乾燥特性などを考慮し、それらの物性と操作の両面から多くの因子が介在する。したがって、先決的には多様な粉体とバインダーの組み合わせと、装置特有の造粒処理による(1)の事項の基礎的な解明を急ぐ必要があろう。すでに、湿潤粉体そのものの凝集現象(粒度分布則を統計力学的な導出²⁵⁾および核化凝集速度論²⁶⁾、転動成長速度論^{30,31)}、造粒可能領域の決定²⁷⁾、攪拌混合(固液気系)造粒過程^{22,23)}などの例があげられる。スプレー液滴→流動化粒子・凝集粒→顆粒のような造粒操作形式では、装置そのものの特性（ホールドアップ、滞留時間分布（混合）、その他の機構上の問題）を含め、動的状態での衝突頻度関数、付着確率、付着力などの個々の基礎的な取り扱いはかなり難しい現状である。したがって、これらに関しては種々の仮定のもとで population balance（質量・個数収支）のような解法^{28-31,38-40)}（一部の文献例）、あるいは機構的な主要因子（分級、流動化、乾燥、解砕などの付与機能）から展開する方法^{10),32-39)}のような例があげられる。しかし、基礎的な面ではまだ不

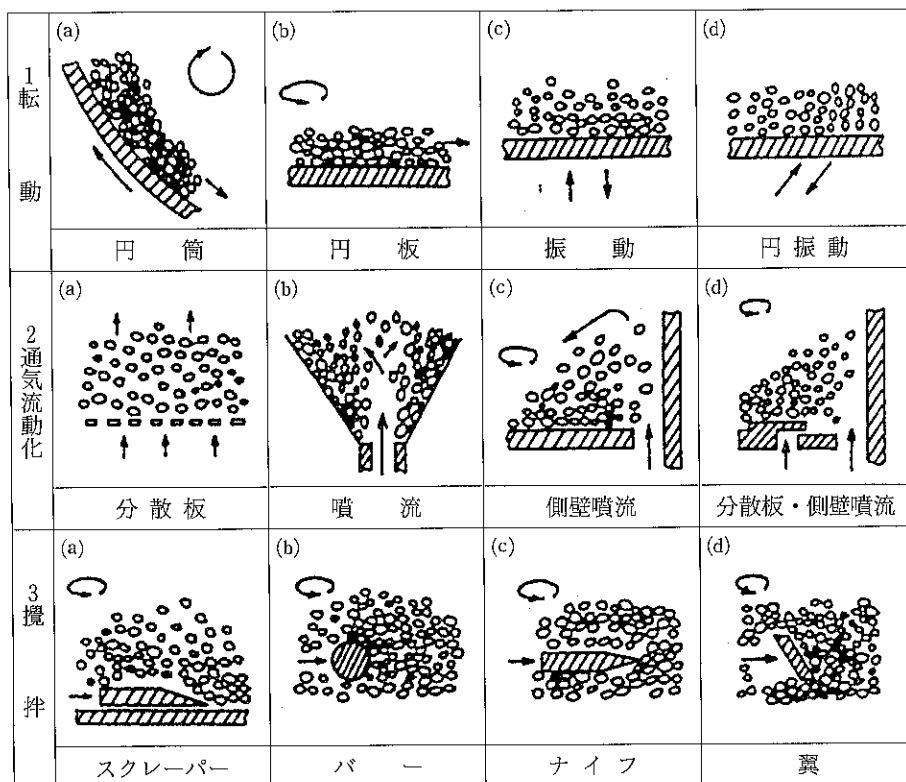


Fig. 8 凝集造粒やコーティング造粒用の各種装置内における粒子群の挙動に影響を与える基本的な機構

明なことが多く、現象を単純化した実験データの集積が必要のように思われる。例えば、衝突頻度は計算できるとして、ある造粒時間 θ に v から $v+dv$ の単一凝集粒体積の範囲に $n(v)dv$ 個が存在し、これが $\Delta\theta$ 後に α 割合に減少すれば、新規の粒径範囲の dv' では $n'(v')dv' = \alpha n(v)dv$ のようにし、特定の原料調整、操作条件などに対する造粒過程での α 値（粒径、時間依存性？）の挙動を調べるのも一つの方法である。なお、コーティング造粒については粒子間の合体がないため、装置工学的に見通しよく整理されている例^{20,41)}もある。

最後に、粉体の圧縮流動ともいえるべき操作形式（機械的加工）については、粒子群のマスから小成形体への変換を対象として(1)圧縮(圧密: compaction)、さらに(2)ダイ押出のような材料試験的な取り扱いが基礎となろう。(1)では一般に内部応力分布を無視して応力・歪の関係(静的)^{42,43)}、さらに打錠のように衝撃圧縮時における応力・歪・時間の関係(動的)のように分類される。ただし、ロール圧縮の例では、いわゆる塑性力学的に複雑な解析⁴⁴⁾が必要になる。要するに、粉体材料の原料調製と成形性の特徴を調べるには上記の静的試験が簡便であるが、装置上の問題、あるいは材料特有の応力緩和(弾性回復)、加工硬化などには圧縮速度(または歪速度: $\dot{\gamma}$)による影響が現れるため、応力・歪・時間の動的試験法^{45,46)}が欠かせない。特に応力緩和現象は粉体材料の成形にとって不向きであり、この現象が起きないような原料調製、あるいは静的な成形操作が多用される。(2)ではピストン・シリンダー形式でダイ押出を行ない、ダイ押出特性として流量-圧力損失の流動曲線、ダイ(ノズル、オリフィス)抵抗係数、降伏値などが求められている⁴⁷⁾。なお、種々の形状と構造からなるスクリー型でのバレル内輸送部の機構は一応、固体輸送論があるけれども、この種の取り扱いは可塑性湿潤粉体特有の乱雑構造のために現在のところ難解である。

5. あとがき

ここでは特定のテーマに絞らず、広い領域の造粒技術における装置・操作設計の基礎的な諸問題を取り扱った。しかしながら、個々の問題を掘り下げることは講演時間の関係から無理なため、概要の説明のみにとどまった。新版「造粒ハンドブック」(オーム社)がすでに出版されており、最近の造粒技術に関する情報は容易に入手しやすい状況である。造粒の応用面を含めた詳細についてはこのハンドブックを参照されたい。なお、本稿では講演資料を大幅に修正して、講演時での意図する部分を加筆した内容になっており、また文献は参考例のみをあげて

ある。悪しからずご了解願いたい。

参考文献

- 1) 関口 勲: 粉体と工業, **19**, 186 (1987)
- 2) 東畑平一郎, 関口 勲: 化学工学, **25**, 615 (1961)
- 3) Harkins, W. D. and F. E. Brown: J. Am. Chem. Soc., **41**, 499 (1919)
- 4) Rao, E. V. L. N., R. Kumar and N. R. Kuloor: Chem. Eng. Sci., **21**, 867 (1966)
- 5) 城塚 正, 川瀬義短: 化学工学論文集, **1**, 599 (1975)
- 6) Rayleigh, L.: Proc. London Math. Soc., **10**, 4 (1878)
- 7) Weber, C.: Z. Angew. Math. Mech., **11**, 136 (1931)
- 8) 遠藤一夫, 西村 肇: 化学工学, **22**, 533 (1958)
- 9) 山本一夫: 7 かくはんと混合, 藤田重文, 東畑平一郎編, 化学工学II, p.607, オーム社, 1976
- 10) Ranz, W. E. and W. R. Marshall: Chem. Eng. Progr., **40**, 141, 173 (1952)
- 11) Charlesworth, D. H. and W. R. Marshall: A. I. Ch. E. J., **6**, 9 (1960)
- 12) 三浦邦夫, 大内 功, 新谷浩介, 太谷茂盛: 化学工学, **6**, 643 (1971)
- 13) 坂 高芳: 化学工学論文集, **4**, 515 (1978)
- 14) 佐野雄二, 西川新三: 化学工学, **29**, 294 (1965)
- 15) Kerkhof P. J. A. M.: A quantitative study of the effect of process variables on the retention of volatile trace components in drying, 学位論文 (Technische Hogeschool Eindhovenにて指導教授: H. A. C. Thijssen), 1975
- 16) 東畑平一郎, 関口 勲, 鈴木秀二: 化学工学, **32**, 50 (1968)
- 17) 中原佳子, 宮田謙一: 大阪工業技術試験所報告, 第357号, 「界面反応法による粉体の調製とその界面化学に関する研究」(1980)
- 18) 梅屋 薫, 関口 勲: 化学工学, **37**, 704 (1973)
- 19) 辻本広行, 関口 勲: 粉体工学会, 秋期研究発表会講演要集, P71 (1993)
- 20) 安部英一, 広末英晴, 菊池 弘: 粉体工学会誌, **22**, 278 (1985)
- 21) 鹿毛浩之, 吉田孝之, 松井裕美, 松野儀三: 粉体工学会誌, **29**, 422 (1992)
- 22) 寺下敬次郎, 安木正男, 宮南 啓: 薬学雑誌, **105**, 1166 (1985)
- 23) Terashita, K., W. Watano, and K. Miyayami:

- Chem. Pharm. Bull., **38**, 3120 (1990)
- 24) 関口 勲：粉体と工業，**23**，27 (1991)
- 25) 関口 勲，東畑平一郎：化学工学，**32**，1012(1968)
- 26) 梅屋 薫，関口 勲：材料，**24**，664 (1975)
- 27) 関口 勲，太田喜之：粉体工学会誌，**28**，234(1991)
- 28) 原田和夫，藤田仁四郎，吉村 証：化学工学，**33**，79 (1969)
- 29) 原田和夫，藤田仁四郎，吉村 証：化学工学，**34**，102 (1970)
- 30) Ouchiya, N. and T. Tanaka : Ind. Chem. Eng., Proc. Des. Dev., **21**, 29 (1982)
- 31) Ouchiya, N. and T. Tanaka : Ind. Chem. Eng., Proc. Des. Dev., **20**, 340 (1981)
- 32) 杉本益規，川上隆司，中村恵威：材料，**31**，888(1984)
- 33) 杉本益規，川上隆司：化学工学論文集，**8**，530(1982)
- 34) 杉本益規，川上隆司，中村恵威：材料，**33**，1135(1984)
- 35) Watano, S. K. Terashita and K. Miyanami : Chem. Pharm. Bull., **39**, 1013 (1991)
- 36) Watano, S. K. Terashita and K. Miyanami : Chem. Pharm. Bull., **40**, 269 (1992)
- 37) Tardos, G. D. Mazzone and R. Pfeffer : Can. J. Chem. Eng., **63**, 377 (1985)
- 38) Huang, C. C. and H. O. Kono : Powder Techn., **55**, 35 (1988)
- 39) Kapur, P. C. : Chem. Eng. Sci., **27**, 1863 (1972)
- 40) Levenspiel, O., D. Kunii and T. Fitzgerald : Powder Techn., **2**, 87 (1968)
- 41) 安部英一，広末英晴弘：粉体工学会誌，**23**，319(1986)
- 42) Sekiguchi, I., K. Kiyama and H. Tohata : J. Chem. Eng., **5**, 167 (1972)
- 43) 梅屋 薫，関口 勲：材料，**24**，608 (1975)
- 44) 村上健吉：高分子化学，**17**，571 (1960)
- 45) 森本吉春，林 卓夫：材料，**28**，471 (1979)
- 46) 梅屋 薫，原 隆一，吉田達郎，加藤義徳：材料，**21**，582 (1972)
- 47) 神保元二，岩本文男，細矢正好，杉山保次郎，森芳郎：化学工学，**36**，654 (1972)

特許一言メモ No. 144

— P L 保険販売強化，損保各社 —

損害保険会社は95年度にも製造物責任 (Product liability) 制度が導入される見通しになったため，生産物賠償責任保険 (P L 保険) の販売体制を強化している。

三井海上火災保険は昨年12月にプロジェクトチームを発足させ代理店への情報提供などの協力体制を敷いた。安田火災海上保険はビデオを作成，販売促進の材料としている。「法律が施行になれば，数年内に P L 保険の市場規模が倍増する」(大手損保)との見方もあり，各社とも P L 法に関するセミナーを頻繁に開催し，潜在的な顧客を「囲い込む」動きも目立ってきた。

P L 保険の取り扱いが始まったのは57年と古いが，今まで輸出企業向けが主力だった。「(P L 訴訟が頻発する) 米国などの輸入業者は保険をかけていない製品を受け取らない」(三井海上) ことなどのため，

しかし，日本にも P L 制度が導入される見通しとなっ

たことで，訴訟が増える可能性が出てきた。また「裁判にならなくても企業が損害に応じざるを得ないケースは増加する」と各損保は見ている。P L 導入の機運が高まった91年以降，P L 保険は「前年比7～9%程度の伸びを維持している」(安田火災)が，法律の施行で一段と弾みがつくことを期待しており，各社とも販売体制を整備している。

P L セミナーも盛況。「小規模のものを含めれば月20件以上」といった損保もある。特に欧米に製品を輸出し P L 法への対応に慣れている大企業はともかく中小企業の危機感強いという。また損保各社はこうしたセミナーを通じて，P L 保険以外の保険を売り込むきっかけにする狙いもある。

(日経 6. 3. 15より抜粋)

(特許言)

湿式（液中）造粒による粒子設計

川島 嘉明*
Yoshiaki Kawashima

1. 緒 言

液中造粒法は液中に分散した粒子を系外に取り出すことなく、直接造粒する操作である。そのため、通常（空气中での）造粒操作と異なり、単に造粒だけでなく、他の操作を同時に行なう、複合操作や新しい粒子設計法として活用できる。いわば、ハイテク時代に呼応した、新しい粉体技術の一つといえる。

粒子設計とは、粒子の新しい一次物性を創製したり、制御することにより、目的とする粒子の二次物性（粉体物性）を設計（機能化）することである。それにより、1）粉体操作の効率化と、新しい粉体処理システムの構築、2）粉体製品に、高次の付加価値（高機能）を賦与することができる。

前者の例として、分離困難なコロイド様粒子の液中造粒は、固液分離操作を飛躍的に改善し、濾過、脱水操作を容易にする。多成分分散系のサスペンションにおいて、特定の粒子だけを造粒（選択造粒）することにより、固体粒子の抽出や精選法、リサイクル法として活用できる。晶析や反応操作により生じる結晶を同時に造粒（晶析造粒）することにより一連の後処理操作を省略することができ、省エネタイプの新システムを構築できる。

後者の例として、晶析造粒法は晶析及び造粒条件により、粒子の一次物性と二次物性を同時に制御できるので、新しい物性や機能を創製するのに都合が良い。晶析造粒系に、高分子を共存させることにより、複合（コンポジット）化粒子を製造することができる。これを利用して、著者等は新しい薬物送達システム（DDS）を開発した。

この様な、粒子設計法としての“液中造粒法”を、基礎と応用の両面から解説する。

2. 液中における粒子の凝集機構と造粒

液中造粒法は、液中における粒子の凝集現象を利用したものである。初めに、粒子の凝集と造粒機構について概説する。

懸濁液中の粒子の凝集法は4大別される。(1)電解質の添加、(2)イオン性界面活性剤の添加、(3)高分子凝集剤の添加、(4)液体架橋剤の添加である。

(1) 電解質の添加による粒子の凝集、分散の制御

多くのコロイド粒子は粒子表面自身の解離や媒体中のイオンの吸着により荷電しており、そのため粒子のまわりには対イオンが集まり電気二重層が形成される。電解質の添加は、この電気二重層の厚みを薄くし、反発作用の及ぶ範囲（距離）を狭める。そのため、粒子間に普遍的に働く分子間力（van der Waals 力）が及ぶ距離にまで粒子どうしが近づくことができ、凝集しやすくなる。この定量的な取扱いはDLVO理論として知られ、北原¹⁾やLyklema²⁾などの優れた総説がある。親水性コロイド粒子表面には、水和層が形成され、粒子の凝集を妨げている。電解質の添加は、水和層の破壊（脱水）をも行う。これを塩析作用という。

(2) 荷電粒子表面への、対荷電物質（たとえば、イオン性界面活性剤やイオン）の吸着

粒子の電荷が中和され減少する。その結果粒子表面のStern電位が低下し、静電的反発力が弱まる。イオン性界面活性剤の吸着は親水性基部で起こる。そのため、界面活性剤の疎水性部位の疎水的相互作用が働き凝集しやすくなる。

(3) 粒子表面への高分子の吸着

粒子の電荷の中和、粒子間架橋が生じる。粒子間的高分子架橋は、高分子の吸着量に依存する。粒子表面が高分子で完全に覆われると、粒子が接近したときに高分子吸着層が重なり合い、浸透圧の増大と

* 岐阜薬科大学製剤学教室

(〒502 岐阜市三田洞東5-6-1)

Tel. (0582) 37-3931

エントロピーの減少をもたらす。そのため反発作用が生じる。これが、高分子の保護作用であり、懸濁液の安定化（分散）に役立つ。高分子の吸着量が少なく、吸着サイトが残っている場合には、高分子が粒子間にまたがって吸着する機会があり、高分子架橋により粒子は凝集する。これが高分子の増感作用である。

- (4) 懸濁粒子が分散媒に対し疎液性の場合、分散媒中の粒子に対し親和性を有する少量の液体（たとえば、非水懸濁液中に水分）が混入すると、粒子の分散安定性は低下する。分散粒子に、親和性の液体が選択的に吸着し粒子間に液体架橋が形成され、粒子が凝集するからである。液体架橋による粒子間凝集力は、界面張力と毛管負圧により発生する。接触球形粒子間に形成された液体架橋により粒子間引力(F)は Fisher⁹⁾によって式(1)で表された。第1項が界面張力、第2項が毛管負圧に起因する力である。

$$F = 2\pi\gamma\sigma\sin\psi\sin(\psi+\theta) + \Delta p\pi r^2\sin^2\psi \quad (1)$$

ここに、 r ：粒子半径、 σ ：界面張力、 ψ および θ ：

Fig. 1 に示す角度。

分散媒中に添加される、粒子親和性の液体を、液体架橋剤と呼ぶことにする。

以上の凝集機構のうち、液中造粒法に利用されているのは、主として(3)、(4)の方法である。電解質やイオン性界面活性剤の添加により生じる凝集物は、かさ高で機械的強度が弱く、凝集物から造粒物への移行は難しい。しかし、東谷ら⁴⁾により、電解質による静電的凝集法を利用した、シード凝集法が開発さ

れた。高分子凝集剤を添加し(3)の方法で粒子を造粒する方法を団塊凝集法、(4)の液体架橋剤を利用した造粒法を湿式球形造粒法と呼んでいる。

最近、溶質の濃厚相分離液滴（一種のコアセルベート滴）が固化する機構も見いだされた（球形晶析法の項参照）。これらの粒子の凝集機構と造粒との関係を Table 1 にまとめた。

3. 高分子凝集剤添加法

- (1) 団塊凝集法の基礎 高分子架橋により生じた凝集物を造粒物に変化させることができることを初めて見いだしたのは、遊佐^{5),6)}である。遊佐は水素カオリナイト (0.67μ) の水性懸濁液（濃度1.63 v %）に、凝集剤として部分加水分解ポリアクリルアミド (4.44mg/カオリナイト 1 g) を添加して系を強振とうると、時間とともに沈降体積、沈降速度がと

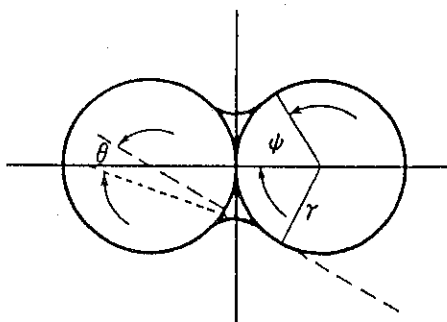


Fig. 1 粒子の凝集機構と液中造粒

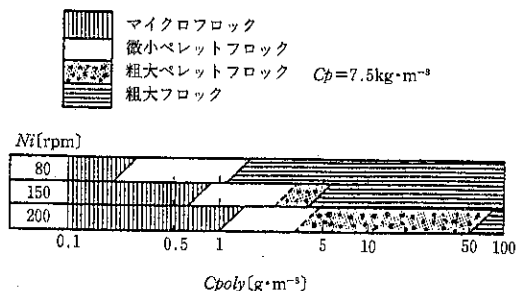
Table 1 接触球形粒子間の液体架橋⁹⁾

凝 集 剤	化 合 物 名	凝 集 機 構	造 粒 作 用
電解質	NaCl, BaCl ₂ , AlCl ₃ など	電気二重層の圧縮	・ 高分子凝集剤と併用して相乗作用あり ・ シード凝集法
界面活性剤 (イオン性)	アニオン性 オレイン酸ナトリウムなど カチオン性 ドデシルアミン塩酸塩など	Stern 電位の低下 電荷親水層の破壊 (疎水的相互作用)	・ 湿式球形造粒の前処理 ・ 界面活性剤としての湿式球形造粒に対する制御機能
高分子凝集剤	ポリアミン ポリアクリルアミド ポリアクリル酸など	Stern 電位の低下 高分子架橋	・ 団塊凝集法
液体架橋剤	有機溶媒 ベンゼン, ケロシンなど 電解質水溶液 NaCl, CaCl ₂	液体架橋	・ 湿式球形造粒 ・ 球形晶析法 (晶析造粒法)

もに減少するが、容器をゆるやかに回転させて、懸濁液を規則的に混合すると、沈降体積は減少するが、沈降速度が増大することを見いだした。後者の実験は、凝集物（フロック）は、機械的なエネルギーの与え方により、破壊より圧密化のほうが優先して起こることを示している。遊佐は、凝集物に統計的には一様であるが局部的に不均一な機械的外力を加えると、凝集物内の分散液が滲出し、凝集物は収縮し圧密化すると考え、この過程を“機械的シネレシス”と名づけた。さらに従来の粒子の凝集理論に、この機械的シネレシスを組み込んだ、pelleting flocculation（団塊凝集）モデルを提案した（Fig. 2）⁷⁾。このモデルは、A：熱運動凝集、B：流動搬送凝集、C：機械的シネレシスの3要素からなる。Aは熱運動によりマイクロフロックが形成される要素、Bはこのマイクロフロックや疎大粒子（ $> 1 \mu\text{m}$ ）が流体の運動により会合・凝集する要素である。これらの過程が直列的に組み合わせられて凝集物の緻密化が、並列的に起こると付着が生じる。凝集物の圧密化と付着が繰り返されると、層状構造の onion like structure を有する造粒物が形成される。小林⁸⁾らはカオリン懸濁液にノニオン性凝集剤を添加して団塊凝集実験をした。このとき懸濁液に一定間隔で染料を加えると、生成したペレットの断面に染料の年輪構造が形成されることを見だし、並列モデルを実証した。

東谷ら^{9),10)}はその後、カオリン（ $\approx 5 \mu\text{m}$ ）-硫酸ア

ルミニウムやポリアクリルアミドおよびポリスチレンラテックス（ $0.1 \sim 1.80 \mu\text{m}$ ）-カチオン性のアクリレート・アクリルアミド共重合体の系を用いて、団塊凝集法の精密な実験を実施した。その結果フロックは、ポリマー濃度、懸濁粒子濃度、系の攪拌速度などの因子によって四つの形態に大別できることを見いだした。すなわち、(1)マイクロフロック（ $\approx \mu\text{m}$ ）、(2)微小ペレットフロック（ $\approx \text{mm}$ ）、(3)粗大ペレットフロック（ $\approx \text{cm}$ ）、(4)粗大フロック（ $\approx \text{mm, cm}$ ）である。Fig. 3⁹⁾に、カオリンフロックの場合について示す。粗大ペレットフロックは沈降速度が最も早い、微小ペレットフロックは、固・液分離（ろ過）およびそれにより生じるケーキの乾燥を併せた総脱水操作が最も容易である。



C_p : 粒子濃度 N : 攪拌速度 C_{poly} : ポリマー濃度
Fig. 3 団塊凝集法により得られるフロック、造粒物⁹⁾

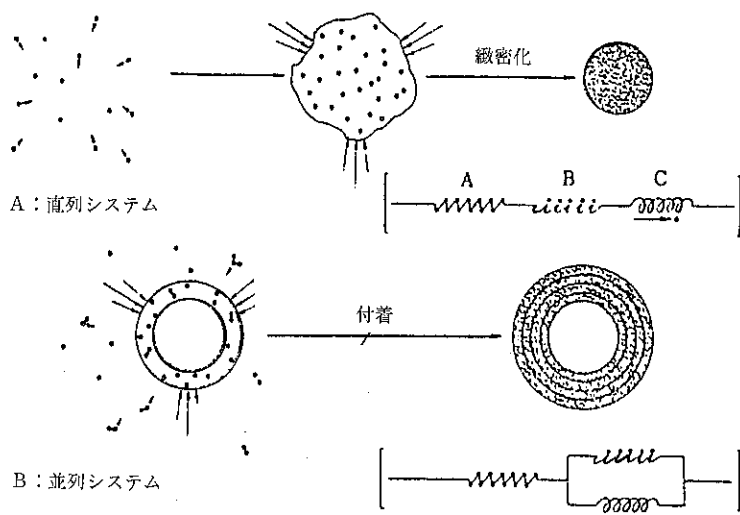


Fig. 2 団塊凝集法のモデル⁷⁾

(2) 団塊凝集法の応用 本法が最も実績をあげている応用操作は水処理(固・液分離)操作である。上水・下水・工業廃水のスラッジ処理、排水の清澄化、ヘドロ処理などで大型の実装置が稼動している。造粒機は、縦型と横型とに分類される¹⁰⁾。

Fig. 4 (a)¹¹⁾に、本法を利用した砂利排水汚泥処理プラントのフローシートを示す。

横型造粒装置(デハイドラム®) [Fig. 4 (b)] は主にスラッジの脱水に用いられる。

4. 液体架橋剤添加法

(1) 湿式球形造粒法の基礎

湿式球形造粒における粒子間の凝集力は既に述べたように、粒子間に形成される液体架橋(レンズ)による、毛管力と界面張力である。したがってこれらの力に影響を及ぼす因子がそのまま造粒挙動を決める因子となる。その主な因子をあげると(1)液体架橋剤量、(2)液体架橋剤の物性(界面張力、接触角)、(3)被造粒粒子の粒度、(4)攪拌速度などである。

(a) 液体架橋剤量 液体架橋剤量は、粒子間にトラップされる液体レンズの体積に直接関係する。この体積は Fig. 1 に示される充填角 (filling angle)

の関数である。実用的には、添加された液体架橋剤 (V_{BL}) が凝集物の粒子間隙 (V_{VOID}) を占める割合、すなわち飽和度 (R_f) で表すとわかりやすい。

$$R_f = V_{BL} / V_{VOID} \quad (2)$$

R_f は、凝集粒子内部の液体架橋剤の充填状態を表す。 V_{VOID} は一般的に原料粒子の空気中のタッピング充填層中の空隙で近似している。

R_f と粒子の凝集・造粒状態との関係を Fig. 5¹²⁾ の相図で表す。液体架橋剤の添加量が少なく、 $R_f < 0.2$ のときは液体架橋剤の充填状態は penular 状態にあり、かさ高なブロック(凝集物)が形成される。そのため沈降体積が増大する。funicular 領域まで添加されると、沈降体積が極大を経て、減少し始める。これは、ブロックどうしが合一して緻密なマイクロベレットを形成し始めるからである。 $R_f \approx 0.6$ でブロックはすべてベレットとなり capillary 領域 ($R_f \approx 1.0$) に近づくと、ベレットどうしがさらに合一して、粒子径の大きな、高密度な造粒物になる。

(b) 液体架橋剤の物性 液体架橋剤の物性のうち、粒子に対する接触角 (θ) と、分散媒との界面張力

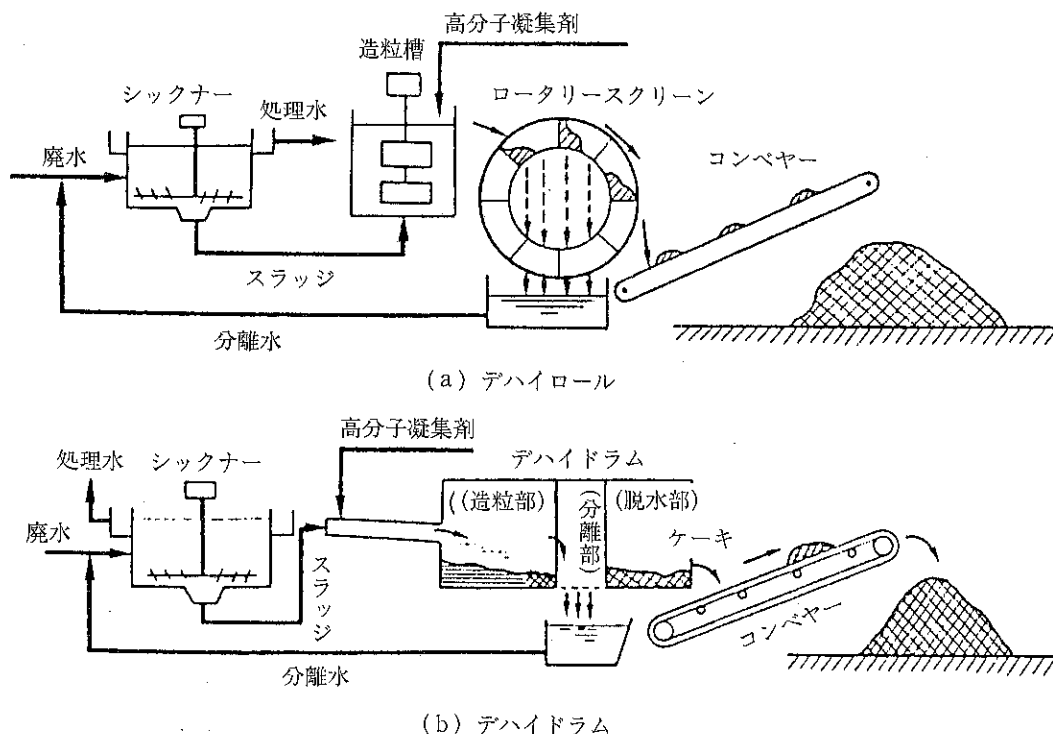


Fig. 4 砂利排水汚泥処理プラント¹¹⁾

(γ)は、直接粒子間凝集力に関係するので重要である¹³⁾。液体架橋剤の粘度も考慮に入れる必要がある。粘度は液体架橋剤の分散媒中での分散性に影響するからである¹⁴⁾。液体架橋剤は接触角が低く、濡れやすいほど粒子を凝集しやすい。液中での接触角の(θ_{0w})の測定が实际的であるが、条件設定が比較的難しい。空気中での物性値を利用しBartell-Osterhofの関係式(3)を利用して、推算する方法が簡便である¹⁵⁾。

$$\gamma_{0w} \cdot \cos \theta_{0w} = \gamma_w \cdot \cos \theta_w - \gamma_0 \cdot \cos \theta_0 \quad (3)$$

ここに、 γ_{0w} ：液体架橋剤／分散媒間界面張力、 $\gamma_w \cdot \gamma_0$ ：液体架橋剤または分散媒の表面張力、 θ_w 、 θ_0 ：液体架橋剤または分散媒の接触角。

- (c) 原料粒子の粒度 粒子径(d)が小さな粒子ほど造粒物の粒径は増大する¹⁶⁾。液体架橋剤の添加量が同じ場合、原料粒子径が小さなものほど、造粒操作時圧密化を受けやすく、造粒物の空隙率が小さくなる。そのため、 R_t が増大し造粒されやすくなるのであろう。この造粒物の圧密化過程は、修正川北式(4)¹⁷⁾で表された。

$$N/C = 1/ab + N/a \quad (4)$$

ただし、 $C = (\epsilon_0 - \epsilon) / (1 - \epsilon)$ 、 N は系内に加えられる仕事、 ϵ は造粒物の空隙率、 a 、 b は定数である。

原料粉体が2成分のとき、成分間の粒度差が大きくなるほど圧密化されやすい。造粒物の圧密化は造粒物中の大粒子の間隙が小粒子によってちょうど埋められるときに最大となる。したがって2成分の組成割合をこれに合わせると造粒効果は最大となる。

- (d) 攪拌速度 攪拌速度が速いほど、造粒物にかかる遠心力が増大するので、造粒物どうし、造粒物と器壁との衝突時に強い衝撃がかかる。すなわち式(4)における N が増大する。造粒物は圧密化を受けやすくなり、 R_t が増大する。したがって造粒しやすくなる。粒子間の衝突頻度も増大するので造粒速度は速くなる¹⁸⁾。しかし生成した造粒物は破壊されやすくなるので、造粒物の粒度は小さくなる。攪拌機の種類や攪拌模式も重要である¹⁹⁾。これをFig. 5に併せて示した。

- (2) 湿式球形造粒法の応用 湿式球形造粒法は、分散媒によって、水中造粒と、非水溶媒中造粒とに二大別される。

水中造粒の応用で最も実績をあげている応用例は微粉炭の造粒であろう。このプロセスは、“oil agglomeration”と呼ばれている。微粉炭の造粒が企業的に成り立つかどうかのキーポイントは(1)造粒物の回収率、(2)造粒物中の不純物含量(灰、硫化物)、(3)造粒物中の水分含量、(4)造粒に使用されるオイルのコスト(種類、使用量)である。

Capes²⁰⁾らはこれらのオイルの特性を生かした、2段階造粒法による、COM (coal oil mixture) 用石炭の造粒プロセスを開発した(Fig. 6)。この方法で得られる石炭は水分<10%、アッシュ<10%、イオウ<4%の品質を有し、重油に直接分散させることができる。現在日本で実用化が進められている応用は、紙パルプや化学工業などでボイラー燃料として使用されている、石油コークスの燃焼灰の処理であろう²¹⁾。この燃焼灰は、未燃焼カーボンとバナジウムなどの稀少金属を含む灰分の混合物である。未燃

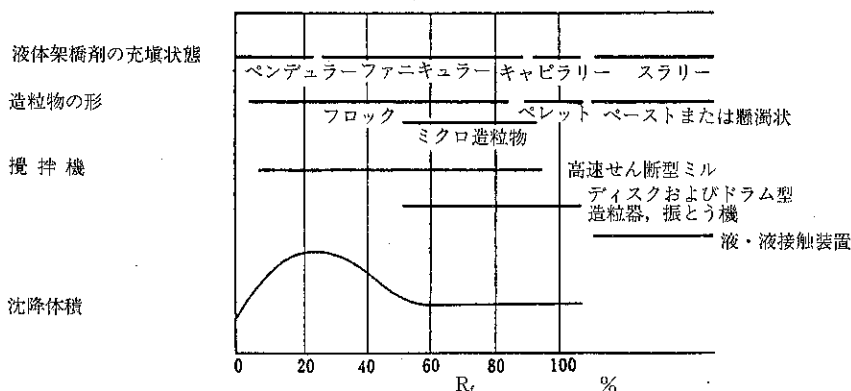


Fig. 5 液体架橋剤との置換率 (R_t) %と単一粒子の造粒の相図¹²⁾

焼カーボンペレットとして回収し、分離した灰分からさらに稀少金属を回収するという、高度な複合操作をめざしたものである。液体架橋剤として、C重油を用い、直径1～2mmのペレットとして未燃カーボンが回収されている。造粒機は、微粉炭やオイ

ルのガス化プラントで発生する廃水中の煤のペレット化のために、シェルグループが開発した、S. P. S. (Shell Pelletising Separator)^{22,23)}を基礎にして改良されたものである (Fig. 7)。

著者ら^{24),25)}は、薬剤粉末のワックスマトリックス

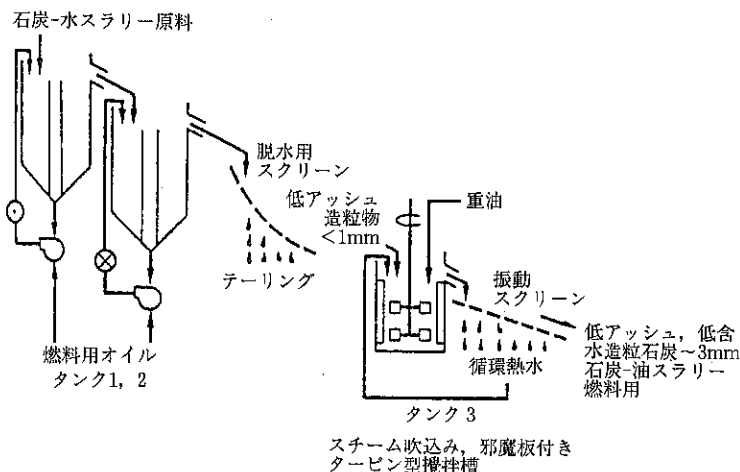


Fig. 6 石炭-油スラリー燃料 (COM) の製造のための球形造粒法による石炭の精製パイロットプラント²⁰⁾

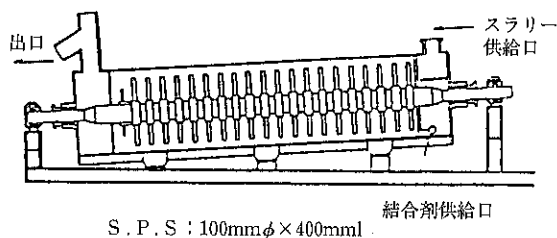
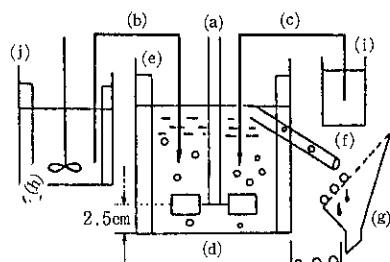


Fig. 7 SPS によるボイラEP灰の再生利用²¹⁾

化を CMSMPR 造粒器 (Fig. 8) を使用して行った。サルファ剤の水性懸濁液に、固形ワックス (m. p. 60~70°C) を添加後系を加温しワックスを溶融させ、これを液体架橋剤として造粒する (溶融法) 方法である。系を冷却すれば球状のワックスマトリックスが得られる。ワックスの揮発性有機溶液を液体架橋剤として使用し造粒後、温和な条件で有機溶媒を蒸発させる方法 (溶液法) もある。本法は従来法 (溶融冷却法、噴霧冷却法) に比べ、装置や操作が極めて簡便である。親水性粒子を水中で造粒するためには、粒子表面を疎水化処理する必要がある。表面処理剤と液体架橋剤の添加順序や添加方法と造粒挙動との関係が、高森²⁶⁾や著者ら²⁷⁾によって詳細に検討されている。

非水溶液中の造粒の応用例としては、バリウムフ



- (a) タービン型攪拌機
- (b) サスペンションの供給パイプ
- (c) 液体架橋剤の供給パイプ
- (d) ポリエチレン円筒型造粒器
- (e) 邪魔板
- (f) オーバーフローパイプ
- (g) フィルター
- (h) サスペンション用タンク
- (i) 液体架橋剤用タンク
- (j) 邪魔板

Fig. 8 CMSMPR 造粒器²⁴⁾

ェライトやボールペン用のタングステンカーバイトなどの高融点物質の微小真珠の製造がある²⁸⁾。ほかに注目されているものとして、タールサンドからのオイル (ピチューメン) 抽出がある。Sparks ら²⁹⁾はタールサンドからのピチューメンの分離効率の高い溶融抽出法と造粒法を組み合わせた新しい抽出法を開発した (Fig. 9)。この造粒分離機は、抽出、造粒、洗浄の三つの機能を併せもっている。抽出部では、タールサンドを粉碎してピチューメンを抽出し、クレーの予備造粒をする。造粒部でより緻密なクレーの造粒物がつくられ、洗浄部では、造粒物表面に残留しているピチューメンを新しい溶媒で洗浄し回収している。抽出溶媒とクレーの移動方向は互いに逆 (向流) であるので、ピチューメンの抽出効率が極めて高く、テーリング処理も同時になされる。

ファインセラミックス、染料、化粧品、医薬品等の粉体の機能化法として、超微粉碎 (サブミクロン化) が注目されている。その一つとして、高速媒体攪拌ミルが利用されている。最近媒体用ビーズとして、セラミックスを原料とした、直径0.3mm以下の球形微小ビーズの要求が高まっている。然しながら従来の造粒技術ではこの様な微小ビーズを製造することは困難で、新しい造粒法の開発が望まれていた。中村等³⁰⁾は、ジルコニア (平均粒子径0.47 μ m) をパラフィン系炭化水素中で、水を液体架橋剤として液中造粒し、平均粒子径が62~310 μ mの種々の球状ビーズを製している。Fig.10に実験で使用された造粒攪拌槽 (3 ℓ) を示す。量産機 (数100 ℓ) による製造も可能になった。これらのビーズを用いて、平均径2.2 μ mのセラミックス粉体が0.4 μ mにまで粉碎された。

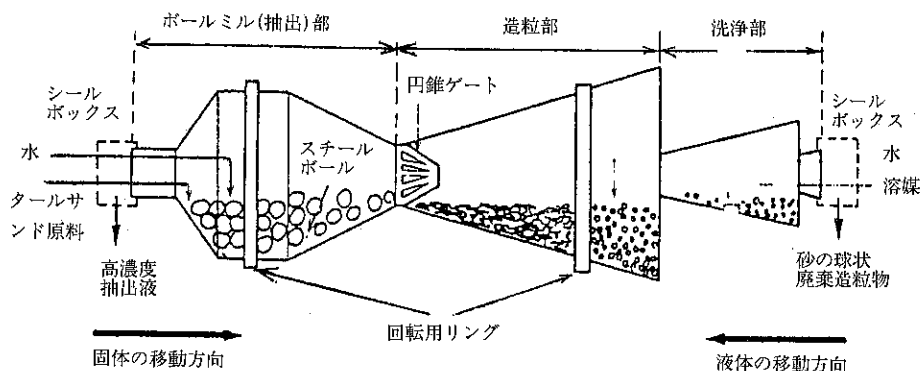
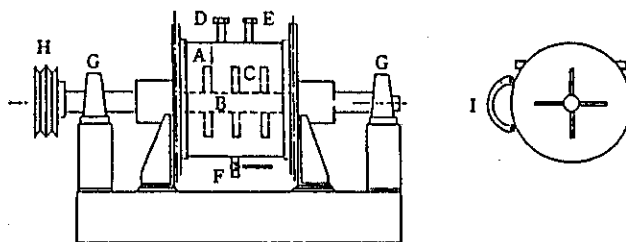


Fig. 9 タールサンドからのピチューメンの抽出と分離装置²⁹⁾



A: 造粒搅拌槽 (水冷ジャケット付き)
B: 搅拌槽
C: 搅拌翼
D: 試料粉体, 媒体液, 架橋液体供給口
E: 温度センサー取付け口
F: 取り出し口
G: 軸受
H: プーリ
I: 透明チューブ

Fig.10 小型造粒機³⁰⁾

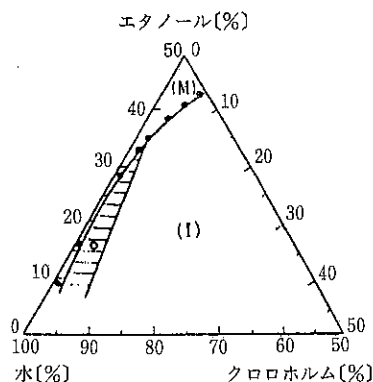
5. 球形晶析法

(1) 球形晶析法の基礎 球形晶析法は、晶析操作中に析出する結晶を球状に造粒し、ろ過、乾燥など粉体操作を効率化すると同時に、粉体製品に望ましい機能を付与するための新しい粒子設計法として開発されたものである。析出した結晶粒子の凝集機構は、(1)混合溶媒系での相分離により遊離した溶媒による造粒、(2)相分離した飽和溶質溶液滴の固化、に大別される。

(1)の方法は原理的には湿式球形造粒法と同じである。例としてサリチル酸の球形晶析造粒について説明する。晶析溶媒として、エタノール/クロロホルム/水の3成分混合溶媒を選ぶ。このとき組成割合によって Fig.11 に示すように3成分が自由に混和する場合(領域M)と溶媒の一部が遊離する場合(領域I)がある。斜線で示される領域では少量のクロロホルム相が遊離する。このような系でサリチル酸を晶析させると、析出した結晶は、クロロホルムによって架橋凝集し、球形に造粒されるのである。サリチル酸のような針状晶も球状物として得られることから、本法に球形晶析法 (spherical crystallization technique) と命名した^{31),32)}。

晶析造粒に影響を及ぼす因子には、晶析溶媒の組成、搅拌速度、温度などがある。晶析溶媒の組成は、晶析造粒物の形状、粒度、濡れなどの表面物性に影響を及ぼす。温度や搅拌速度は、晶析造粒物の粒度や造粒速度を決定する³³⁾。

(2)の方法は、溶質の飽和溶液が晶析溶媒より一時的に相分離し液滴を形成し、液滴内に晶析が生じ球状に固化する現象を利用している³⁴⁾。イブプロフェンやある種の抗菌剤は、本法により球形晶析造粒さ



実線より上部の領域 (M) ではクロロホルムは可溶、下部領域 (I) では不溶、斜線部で球形晶析が可能

Fig.11 クロロホルムのエタノール・水混合物への溶解相図³¹⁾

れる。抗菌剤の球形晶析造粒の相図を Fig.12 に示す。抗菌剤の水飽和溶液 (80°C) を酢酸エチル (0~70°C) 中に注ぎ込むと、互いに2成分が混和する混和系内で、薬物の飽和水溶液の液滴が形成される。滴外に水が、滴内に酢酸エチルが相互拡散し、晶析が生じる。滴内に残留する微量水分が液体架橋剤の働きをするものと思われる。この造粒方法に“emulsion solvent diffusion technique”と命名した³⁵⁾。本法の特徴は、造粒物の粒子径が、造粒初期に形成される液滴の大きさによって決まる点であり、(1)の方法と著しく異なる。本法に影響を及ぼす因子は、溶媒組成、温度、搅拌速度などである。溶媒組成と温度は造粒物の結晶形、形状、粒度、密度などに影響を及ぼす。Fig.12 に造粒物の形状を併せて示す。搅拌速度は液滴の粒度、すなわち造粒物の粒度を決め

(2) 球形晶析法の応用 球形晶析法の応用は、粉体処理操作の効率化と、粉体製品の機能化をめざした粒子設計に大別できる。

後者の応用例としては、直接打錠用の造粒結晶の

製造，新しい薬物放出制御能を有する DDS (薬物送達システム) の製造などである。“emulsion solvent diffusion technique” の例で先に示した抗菌剤は，非常に圧縮成形性が悪い。しかるに，本法で晶析造粒したものは，極めて圧縮成形性に優れ，直接打錠が可能であることが示された³⁵⁾。球形晶析造粒系に高分子を共存させると，薬物分子と高分子が共沈して，球状のマトリックス体が得られることが見いだされた。たとえば，イブプロフェンとアクリル酸系のポリマー (Eudragit® RS, S, L など) のエタノール溶液を攪拌下水中に滴下すると，相分離状のエタノール液滴を経て，薬物分子が高分子内に分散したマイクロスフェアが得られる。通常のマイクロカプセルと異なり，スポンジ状の内部構造を有するので，圧縮などの製剤加工に耐え，薬物をマトリックス型の拡散機構で制御放出する。このマイクロスポンジを利用して 1 日 2 回投与の新しいサスペンション型のコントロールリリース製剤を開発した。このサスペンションは 6 か月以上の保存にも全く沈降せず，極めて流動性に優れている。本剤形は服薬遵守 (patient compliance) の向上にも役立つと思われる³⁶⁾。最近デバイス内が中空になったマイクロバルーン型 DDS の開発にも成功した³⁹⁾。

本法は、懸濁粒子界面に形成される電気二重層の圧縮に基づく、粒子の凝集現象を利用した初めての造粒法として極めて興味深い。この原理を利用した従来の懸濁液

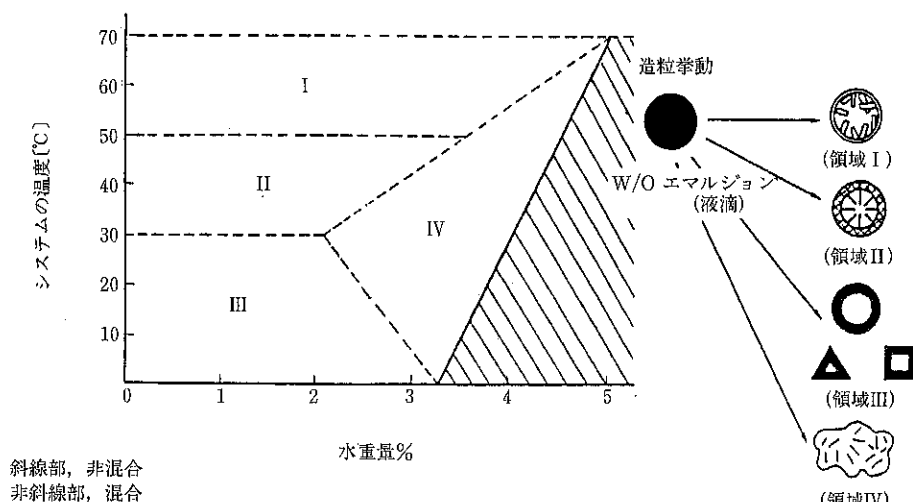


Fig.12 酢酸エチル—水系の晶析造粒相図³⁵⁾

の凝集操作は比較的低濃度の電解質を分散媒に均一に添加する方法がとられていた。しかるに東谷⁴⁰⁾らは、比較的高濃度の懸濁液に電解質の高濃度溶液を滴下するか、固体粒子（シード粒子）を直接添加すると液滴や粒子のまわりで懸濁粒子が選択的に凝集することを発見した。懸濁粒子としてポリスチレンラテックス（ $0.3\mu\text{m}$ ）を、シード粒子として NaCl , CaCl_2 , $\text{AlCl}_3 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$ （ $0.5 \sim 1.4\text{mm}$ ）を使用したモデル実験によると、最終ペレット径は、シード粒子径および電解質のイオン価数の増加とともに増大することが判明した。ペレット形成の機構を Fig.13 に示す。懸濁液に電解質シード粒子を添加すると、シード粒子表面で溶解が起こり、電解質の高濃度層が形成される。そのためシード粒子の表面近傍の懸濁粒子が凝集して殻を形成する。さらに溶解した電解質は殻を拡散して表面の電解質濃度を高める。すると懸濁粒子が新たに凝集し造粒粒子は成長する。造粒粒子表面の電解質濃度が、いわゆる限界凝集濃度以下になれば粒子の成長は止まる。系の温度を高めると、電解質の拡散速度が増大し造粒速度が速くなること、シード粒子の個数と造粒粒子の個数が等しいことなどから本モデルが正しいことが示されている。本造粒物は適当な強度を有し、単分散性や、球形度にも優れる。

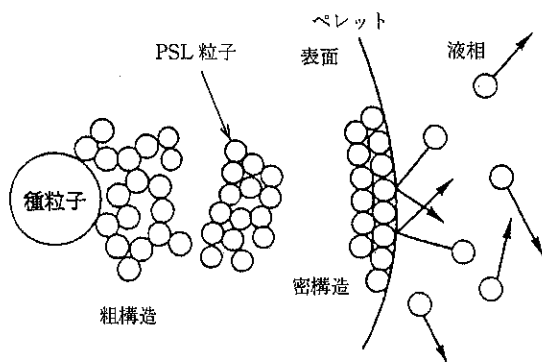


Fig.13 ペレット形成の模式図⁴⁰⁾

引用文献

- 1) 北原文雄：凝集工学—基礎と応用—（日本粉体工業技術協会編），日刊工業新聞社，p.31（1982）
- 2) J. Lyklema：Agglomeration '85（Editor C. E. Capes），The Iron Steel Soc.，p.23（1958）
- 3) 川島嘉明：液中における粉体の凝集と造粒，粉体工学会誌，16，pp.319～325（1979）
- 4) 東谷公，安井英夫：懸濁粒子のシード凝集法，化学工学，52，pp.837～840（1988）
- 5) M. Yusa and A. M. Gaudin：Formation of Pellet-like Floccs of Kaolinite by Polymer Chains, Am. Ceram. Soc. Bull., 43, pp.402～406（1964）
- 6) 遊佐美津雄：凝集工学的にみた団塊凝集法—凝集とは二つの粒子が近づくことか？—，表面，17，pp.68～75（1979）
- 7) M. Yusa：Mechanism of Pelletting Flocculation, Int. J. Mineral Process, 4, pp.293～305（1977）
- 8) 鈴木英友，小林武司，豊倉賢：液中における懸濁粒子の造粒—攪拌式造粒槽でのペレット生成過程—化学工学協会第9回秋季大会講演要旨集，B303，pp.141～142（1975）
- 9) K. Higashitani and T. Kubota：Pelleting Flocculation of Colloidal Latex Particles, Powder Technol. 51, pp.61～69（1987）
- 10) K. Higashitani, T. Shibata, H. Kage and Y. Matsuno：Formation of Pellet Floccs from Kaoline Suspension and Their Properties, J. Chem. Eng. (Japan), 20, pp.152～157（1987）
- 11) 鈴木英友：湿式造粒法によるスラッジの脱水，ケミカルエンジニアリング，pp.52～59（1972）
- 12) 川島嘉明，竹内洋文：液中における粒子の凝集現象を利用した造粒法の開発とその製剤学的応用，表面，22，pp.719～728（1984）
- 13) 平島剛，高森隆勝，恒川昌美，鶴井雅夫：液中造粒における界面性状と造粒体形成に関する研究，粉体工学会誌，24，pp.771～776（1987）
- 14) 高瀬均，釣昌司，杉本益規：石炭の湿式造粒における造粒粒子の成長，化工論文集，12，pp.219～222（1986）
- 15) 竹中英雄，川島嘉明，中島昌弘，倉知祥介：液中における粉体の界面化学的性質と湿式球形造粒，粉体工学会誌，16，pp.681～686（1979）
- 16) Y. Kawashima, K. Furukawa and H. Takenaka：The Physicochemical Parameters Determining the Size of Agglomerate Prepared by Wet Spherical Agglomeration Technique, Powder Technol., 30, pp.211～216（1981）
- 17) Y. Kawashima and C. E. Capes：Spherical Agglomeration of Binary Particle Mixtures, J. Powder Bulk Solids Technol., 2, (3), pp.53～57（1978）
- 18) Y. Kawashima and C. E. Capes：An Experimental Study of the Kinetics of Spherical Agglomeration in a Stirred Vessel, Powder Technol., 10, pp.85～92（1974）
- 19) 川島嘉明：湿式球形造粒，粉碎，21，

- pp.26~33 (1976)
- 20) L. Messer and C. E. Capes : Coal Beneficiation for Oil Admixture Using the Spherical Agglomeration Process, Proc. 4th Joint Meeting MMIJ-AIME, C-3-3, pp.25~36 (1980)
 - 21) 大内俊明, 川西広嘉, 久保泰雄 : S. P. S.による石油コークス燃焼灰処理設備, 産業機械, 452, pp.18~21 (1988)
 - 22) 中村正義 : S. P. S.による微粉炭処理について, 九州炭鉱技術連盟会誌, 22, pp.167~171 (1969)
 - 23) F. J. Zwderweg and N. Van Lookeren Campagne : Pelletizing of Soot in Waste Water of Oil Gasification Plants-the Shell Pelletizing Separator (S. P. S.), Chem. Engineer, July/August, pp.223~227 (1968)
 - 24) Y. Kawashima, Y. Kurachi and H. Takenaka : Preparation of Spherical Wax Matrices of Sulfamethoxazole by Wet Spherical Agglomeration Technique Using a CMSMPR Agglomerator, Powder Technol., 32, pp.155~161 (1982)
 - 25) Y. Kawashima, H. Ohno and H. Takenaka : Preparation of Spherical Matrixes of Prolonged-Release Drugs from Liquid Suspension : J. Pharm. Sci., 70, pp.913~916 (1981)
 - 26) 平島剛, 高森隆勝, 恒川昌美 : 造粒体形成に及ぼす界面性状の影響—液中造粒に関する研究 (第1報), 日本鉱業会誌, 102, (1185), pp.795~800 (1986)
 - 27) Y. Kawashima, T. Handa, H. Takeuchi, Y. Ii and H. Takenaka : Spherical Agglomeration of Calcium Carbonate Dispersed in Aqueous Medium Containing Oleate, Powder Technol., 46, pp.61~66 (1986)
 - 28) A. F. Sirianni, C. E. Capes and I. E. Puddington, Recent Experience with the Spherical Agglomeration Process, Can. J. Chem. Eng., 47, pp.166~170 (1969)
 - 29) F. W. Meadus, B. D. Sparks and I. E. Puddington, U. S., 3, 984, 287 (1976)
 - 30) 中村正義 : 液中造粒法とその操業例, 粉体と工業, 23, pp.37~46 (1991)
 - 31) Y. Kawashima, M. Okumura and H. Takenaka : Spherical Crystallization : Direct Spherical Agglomeration of Salicylic Acid Crystals During Crystallization, Science, 216, pp.1127~1128 (1982)
 - 32) 川島嘉明 : 新しい液中の粒子の凝集現象による晶析造粒法の開発と粒子設計, 薬誌, 106, pp.433~445 (1986)
 - 33) Y. Kawashima, M. Okumura, H. Takenaka and A. Kojima : Direct Preparation of Spherically Agglomerated Salicylic Acid Crystals During Crystallization, J. Pharm. Sci., 73, pp.1535~1538 (1984)
 - 34) Y. Kawashima, T. Niwa, T. Handa, H. Takeuchi, T. Iwamoto and Y. Ito : Preparation of Controlled-Release Microspheres of Ibuprofen with Acrylic Polymers by a Novel Quasi-Emulsion Solvent Diffusion Method, J. Pharm. Sci., 78, pp.68~72 (1989)
 - 35) 川島嘉明, 竹内洋文, 丹羽敏幸, 日野知証, 山腰誠, 木原一彦 : 球形晶析法による抗菌薬の粒子設計—直接打錠用造粒結晶の調製及びその評価—, 第26回粉体に関する討論会講演要旨集, pp.229 (1988)
 - 36) Y. Kawashima, S. Aoki, H. Takenaka and Y. Miyake : Preparation of Spherically Agglomerated Crystals of Aminophylline, J. Pharm. Sci., 73, pp.1407~1410 (1984)
 - 37) Y. Kawashima, S. Y. Lin, M. Ogawa, T. Handa and H. Takenaka : Preparations of Agglomerated Crystals of Polymorphic Mixtures and a New Complex of Indomethacin-Epirizole by the Spherical Crystallization Technique, J. Pharm. Sci., 74, pp.1152~1156 (1985)
 - 38) T. Iwamoto, Y. Kawashima, T. Niwa, H. Takeuchi and S. Furuyama : A New Controlled Release Suspension of Spherical Matrix of Ibuprofen with Acrylic Polymer, Proc. Int. Symp. control. Rel. Bioact. Mater., 15, pp.328~329 (1988)
 - 39) Y. Kawashima, T. Niwa, H. Takeuchi, T. Iwamoto and Y. Ito : Preparations of Controlled Release Microsponge and Microballoon of Ibuprofen with Acrylic Polymers by a Novel Emulsion-Solvent Diffusion Method, Proc. Int. Symp. Control. Rel. Bioact. Mater., 15, pp.185~186 (1988)
 - 40) 東谷公, 安井英夫 : 懸濁粒子のシード凝集法, 化学工学, 52, pp.837~840 (1988)
- *注 本原稿は造粒ハンドブック (日本粉体工業技術協会編, オーム社, 1991) P.453, “液相造粒法 (懸濁凝法)” に加筆訂正したものである。

粉体技術連峰の一つとしての造粒技術

横山 豊和* 辻本 広行

Toyokazu Yokoyama Hiroyuki Tsujimoto

はじめに

粉体プロセス分野では近年、新素材、新材料の開発の要請に応じて様々な機能性粉体に強い関心が寄せられ、超微粉体や複合粒子などの製造のための固体粒子の微細化や複合化などと共に、実際の応用に適した粉体に成形するための造粒化技術に対するニーズが益々増大し、高度化してきている。

当社では最近まで一般的な造粒機としては2、3の圧縮・押し造粒機等を取り扱っていたにすぎなかったが、昨年2月造粒分野で技術的に定評のあるビーベックス社が当グループに加わることで、この強制造粒技術が一段と充実した。さらに、昨年より開発を進めている多機能型流動乾燥造粒機とその自動運転化による造粒技術の展開により、広範なニーズに応じられるようになった。

本講ではこれらの機種を中心として広がりつつある当社の新しい粉体技術連峰の一つとしての「造粒の峰」の一端について紹介する。

1. 造粒機の種類と従来機

造粒操作は一般に強制造粒と自足造粒とに大別される¹⁾。強制造粒は、圧縮造粒や押し造粒のような強制的な外力を与えて粒径の増大を図るものである。一方、自足造粒は流動層造粒や転動、攪拌造粒のように個々の粒子の付着力により凝集し、造粒していくものである。

Table. 1 に両者の特長と当社の造粒装置の分類を示す。強制造粒は一般に造粒体強度の大きなペレットやブリケットの製造に適しており、連続操作が主体で、一旦条件が決まれば運転操作は比較的容易である。一方、自足造粒は造粒体強度の比較的小さな顆粒の製造に適し、回分操作が中心で、運転が複雑になる場合が多い。

* ホソカワミクロン(株) 技術本部粉体工学研究所

(〒573 大阪府枚方市招提田辺1-9)

Tel. (0720) 55-2220

強制造粒機構を持つ装置としては当社には、従来より Figs. 1, 2 に示すチルソネータならびにグラニューライザという2つの機種があり、食品、肥料、医薬品、農薬等様々な分野で使用されている。前者はフィッツパトリック社と技術提携を行ったロール式圧縮造粒機で、2個のロールが互いに逆方向に同速度で回転しており、一方の

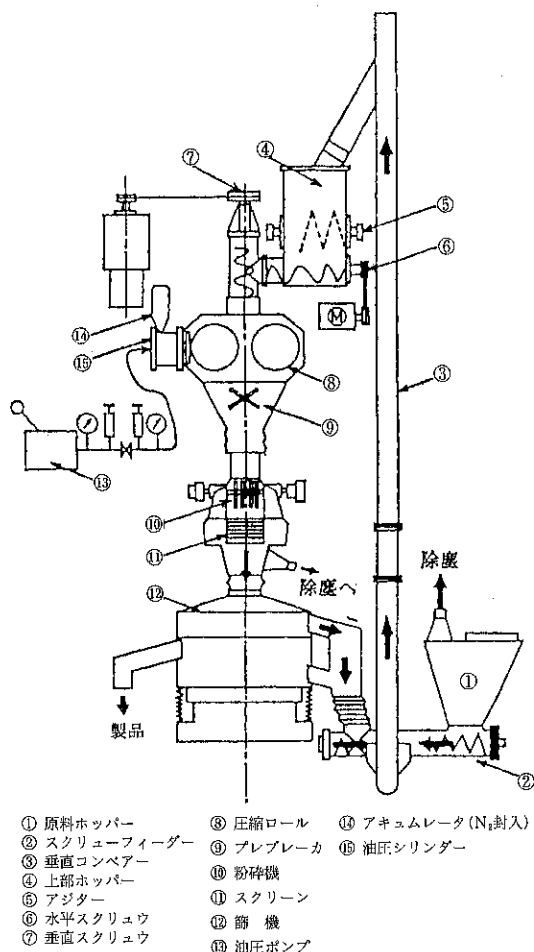
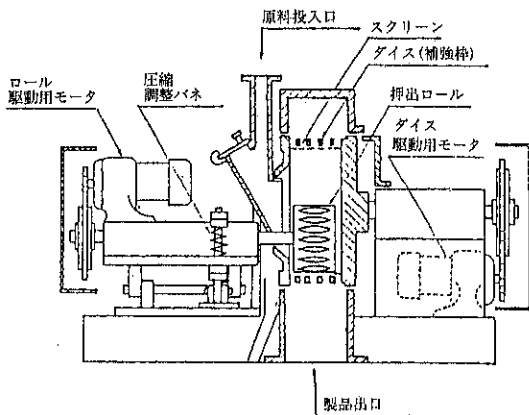


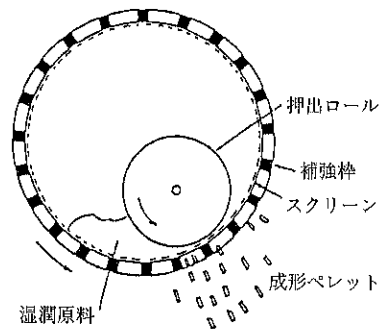
Fig. 1 チルソネーター造粒システムフロー

Table 1 ホソカワミクロン造粒機の種類

分類		装置名 [一般機種]	特徴			
			運転方式	操作の難易度	造粒体強度	造粒体密度
強制造粒機構	圧縮造粒	チルソネータ コンパクタ	連続 操作が 主体	運転 操作が 比較的 単純	大	大
	押出造粒	グラニューライザ ギアペレタイザ エクストルード・オー・ミックス				
	解砕造粒	[回転ナイフ型など]				
	溶融造粒	[スプレイドライヤ型など]				
自足造粒機構	流動層造粒	フルイドベッドプロセッサ	回分 操作が 主体	運転 操作が 複雑	小	小
	転動造粒	[回転パン型など]				
	攪拌造粒	[高速回転ミキサ型など]				
	複合造粒 (流動層, 転動, 攪拌)	アグロマスタ				



(a) グラニューライザの構造



(b) 造粒のメカニズム

Fig. 2 グラニューライザの構造と造粒機構

ロール軸は固定, 他方のロール軸はフリーとなっていて, 油圧シリンダにて一定の圧縮力によって押しつけられている。また原料粉体を水平と垂直の2本のスクリーンで押し込みながら供給している。一般に Fig. 1 に示すように, 解砕機ならびにふるい機と組み合わせて閉回路システムで運転する場合が多い。後者のグラニューライザは

Fig. 2 に示すように同方向, 同周速で回転する押し出しロールとダイスの間で湿潤粉体が圧縮され, 押し出される機構の押出造粒機で, 比較的負荷の小さな造粒仕様に適している。

一方, 自足造粒に関しては流動層分散板に付着防止型の特殊2流体ノズルを備えた流動乾燥造粒機のフルイド

ベッドプロセッサがあり、造粒、乾燥、コーティング等多目的に使用されている。本装置はナウタ社から導入された装置で食品、飼料、ファインケミカル等の分野で広く用いられ、1バッチ処理量で100～3000リットルまでの7機種が用意されている。

なお、造粒操作自体は、必ずしもこれらの造粒機にとらわれることなく、バインダ類を用いると例えば乾燥機や混合機、時には一般に粉碎機と考えられているような装置を用いても広い意味での造粒が行われる場合もある。

2. 新導入の圧縮、押出造粒機

昨年のビーベックス社の参入により新しく導入された造粒機の種類と特長を Table 2 に示す。ここで、コンパ

クタは圧縮造粒機、他の2機種は押出造粒機に分類されるものである。Fig. 3 にこれら3機種の造粒機構を示す。

コンパクタはロール式圧縮造粒機でLシリーズと容量の大きなKシリーズがあるが、ロール間のクリアランスは一定で、油圧シリンダーが不用のためこれによるコンタミネーションの心配がない。Lシリーズの中で特にGMP対策を強化したタイプはファーマパクタと呼ばれ、ロールの分解掃除も容易で食品・医薬品等の造粒成形に適している。このファーマパクタ処理後のペレットの粒度調整のためにはフレッククラッシャと呼ばれる解砕機が用いられる。

Table 2 のまとめにあるように、圧縮での造粒が可能な場合には一般に、バインダを使用しないか、押出造粒より少ないバインダでの造粒が可能であり、より密度の

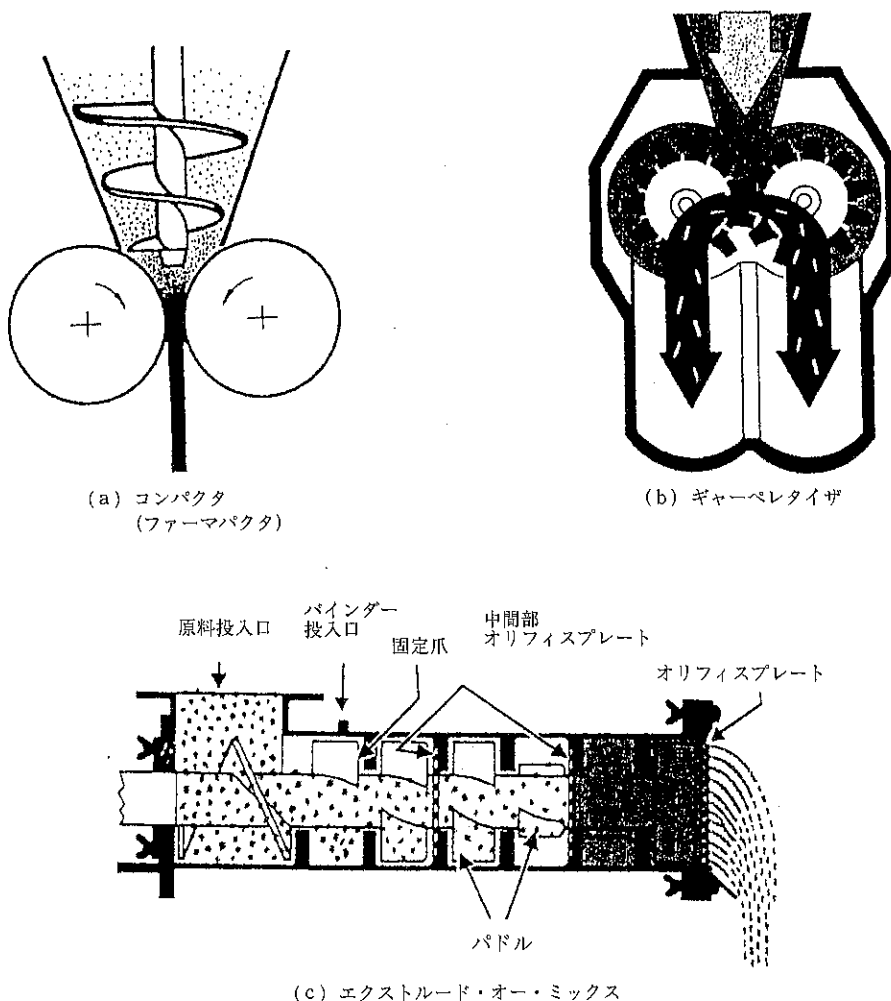


Fig. 3 ホソカワ/ビーベックス社造粒機の構造模式図

Table 2 Bepex 造粒機の特性比較

製 品 名	製 品 粒 子 特 性			製品粒子外観		液体バインダ の添加率 (重量%)	処理能力 (毎時)
	製品粒度	製品かさ 比重	分散/濡れ特性	形 状	着色・着香		
コンパクト (ファーマパクト)	1/4~50 メッシュ	0.6~ 2.4 g/cc	硬質顆粒状 溶解性:低 濡れ特性:高	粒状	可能	通常1~4%以下, バインダ無添加 可能	9 ^{kg} ~100 ^{kg}
ギヤーペレタイザ	1~10mm	0.4~ 1.0 g/cc	分散性:低~中 溶解性:低~中 濡れ特性:高	ペレット状	可能	原料に応じ, 2~15%	45 ^{kg} ~1 ^{kg}
エクストルド・ オー・ミックス	3/8~1mm	0.4~ 1.0 g/cc	分散性:低~中 溶解性:低~中 濡れ特性:高	ペレット状 ひも状	可能	原料に応じ, 2~25%	90 ^{kg} ~7 ^{kg}

大きな造粒体を得ることができ、処理量も少量から大量まで操作範囲が広い。

圧縮造粒で十分な強度が得られない場合、液体バインダを用いた押出造粒が必要となるが、ギヤーペレタイザでは2本のギヤーロール間に供給された原料が、ギヤーロールの噛込みによって圧縮され、ギヤーの歯底部に設けられたノズル状の穴より順次押出され、ギヤーロールの内側にあるスクレーパで切断され、ペレット状の製品が得られるようになっている。これらのギヤーロールの

取外しが簡単で清掃やノズルの交換が容易にできるという特長を有し、ロールの加熱、冷却が可能のため、低融点物質の造粒も可能である。

エクストルド・オー・ミックスはさらに液体バインダの添加率を多くして、垂直圧縮のみでなく、剪断による混合、混練の効果を加えた押出造粒機である。原料はシャフトに取り付けたパドルとチャンパ内に取り付けられた固定爪により搬送、剪断作用を受けるとともに、チャンパ中間部の2枚のオリフィスプレートにより均一な

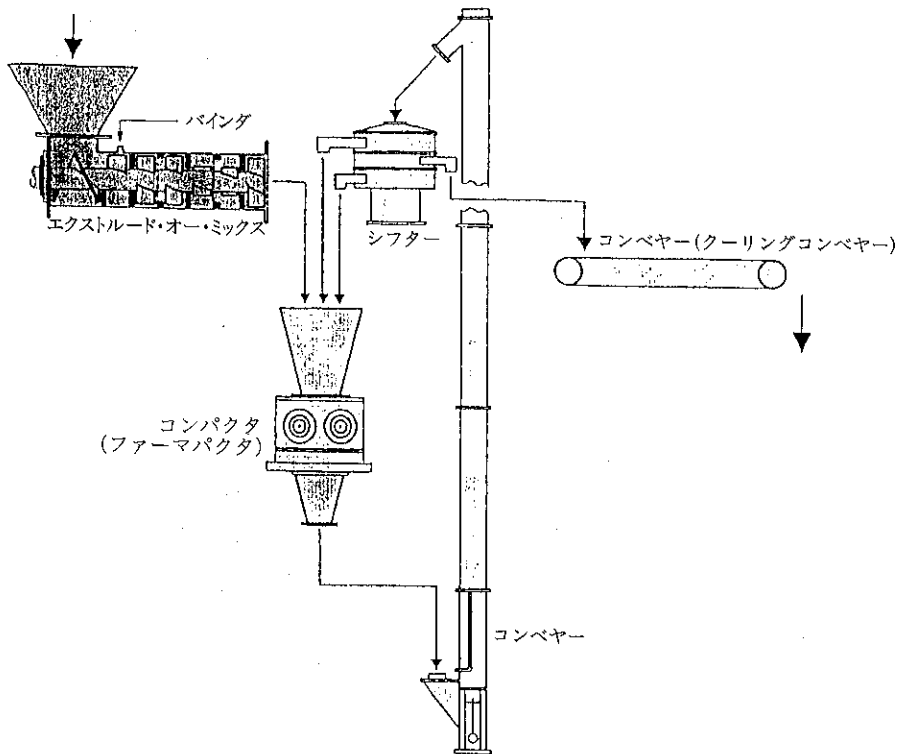


Fig. 4 ブリケットティングシステムの一例

混合、混練が促進される。

これらの装置は用途に合わせて組み合わせて用いられることもあり、例えばブリケットングの際には Fig. 4 のようにまずエクストルド・オー・ミックスで粉体とバインダとをよく練り込んで予備造粒を行った後、コンバクタで強度の大きなブリケットに成形し、シフターで適当な大きさのもののみ取り出し、不良品はリサイクルしている。

3. 多機能型流動乾燥造粒機

3.1 機械的構造

前述の通り自足造粒は、Fig. 5 に示すような攪拌、転動、流動層造粒等の基本的造粒機構に分けられる。一般に、転動造粒では球形度の高い、比較的粒子密度の大きな造粒物を作ることが可能で、例えばその流動性の向上を期待できる。一方、流動層造粒では造粒物の形状は不定形であるが、粒子密度が小さく、例えば溶解性の高い製品をつくることが可能である。攪拌造粒はこれら両者の中間的な効果を示し、流動層や回転円盤よりは強力な混合、攪拌作用があるがソフトな自足造粒が困難な面がある。

多機能型流動乾燥造粒機はこれら3つの要素を兼ね備えた造粒機で、当社で開発した「アグロマスタ」(Fig. 6) は、流動層の中心部に攪拌羽根をもつ通気回転円盤を配したものである。これにより気体流での流動層造粒と攪拌羽根による攪拌造粒ならびに回転円盤による転動造粒

の効果を同時に作用させることができるように設計されている。特に回転円盤は半径方向外向きに透過風量が大きくなるようにしたもので、外周付近での高速上昇気流との組合せにより粉体の層内循環作用が促進され、そのため効率的な造粒、乾燥が実現され、工程時間の短縮が可能である。この流動層の上部にはパルスエアジェット方式の集塵機が取り付けられており、微粉が効率的にリサイクルされ、高い回収率が得られる。

Table 3 に本機でのテスト結果の一例を示す。これらにあるように本機では、数 μm から数 $10\mu\text{m}$ の粒子を原料として、数 $100\mu\text{m}$ 程度以上の顆粒体を製造するのに適している。この中で造粒の目的としては、減容あるいは流動性や移送性の向上といったハンドリング上の課題と、溶解性の向上や機能性の付与といった材料の物理化学的な課題があり、多機能型流動乾燥造粒機は、それぞれの要求に応じた粒子の加工が行える点に特長がある。

3.2 計測・制御システムの開発

この多機能型流動乾燥造粒機は回分操作によって運転されるため、時間によって、粉粒体の粒度、形状、水分、温度等が変化する。したがって、要求に応じた高品質の造粒製品を製造するためには、原料粉体の流動化、液添、造粒、乾燥、冷却等が適切に行われる必要があり、そのためには風量、ガス入口・出口温度、円盤回転数、液体添加のタイミングと流量などの適正なコントロールが必要となる。本装置を用いて造粒操作を行う場合、顆粒製品の主な物性（粒子径、顆粒密度、形状）に及ぼす操作

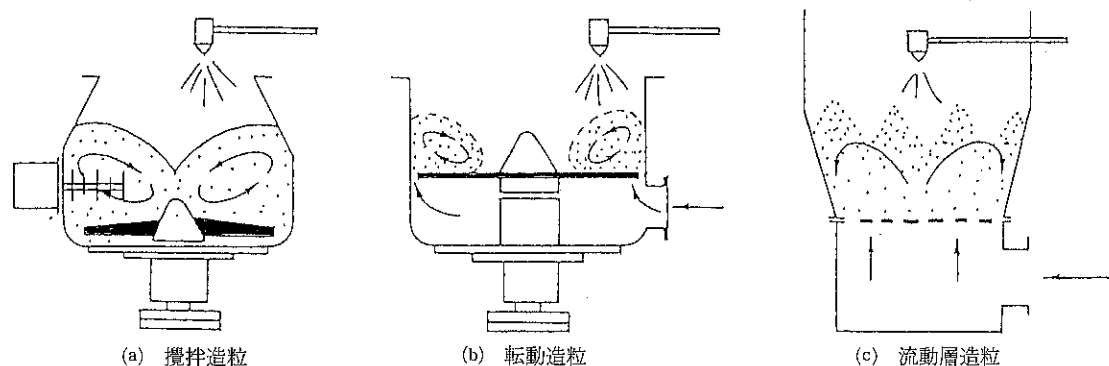
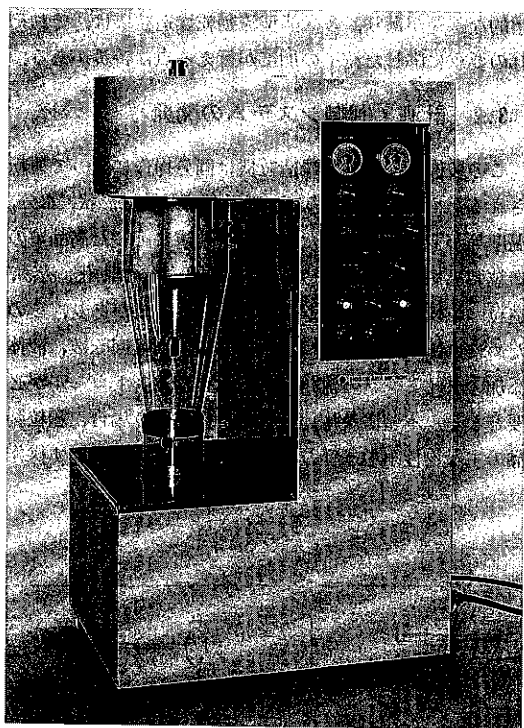


Fig. 5 自足造粒の主な造粒原理²⁾

Table 3 アグロマスタによる造粒テスト実施例

原料名	造粒目的	原料	バインダ		製品		
		平均粒径 [μm]	種類	濃度 [wt %]	形状	平均粒径 [μm]	嵩密度 [g/cc]
乳糖	圧密調整, 流動性向上	48	HPC	5	顆粒	720	0.58
乳糖・コーンスターチ	顆粒剤	70	HPC	4	球形	500	0.72
粉乳	圧密調整, 流動性・溶解性向上	80	水	—	不定型	450	0.34
吸水ポリマ	移送性向上	50	PEG	20	顆粒	700	0.46
フェライト	成型機用顆粒	4	PVA	5	球形	350	1.68
カーボンブラック	機能付与	50	原料スラリー	—	球形	450	—
砂糖粉	溶解性・流動性向上	30	HPC	7	不定形	400	0.38
ジルコニア	成型機用顆粒	8	PVA	7	球形	320	—

Fig.6 多機能型流動乾燥造粒機
「アグロマスタ」®の外観

因子の一般的な影響の傾向は Table 4 に示すようである。従来このような回分操作式の自足造粒機の運転には、多くの実験と経験が必要とされた。そこで当社では最近、粒子温度・水分、流動状態等をオンラインで計測しながら、操作条件を制御する自動運転造粒システムを開発した。

流動層中の粉粒体の水分をオンラインで計測することは、造粒や乾燥過程の進行度を評価する上で重要な指標となり、既にいくつかのユニットが開発されている。当社では従来型より優れた特性を持つ光ファイバ利用の赤外線吸収式水分計⁹⁾を用いて、限られた検量線で流動層中の造粒体の水分計測が可能なユニットの共同開発を進め、造粒システムに組み込んでいる。

また、流動層造粒において超音波センサによる層高計測を行った造粒の自動化の検討が行われているが、ここではそれ以外に、粉体流動層から発生するアコースティックエミッション (AE) を利用して粉粒体の流動化状態を把握し、造粒操作に利用することに成功した。Fig. 7 はアグロマスタにおける AE 波エネルギー測定によるブロッキング予知の一例を示したものである。同図では流動化している粉体層の中に、13:11 より一定速度での

Table 4 顆粒の物性に及ぼす操作因子の影響

大	←平均粒子径→	小	重質	←顆粒密度→	軽質	球形	←形状→	不定形
大	液体噴霧量	小	大	噴霧用空気量	小	大	流動化空気速度	大
小	噴霧速度	小	小	流動化空気速度	大	低	空気温度	高
大	噴霧用空気量	大	低	空気温度	高	大	円板回転数	小
小	流動化空気速度	大	低	円板回転数	高			
低	空気温度	高						
小	円板回転数	大						

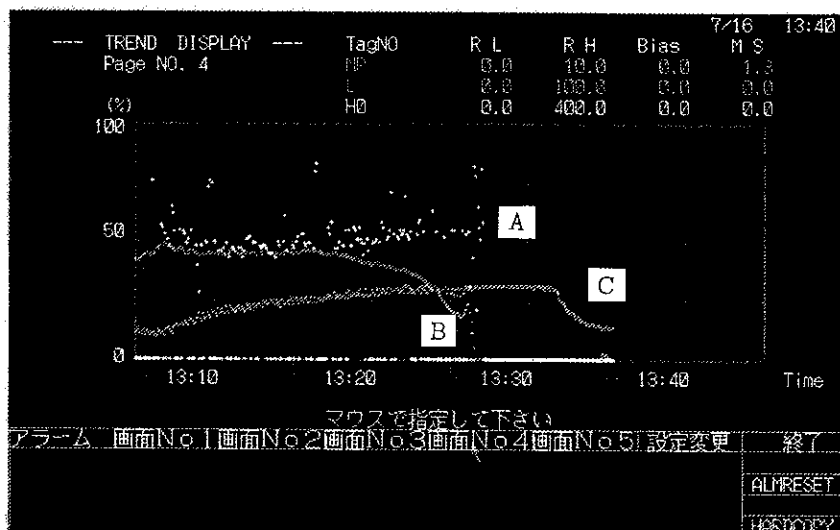


Fig. 7 流動層造粒におけるA E波
エネルギー測定によるブロッキング予知の例
(A:流動層高, B:A E波エネルギー, C:粒子水分に対応)

水分添加を行っているが、時間の経過と共に粒子の水分に対応した吸光度が上昇し、ある時点で飽和し、それと対応して13:32辺りで流動層はブロッキングを起こしている。これに対して超音波変位計で計測した流動層の層高のデータはばらつきが大きく、ブロッキングの直前まではほとんど変化していない。一方、A E波エネルギーは13:25辺りから減少の傾向を示し、これによってブロッキングの発生を前もって予知し、水分添加を抑えたり、流動化風量を増大したり、その入口温度を高めて乾燥速度を増すなど様々な対策をとることができる。

このような多機能型流動乾燥造粒機の造粒速度は、水分添加条件や粒子の衝突付着確率等によって決まる凝集速度と、凝集体の流動時の攪拌、衝突等による粉碎速度とのバランスによって決まるものと考えられるが、それぞれの速度は粒径等の粒子特性と操作条件に関連づけられる。これらの因子間の関係を把握し、最適な操作を行っていく必要がある。

そこで、本機の造粒操作の制御システム（ソフトウェア）については、ORPX システムを導入し、従来のPID制御に加えて、ファジー制御を取り入れ、自動運転への実用化を図っている。これによって不規則な要素の多い流動造粒プロセスを安定化することができ、製品特性（粒子径、見かけ密度、水分等）の制御も容易となり、一定した製品品質が得られる再現性のある造粒操作が行われるようになっていく。また、造粒体の含水率に応じて、流動層がブロッキングを起こさない必要最小限の流動化

空気量を使用することにより、凝集体の破壊を抑え、造粒速度の増大と製品粒度の均一化が図られている。このようにしてこの制御システムによって造粒操作の省力化が実現されると共に、運転状態のモニタリング、CRT 画面操作によるシステム機器類の起動や停止、プロセスデータの収集、記録ならびに解析等を行うことができる。

おわりに

造粒操作は粉碎と共に、粉粒体のもっとも基本的な粒径をコントロールする重要な粉体単位操作の一つである。昨年よりピーベックス造粒機の導入と自社内開発の多機能型流動乾燥造粒機が加わり、従来以上に造粒対象の幅が広がり、より高度な造粒製品の加工が可能となった。今後、益々多様化する実際のニーズに合わせてこれらの装置の応用範囲を広げていくと共に、高機能化と効率化を目指してこの分野での研究開発にも積極的に取り組んでいきたい。

参考文献

- 1) 関口勲：化学工学，41，73（1977）
- 2) 日本粉体工学技術協会編：造粒ハンドブック 7 章 流動層造粒法，オーム社
- 3) 藤村啓：センサ技術，13(5)，31（1993）
- 4) 綿野哲：平成4年度第2回造粒分科会技術討論会要旨集，p.28（1993年5月，静岡）

粉体層圧縮・引張強度自動計測システム アグロボット (AGGROBOT)

Fully-Automatic Testing System for Compression
Characteristics and Tensile Strength of Powder Beds

辻本 広行* 井上 義之* 横山 豊和*
Hiroyuki Tsujimoto Yoshiyuki Inoue Toyokazu Yokoyama

1. はじめに

粉体の付着、凝集および圧縮性の力学的性質は、粉体プロセスを立案する際や品質管理などにおいて重要な評価項目となっている。この力学的特性の測定法には既に数多くの測定法とその装置が提案されている。しかし操作性、測定値の再現性および測定レンジを求めるとなると十分でない場合が多い。例えば粉体層の引張特性については、弊社製の『コヒテスタ』のように、粉体層に低圧密を加えた時に生じる比較的小さな付着、凝集力を精度良く測定する装置はいくつかみられるが、混合、造粒操作で取扱うようなパインダが混入した粉体に高圧密を加えた場合に生じる大きな付着、凝集力に対しては、測定レンジが不足し安定した測定が困難であった。また粉体層の圧縮試験機について言えば、従来、高圧タイプの材料試験機などを使用している場合が多いため、粉体材料の造粒体の崩壊が始まり易い 1 MPa 以下の低圧力域での崩壊を伴う粉体層の圧縮特性を精度良く測定することが困難であった。

この度、弊社では粉体層の圧縮特性と引張強度の測定が自動的に短時間で行うことができ、しかもそのデータ解析が簡便で、上述のように従来の測定器では困難であった測定領域においても安定した測定ができる「粉体層圧縮／引張強度自動計測システム『アグロボット』」を商品化したので、以下に測定結果とともに紹介する。

2. アグロボットシステムの概要と測定および解析方法

アグロボットシステムは、本体 (586mm(W)×370mm(D)×520mm(H)) とその制御ならびにデータ解析を行うパーソナルコンピュータ (NEC 社製 PC-9800 シリーズ) から構成 (Photo.1) される。Fig.1 に示す本体には圧縮ユニット (0.1~100kgf) と引張ユニット (0~3.0 kgf) が配置され、セルテーブルが両ユニット間を移動することで連続測定が行える。

試料は Fig.2 に示す上下に 2 分割される円筒セル内に入れ、上蓋をしてセルテーブルにセットする。セルはステンレス製で、深さは 40mm、内径は $\phi 25$ mm (圧縮応力範囲: 2.0×10^4 Pa ~ 10^6 Pa) と $\phi 20$ mm セル (3.1×10^4 Pa ~ 10^6 Pa) の 2 種が用意され、粉体試料の付着力の大きさにより選択される。パソコンから測定開始信号を送ると、予めパソコン側で設定した最大圧縮力などの測定諸条件に基づき次のステップで自動測定 (1. 圧縮単独測定, 2. 引張単独測定または 3. 圧縮引張連続測定) が行わ

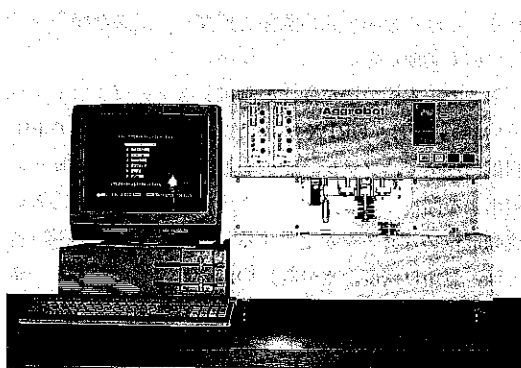


Photo.1 アグロボットシステム

* ホソカワミクロン(株) 技術本部 粉体工学研究所
(〒573 大阪府枚方市招提田辺 1-9)
Tel. (0720) 55-2220

れる。

1) セルテーブルが圧縮特性測定部へ移動し、圧縮ヘッドが上蓋を介して試料の圧縮を行う。この圧縮時の圧縮力と試料層高の変化はそれぞれロードセルとポテンシオンメータによって測定される。圧縮ヘッドの外周にはスプリングヘッドが取付けられており、このヘッドが上部

セルを押さえて固定することにより、圧縮に伴うセル内の粉体圧の上昇によるセル分割部からの粉漏れや上部セルの抜けを防止している。

2) 所定の圧縮力設定値と保持時間に達した時点で圧縮試験は自動的に終了し、予め連続測定を設定している場合には、セルテーブルが引張強度測定位置に移動する。

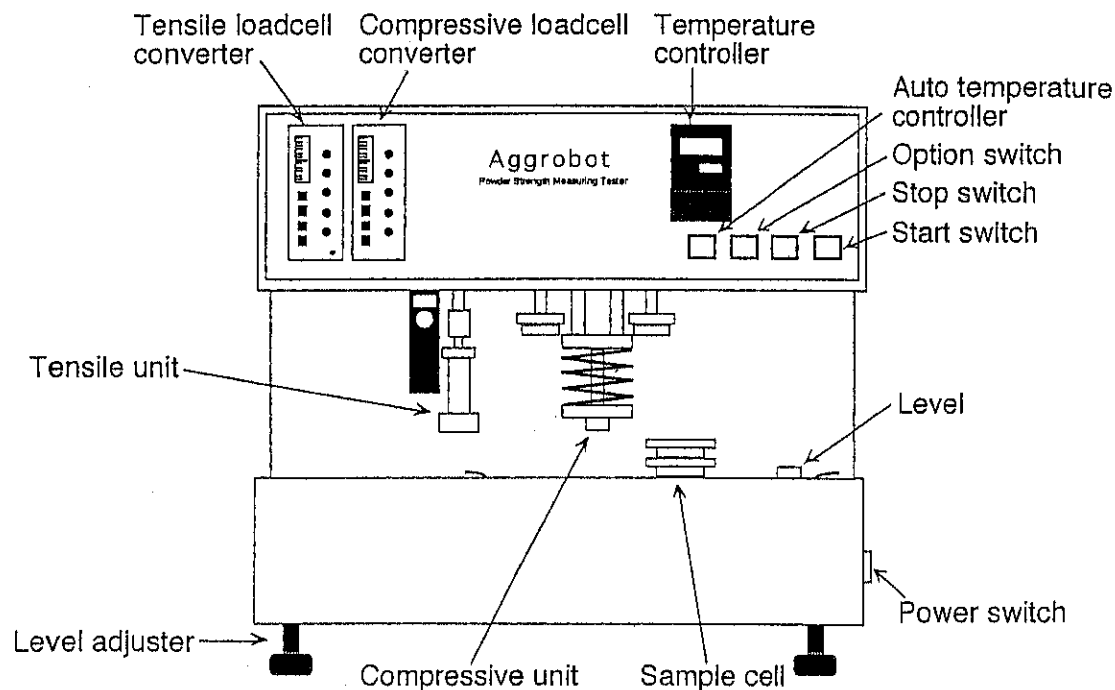


Fig. 1 アグロボット本体外観図

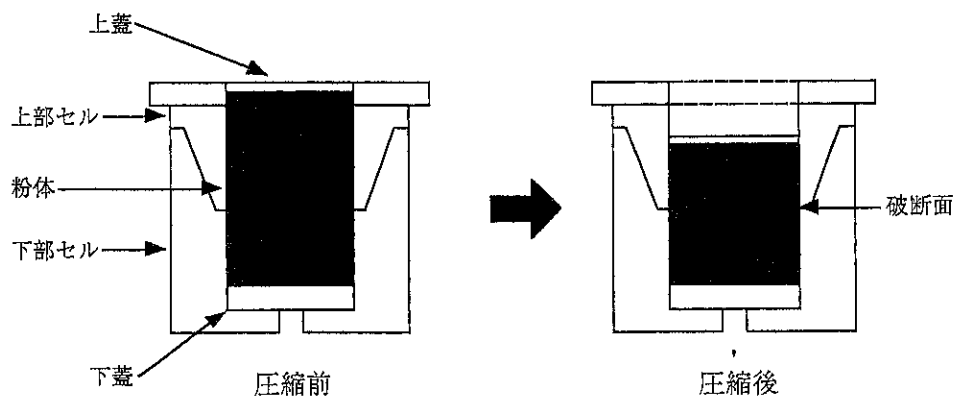


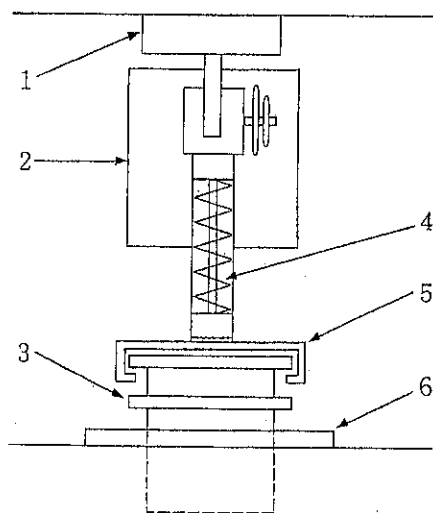
Fig. 2 円筒セル断面図

3) 引張測定部では Fig. 3 に示す引張りフックが上昇して上部セルのエッジに掛かると、スプリングを介してロードセルにより引張力が測定され、また試料層の変位はレーザー式変位センサにより測定される。引張りフックにスプリングを組み込むことで、セルを均一にかつ低速に引き上げることができ、安定した多量のデータを測定することが可能となっている。

4) 粉体層が破断しセルが分割されると引張試験が自動的に終了し、セルテーブルがホームポジションに移動し、入力データおよび測定データ（圧縮力、変位、引張力、層高）がパソコンに保存されて自動測定が完了する。

以上のデータから圧縮応力-対数歪曲線、引張応力-変位線図等のグラフを描画させプリンタで印字することができる。また予め平均粒径等のデータを入力しておけば粉体層の空間率、Rumpf 式によって計算される 2 粒子間力、破断エネルギー等を求めて印字することができる。更に試料がバインダ混入粉体の場合には、バインダの質量と密度を入力しておくことで、含液率、飽和度、塑性限界相当含液率や造粒指数が求められる。

尚、一回の測定に要する時間はおよそ 10 分であり、セルを複数個用意しておけば、セルを交換するだけでほぼ連続的に自動測定が可能となる。



1. ストレインゲージ
2. レーザー式変位センサ
3. 測定セル
4. バネ
5. フック
6. セルテーブル

Fig. 3 引張ユニット部詳細

3. 測定データ解析例

3.1 粉体層の圧縮引張り特性

3.1.1 無機粉体材料の測定例¹⁾

無機粉体材料の例として、(株)日本粉体工業技術協会の代表的な 6 種類の標準粉体を試料として本システムで測定した時の圧縮応力と引張強度の関係と空間率と引張強度の関係を Figs. 4, 5 にそれぞれ示す。いずれの標準粉体の場合にも圧縮応力の増大に伴い粉体層の空間率が減少し引張強度が増大していることが判る。

つぎに炭酸カルシウムに水を添加して湿潤粉体を調製する際に、この水の添加量 I_g (造粒指数: 塑性限界相当含液率 (粉体層の空隙が全て水で満たされるのに必要な水分量) に対する湿粉の含液率) と最大圧縮強度が引張強度に及ぼす影響について調べた結果を Figs. 6, 7 に示す。いずれの最大圧縮応力の場合にも、 $I_g=0.2$ において最大引張強度を示している。

ところで押し造粒や攪拌造粒などの造粒条件の検討

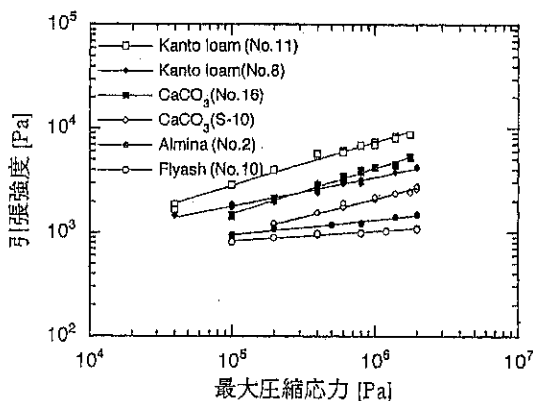


Fig. 4 標準粉体の最大圧縮応力と引張強度の関係

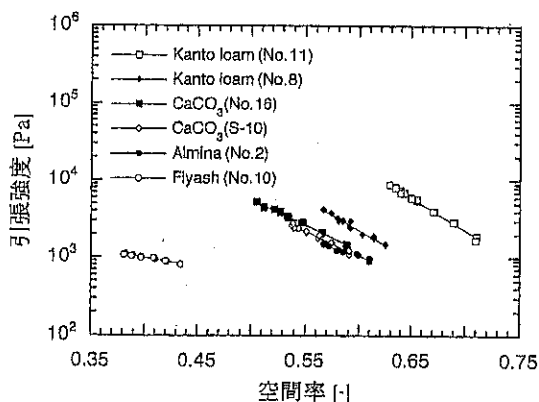


Fig. 5 標準粉体の空間率と引張強度の関係

の際には、操作条件の1つとしてバインダの種類、添加量およびその濃度をパラメータに選定することが多い。これは造粒体の物理的特性がバインダの選定や圧密条件に大きく依存するからであるが、アグロボットにより予め Figs. 6, 7 のようなバインダ混入粉体の圧密による凝集強度を把握しておけば、より効率的に最適造粒条件を見出すことが可能になると考える。

3.1.2 有機粉体材料の測定例²⁾

つぎに有機粉体材料の例としてコーンスープの原料粉体と乳糖・コーンスターチ混合粉体の測定例を Figs. 8, 9 にそれぞれ示す。コーンスープ-水、乳糖・コーンスターチ混合物-バインダ系(HPC 水溶液)ともに、水または HPC 水溶液の添加によって同一最大圧縮応力における引張強度が原料よりも増大していることが判る。また最大圧縮応力を高めた場合には、原料粉体よりもバインダを混入して湿潤粉体にした方が引張強度がよ

り大きな増加の割合を示すことが判った。

尚、乳糖・コーンスターチ混合物-バインダ系においては、水に比べ強い粘着性を持つ HPC 水溶液を添加した試料の方が水のみを添加した場合よりも引張強度が低くなるという傾向が認められた。これは HPC 水溶液と水との粘度、粉体と液体との濡れ性ならびに溶解性の違いが影響を及ぼしているものと推定される。

3.2 造粒体の圧縮特性

3.2.1 炭化けい素の造粒体 (スプレードライ法)

セラミックス成形体の製造工程において、プレス成形工程に用いられる造粒体に求められる特性は、1. 造粒体が球状で流動性に優れること、2. 成形時に造粒体が良くつぶれることなどである。そのため造粒体の崩壊強度を知ることは前処理としての造粒操作条件の検討の上で重要となっている。

ところでこの種の造粒体の充填層の圧密を伴う構造変

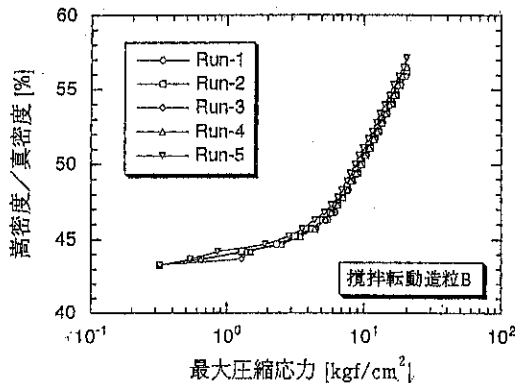


Fig. 6 炭酸カルシウム粉体の加水条件(Ig)を変えた場合の最大圧縮応力と引張強度の関係

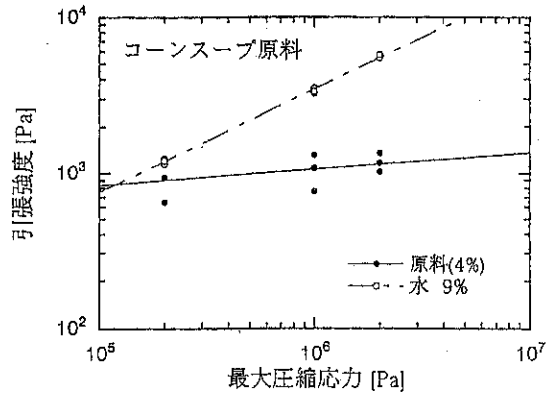


Fig. 8 コーンスープ原料の最大圧縮応力と引張強度の関係

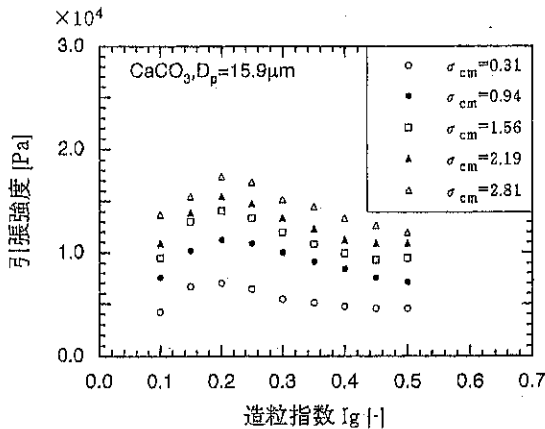


Fig. 7 炭酸カルシウム粉体の Ig と引張強度の関係

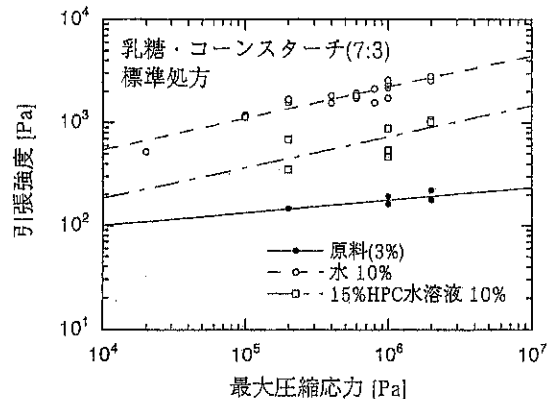


Fig. 9 乳糖・コーンスターチ混合粉体の最大圧縮応力と引張強度の関係

化の過程は、圧縮応力—嵩密度特性と関連づけて整理されている³⁾。このモデル図を Fig. 10 に示す。ここで縦軸の嵩密度はセル内の粉体または造粒体の嵩密度であり、真密度は原料粒子の値である。粉体を充填した場合には、図中の破線の様に一様に圧密が進行してゆくが、造粒体の場合には実線（細線）のような特異な傾向を示す。まず初期の圧密区間では造粒体の再配列による充填が起こり嵩密度が緩やかに増大してゆく。そして造粒体の崩壊が起こり、それが進行するに従って密充填に移行してゆき後期の圧密区間では嵩密度が急激に増大してゆく。すなわち、この傾きが変わる点での圧縮応力は造粒体の崩壊強度と関連し重要な評価項目になり得るものと考えられる。そこでこのモデルの例としてスプレードライ法で製造された炭化けい素の造粒体の圧縮試験を行った結果

を同図中に実線（太線）で、またその時の任意の圧縮応力下での造粒体の様子を電顕写真にそれぞれ示す。写真を見てみると圧縮応力の増大に伴って造粒体の崩壊が進行していく様子が認められる。またこの場合の圧縮応力—嵩密度特性はモデルのように明確に折れ曲がることなく曲線となる。これは実際の造粒体では強度、粒度、形状および内部構造などが不均一で分布を有しており、強度の弱い造粒体から徐々に崩壊が始まるためと推察される。このことから、この折れ曲がり点は平均的な強度を持った造粒体が崩壊し始める圧力（造粒体の崩壊開始強度）であり、折れ曲がり方が鋭い場合には造粒体の強度が比較的均一で、逆にそれが緩やかな場合には造粒体の強度が大きな分布を有していると考えられる。

つぎにスプレードライ法の造粒条件とそれにより製造

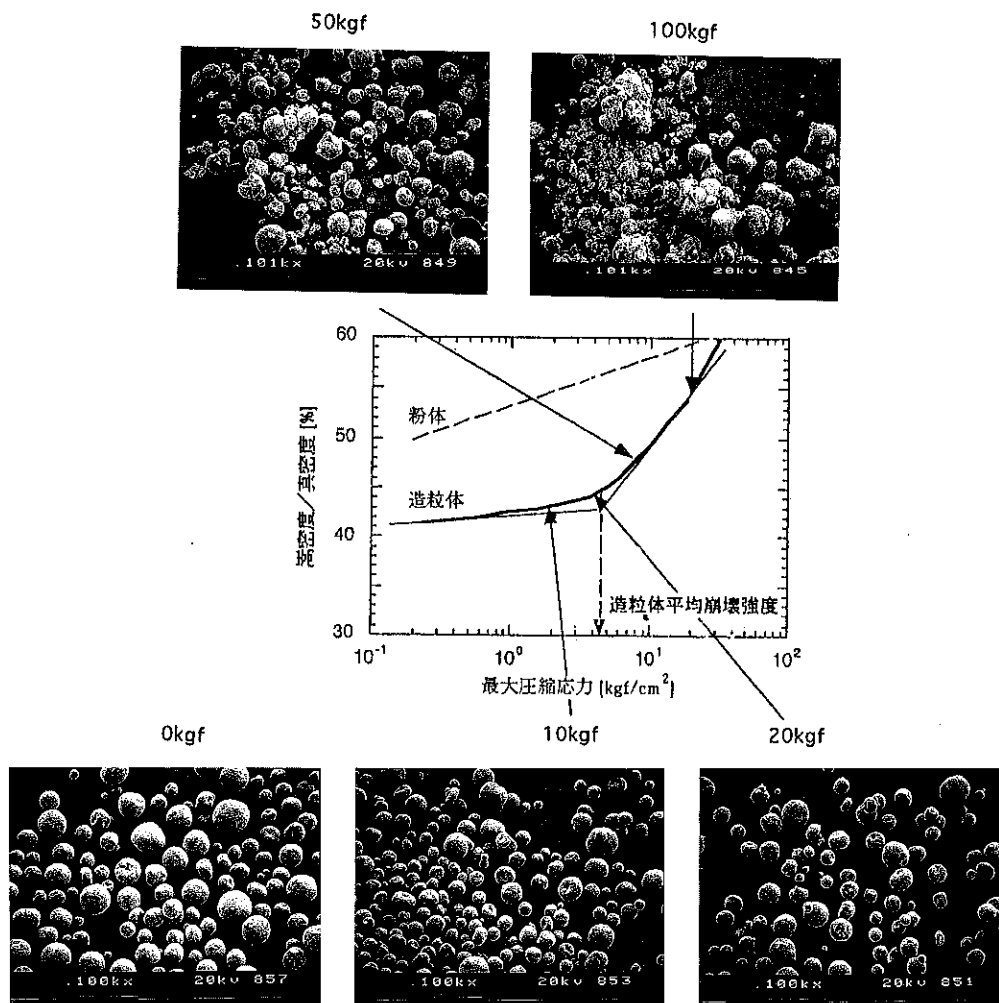


Fig. 10 粉体および造粒体の圧縮特性モデルと SiC のスプレードライ造粒体

された造粒体の崩壊開始強度の関係を調べるために、Table.1に示す造粒条件の違う6種類の造粒体についてさらに圧縮特性を調べてみた。その結果をFigs.11, 12に示す。造粒条件として原料粒子径と造粒体径が同一のAとBと比較すると、PVAのバインダ濃度を大きく設定したAが設定濃度の低いBの造粒体に比べより圧縮応力の大きいところで嵩密度が増加し始めており、造粒体の崩壊開始強度が大きくなっていることが判る。このAの条件に対し造粒体径のみを小さくしたCの場合には、充填率が異なるために初期の圧密区間での嵩密度の値は小さくなるものの、嵩密度が急激に増加し始める圧縮応力の値はほぼ同一であった。さらにこのCの条件に対し原料平均径のみを大きくしたDの場合には嵩密度が増大する圧縮応力が小さくなった。これは原料平均径を大きくすることで造粒体内部の空隙率が増大し、その結果顆粒強度が低下したものと推察される。またバインダをアクリル系に変えた場合にも同様の傾向が認められる。以上のことから、本法により最適な造粒体強度を持った造粒体を製造するためのバインダの種類とその最適濃度など造粒条件の検討が可能になるものと考えられる。尚、

Table.1には圧縮応力-嵩密度曲線の初期と後期の直線部分に接線を引き、その交点の圧縮応力を便宜上造粒体の崩壊開始強度として算出した値を載せた。

3.2.2 乳糖，コーンスターチの造粒体

他の造粒形式により製造された例として、Table.2に示す造粒条件で乳糖，コーンスターチ標準処方粉体を原料に、弊社製の多機能型流動造粒機アグロマスタを用いて通常の流動造粒方式と攪拌転動造粒方式で運転した際に製された造粒体の圧縮測定の結果をFig.13に示す。嵩密度と圧縮応力の関係は原料粉体では直線的に増大し、造粒体では先の炭化けい素の造粒体と類似の曲線が得られている。また造粒方式の違いで見れば、攪拌転動造粒方式での造粒体は流動造粒方式の造粒体に比べ圧縮応力-嵩密度特性曲線の折れ曲がり時の圧縮応力が大きく、かつ折れ曲がり方が鋭いことから、造粒方式として攪拌転動造粒の方が流動造粒に比べ造粒体の崩壊開始強度が大きくなり、またその強度分布が小さくなるものと考えられる。このことは通常、『流動造粒方式では軽質で粒度分布の広い造粒体』が得られ、逆に攪拌転動造粒方式では重

Table 1 炭化珪素 (SiC) スプレードライ造粒品
真密度: 3.21 g/cm³

試料名	使用バインダー	顆粒平均径 [μm]	原料平均径 [μm]	ゆるめ嵩密度 [g/cm ³]	かため嵩密度 [g/cm ³]	崩壊開始強度 [kgf/cm ²]
A	PVA濃度大	60	0.46	0.90	1.05	5.8
B	PVA濃度小	60	0.46	0.90	1.05	3.5
C	PVA濃度大	20	0.46	0.70	—	5.0
D	PVA濃度小	20	0.60	0.70	—	3.8
E	アクリル系濃度大	60	0.46	0.94	1.10	11.0
F	アクリル系濃度小	60	0.46	0.94	1.10	2.9
G	アクリル系濃度大	20	0.46	0.70	—	8.0

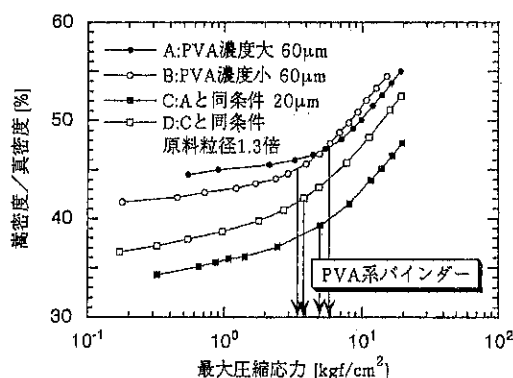


Fig. 11 SiCのスプレードライ造粒体の圧縮特性 (PVA系バインダ)

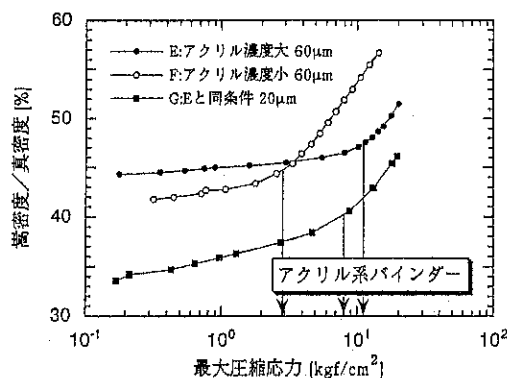
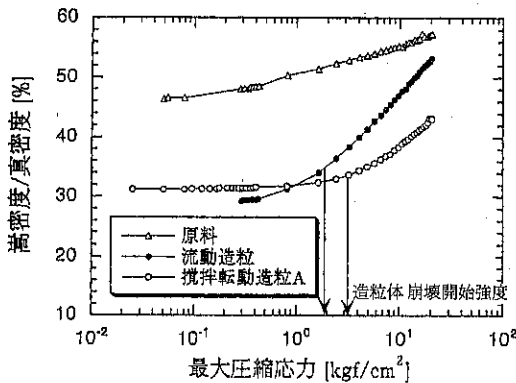


Fig. 12 SiCのスプレードライ造粒体の圧縮特性 (アクリル系バインダ)

Table 2 乳糖、コーンスターチ (7.3) 標準処方物

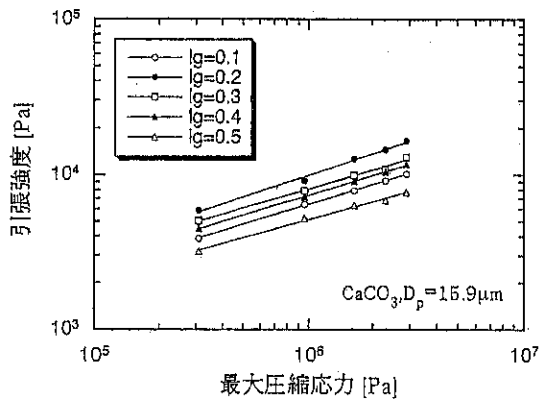
試料名	バインダー濃度 [%]	顆粒平均径 [μm]	原料平均径 [μm]	真密度 [g/cm^3]	崩壊開始強度 [kgf/cm^2]
流動造粒顆粒	7	408	52.2	1.40	1.9
攪拌転動造粒顆粒A	7	410	52.2	1.40	3.2
攪拌転動造粒顆粒B	10	415	52.2	1.40	4.9

Fig. 13 乳糖、コーンスターチ造粒体の圧縮特性
造粒方式の影響

質で粒度のそろった造粒体が得られる』ことから理解できる。

尚、この造粒体は打錠用顆粒であり、最終的に錠剤にされた時のその平均強度は攪拌転動造粒方式では 6 kgf、流動造粒方式では 5.2 kgf であり、上記の崩壊開始強度の傾向と同様であった。最後に Fig. 14 に攪拌転動造粒顆粒 A の条件に対し、バインダーの濃度のみを高めた攪拌転動造粒顆粒 B の結果を示す。顆粒の崩壊強度は濃度を高めたことで増大していることが判る。また図中に示すように、本サンプルについては圧縮試験を 5 回行ってみたが、良好な再現性が得られた。

以上の例のように、スプレッドライ法や流動層造粒法などで製される造粒体の圧密による崩壊強度の測定に本システムが有用であると考えられる。これはこの種の造粒体の崩壊強度とアグロボットの測定レンジがマッチしているためで、精度の高い評価が可能となる。

Fig. 14 乳糖、コーンスターチ造粒体の圧縮特性
の再現性

4. 終わりに

アグロボット自動計測システムは従来の機種と比較して測定レンジが広く、乾粉・湿粉を問わず粉体層の圧縮・引張破断特性を安定して測定することができます。

特に、最大圧縮応力、引張強度、破断エネルギー等の測定値に基づいて造粒特性を把握してゆくのに最適な測定器であると考えている。

尚、本システムは弊社技術開発センター（大阪府枚方市）に設置され、客先テストに対応しているので御利用いただければ幸いです。

参考文献

- 1) M. Takaoka and I. Sekiguchi: AGGLOS 要旨集, 796 (1993)
- 2) 井上, 辻本, 横山: 粉体工学会秋期研究発表会講演要旨集, 11 (1993)
- 3) Stanley J. Lukasiewicz and James S. Reed: Ceramic Bulletin, 798 (1978)

粉体塗装用定量供給機の開発

粉体工学研究所*

1. はじめに

近年、にわかに地球の狭さと、環境不安が現実の問題として急浮上してきた。その中の1つとして塗装業界が挙げられる。

今まで使用してきた溶剤塗料の大部分が環境汚染、毒性、安全性などの理由で、水系や粉体塗装などの低公害塗装系に移行する傾向が出てきたのは必然的であると思われる。

日本は大陸諸国と比べると河川の長さが短く、周囲を海に囲まれている地理的状况から、廃水や大気に放出・拡散する化学物質が生活圏に滞留する時間が比較的短く被害が表面化しにくいので、環境に対する規制がゆるやかである。しかし、溶剤を用いた塗装の減少が欧米諸国で進んでいる以上、近い将来日本でもなんらかの形で規制が強められる事が予想される。

現在、当社ではE S B事業部が粉体塗装のシステムを取り扱っており、客先の高いニーズに伴い、高精度な塗膜形成を行えるシステム化が必要とされてきている。高精度な塗装を行うには、高いレベルでの供給・搬送等が必要である。この度、そのニーズに応えるべく省エネルギーで駆動部が無いエア式定量供給機を開発したので報告する。

2. 装置の構成

本機は、Fig. 1 に示す様に塗料面の高さの変動による塗料の定量供給性に影響を与えない様、常に一定レベルで保つオーバーフロー式流動層タンクに設置し、リサイクル粉・新粉の供給によるタンク内の静圧変動にも対応し、環境に左右されない状態で安定供給されるシステムになっている。Photo. 1, 2に納入事例を示す。ラインを挟んで1タンクづつ設置され、供給機は9本づつ配置さ

れている。各供給機の吐出量は、ワークの形状により集中管理制御ユニットにて管理されている。

Fig. 2 に本機の構造を示す。下部にてスパイラル流を発生させ、圧力の低い上部へ塗料を巻き上げながら、パイプ下部で濃度を保ち、エジェクター部へ搬送する。スパイラル流は塗料を適当に分散させる効果があり、従来の方式より塗料の帯電効率が増している。一般的にエジェクター方式を用いると吸い込み量によって塗料供給量が決定され、少ない空気量で大量の塗料を安定搬送する事は困難である。そこで本機は流動層内からエジェクター方式で引き上げるのではなく、上記に述べた方式で押し上げ、更にガン先へ搬送する特徴を持っている。ま

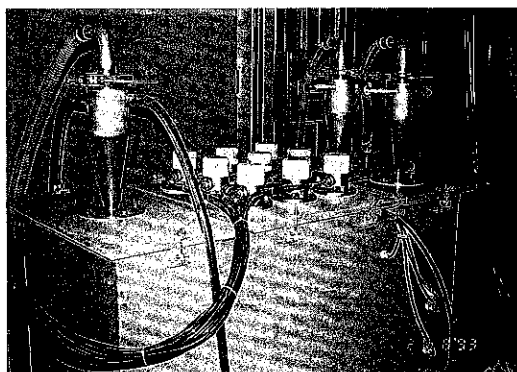


Photo. 1 納入した供給機システム



Photo. 2 納入した供給機群

* ホソカワミクロン㈱技術本部 粉体工学研究所
(〒573 大阪府枚方市招提田近1-9)
Tel(0720)55-2220

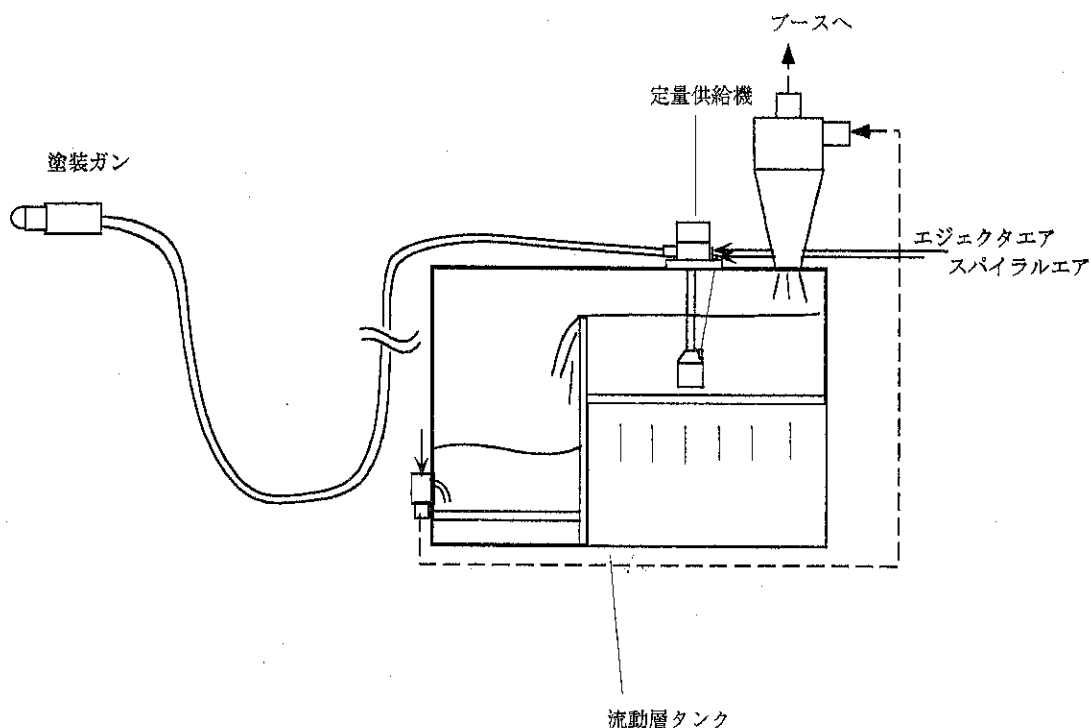


Fig. 1 供給システムフロー

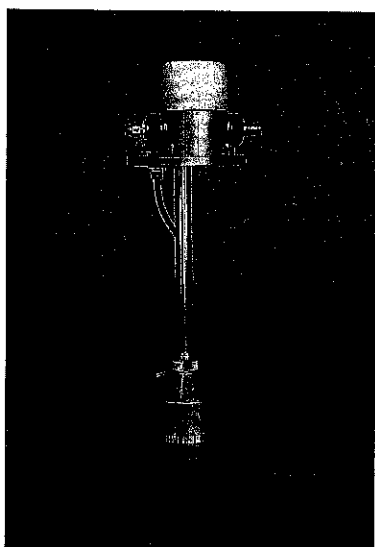


Photo. 3 供給機外観

た、吸引量と搬送量のバランスが取れないといわゆる息継ぎと呼ばれる脈動現象の原因となる為、搬送できない塗料はエジェクター上部へ逃がし、少量エアによる安定した適量の塗料供給を可能としている。

Photo. 3 に外観を示す。内部、外部共に耐磨耗対策を施しており、更に付着も非常に少ない特徴も持ち合わせている。

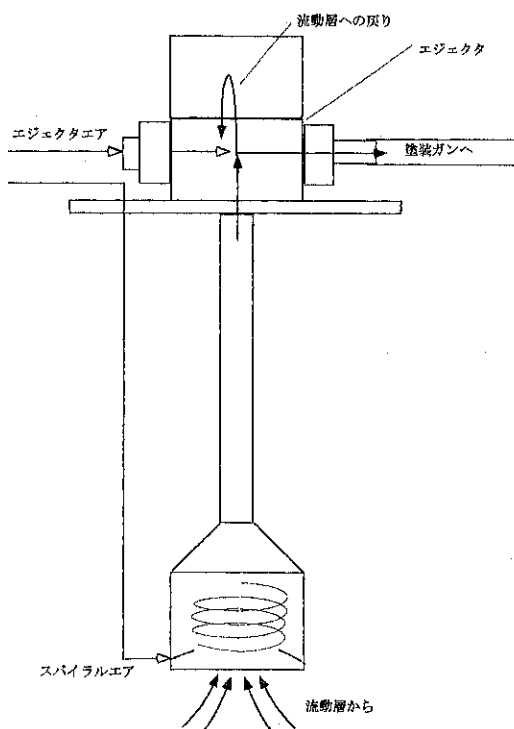


Fig. 2 供給機構造図

Fig. 3に従来のエジェクター方式とガン先エア量の比較を示す。少ないエアで搬送が可能となり、ガン先での塗料の吐出パターンがやわらかく、更に吐出スピードが遅いため塗着効率が従来方式と比べ5～10%程度向上している。塗料の供給量は、スパイラルエアによる塗料搬送量、ガン先への搬送エア量、更にオーバーフロー部流動層高さ制御板によりコントロールすることができ、最適な吐出状態を作り出すことを可能としている。

3. 本機の特性テスト結果

Fig. 4にホース長さによる吐出量と搬送エア圧力の関係を示す。5 m程度の搬送ホースを用いて最大500g/min程度の吐出量が得られている。また、納入事例としてホース長さ13mで350g/minの安定した供給で稼動している。

Fig. 5にロングランテストの結果を示す。塗装ブースとタンクを閉回路とし、吐出量の誤差は±2%以下という結果を得ている。

Fig. 6に流動層タンク内、ガン先、被塗装物表面の粒度分布を示す。各粒度分布とも同傾向の分布であり、供給機による粒度の変化がないことが判る。この結果から、塗装を行う事により細かい側に粒度分布が推移せず、回収粉も新粉と同様の設定で十分使用できると考えられる。

4. 終わりに

以上、粉体塗装用定量供給機について簡単に紹介した。本機は今後さらに高精度化していくであろう粉体塗装の重要な装置の一つとして位置づけられていくものと予想する。しかし、ニーズは常により安定した供給とメンテナンスフリー化した全自動システムを志向しており、これらの実現に向けて今後も研究開発を進めていきたいと考えている。

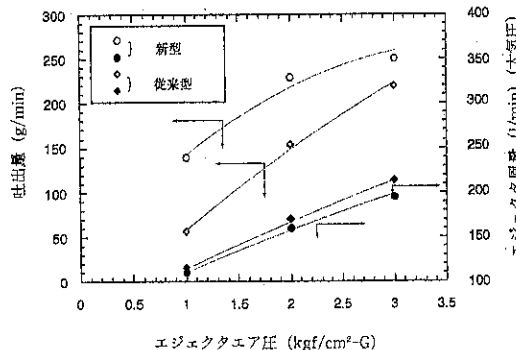


Fig. 3 エア圧力と吐出量の関係

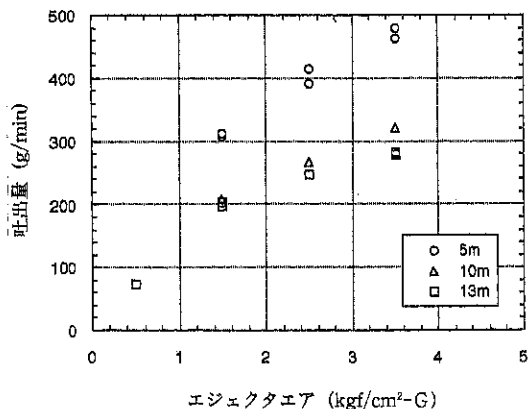


Fig. 4 ホース長の違いと吐出量の関係

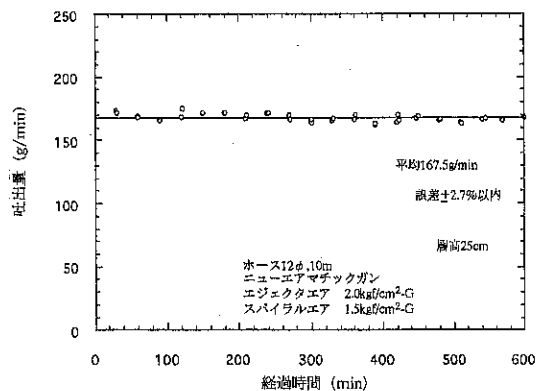


Fig. 5 ロングランテスト結果

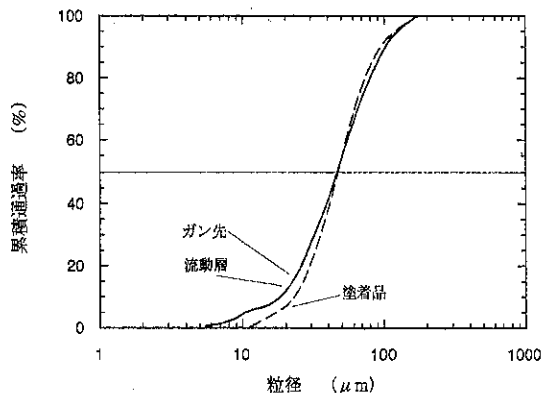


Fig. 6 主要部分での粒度分布

ファイントロン FT型 (FINETORON)

技術開発グループ*

1. はじめに

粉体を扱うプロセスにおいて供給はプロセスの性能にも影響を与える非常に重要な操作の一つである。そのため従来よりいろいろなタイプのフィーダが考案されているが、付着性の強い原料や見かけ比重の非常に軽い原料では架橋現象などにより定量安定供給ができないなどの問題がしばしば起こる。

今回開発されたファイントロンFT型は、軸方向に微振動するスクリュと、ホッパ内を揺動運動するアジテータの独特な機構の組み合わせにより、従来供給が困難であったような原料も定量安定供給できる高性能なフィーダである。

また分解が容易である、計量機との組み合わせに適しているなどの特徴を備えている。

2. 構造

Photo.1に装置の外観を、Fig.1に構造を示す。

ホッパ内のアジテータは、ホッパ底部を揺動運動し、ホッパ内のブリッジの防止、粉体の性状の安定化、スクリュへの粉の安定した充填を行う。スクリュはコイルスプリング形状で、通常の回転とともにスクリュ自身が軸方向に微振動する。この微振動により粉体とスクリュとの摩擦係数が低下し、付着性の強い原料も付着による回転運動を起こすことなくスムーズに供給される。

他のフィーダのブリッジ防止機構の場合計量機との組み合わせにおいて問題を起こす場合があるが、ファイントロンの場合のスクリュの微振動はスクリュ自身だけで、また水平方向であり計量機への影響が殆んどない。

ホッパ部を分解する場合、アジテータのボルトを外しアジテータを取り外し、ホッパを固定している4個のノブボルトを外せばホッパ部は簡単に分解することができ清掃が楽に行える。

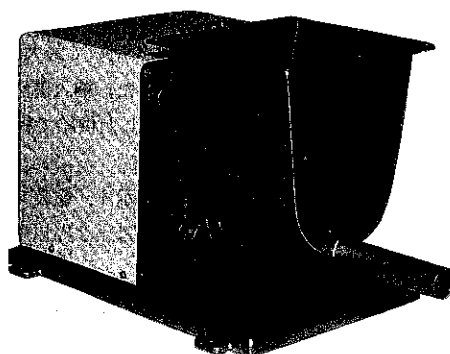


Photo.1 ファイントロン本体

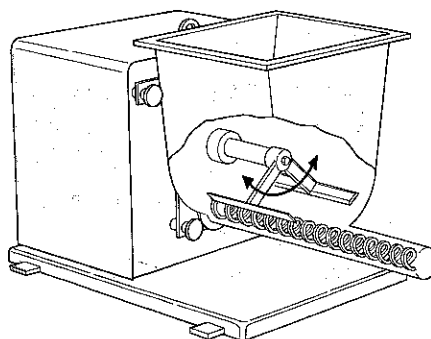


Fig.1 ファイントロンの内部構造

3. 特長

- 1) 安定・高精度供給ができる。
- 2) 付着性の強い原料、非常に見かけ比重の軽い原料など従来のフィーダでは困難であったものも安定供給ができる。
- 3) 分解清掃が容易である。

* ホソカワミクロン㈱技術本部
(〒573 大阪府枚方市招堤田近1-9)
Tel. (0720) 55-2231

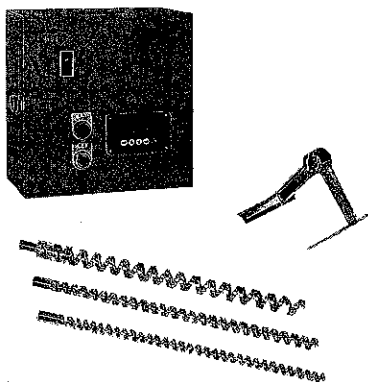


Photo. 2 コントローラ, スクリュ, アジテータ

- 4) 計量機との組み合わせ特性に優れている。
- 5) 超微量供給から ton/hr のオーダの供給まで幅広い能力モデルを備えている。
- 6) 遠隔操作ができる。

4. 供給例

4種類の原料を用いてフィーダの定量性と能力を測定したデータを Table 1 に示す。

Fig. 2～5 は、10回サンプリング(計量1分間/1回)を行いその平均値と各サンプル量とのバラツキを示したものである。タルクやセメントのように扱い易い原料では $\pm 0.6\%$ 以内に、炭カルの微粉の場合も $\pm 0.8\%$ 以内にはいる結果が得られた。また、通常のフィーダでは安定運転が困難な酸化チタンの場合においても $\pm 3.0\%$ 以内のバラツキにおいて連続安定供給が可能であった。

Table. 1 ファイントロンによる供給例

原 料 名	平均径 [μm]	かさ密度 [g/cc] ゆるみ/固め	能力範囲(kg/hr) スクリュ回転数 20-120rpm	供給精度 [%]	$3\sigma/X_{AV}$ $\times 100$ [%]
炭 酸 カ ル シ ウ ム	5.0	0.52/0.99	38～143	± 0.7	0.84
タ ル ク	45	0.59/1.13	53～210	± 0.75	0.68
酸 化 チ タ ン	0.5	0.68/1.03	26～112	± 2.9	2.92
セ メ ン ト	19	0.94/1.62	75～328	± 0.6	0.68

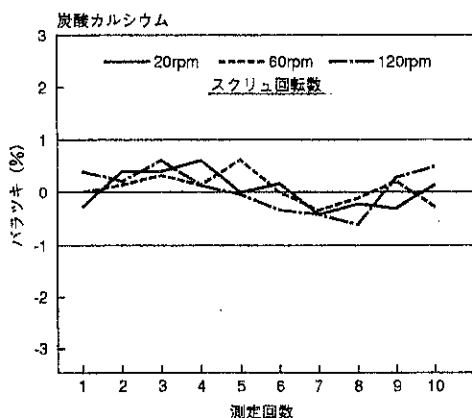


Fig. 2 供給量のバラツキ

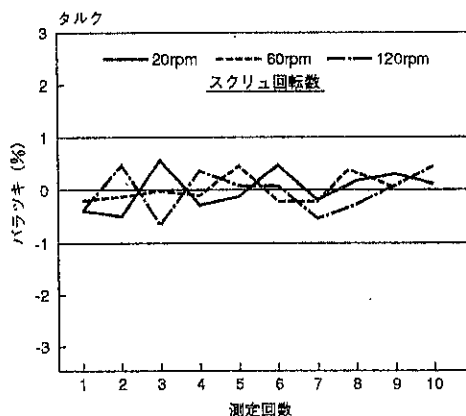


Fig. 3 供給量のバラツキ

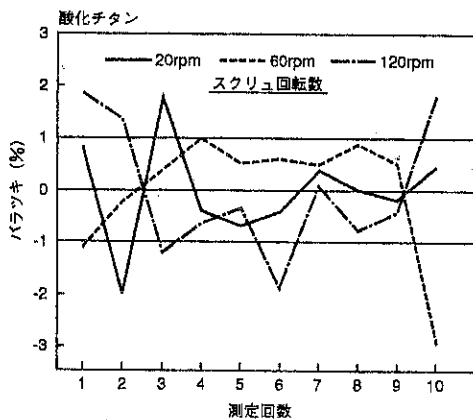


Fig. 4 供給量のバラツキ

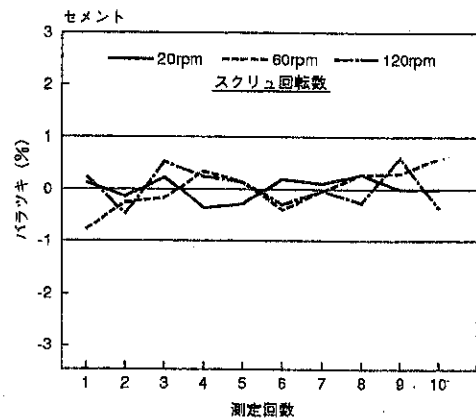


Fig. 5 供給量のバラツキ

5. 仕様

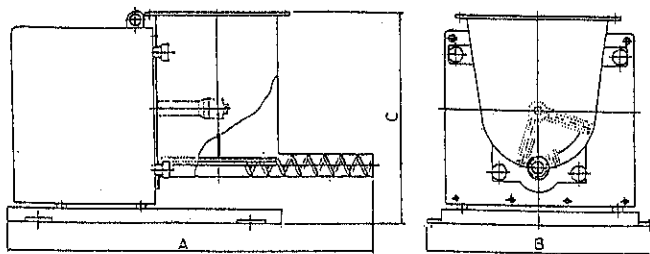


Fig. 6 ファイントロン外形図

粉接部材質	SUS304
スクリュ回転数	20~120rpm インバータにより変速
スクリュ振動数	30Hz
スクリュ振幅	1.5mm
アジテータ揺動速度	スクリュと連動
	スクリュ回転数の1/6.7
アジテータ揺動角度	56°
モータ	スクリュ/アジテータ用 0.4kW
	振動用 40W

Table. 2 能力および寸法

型 式	FT-10	FT-15	FT-20	FT-25	FT-40	FT-50	FT-75	FT-100
スクリュ径 (mm)	10.0	13.0	19.1	25.4	38.1	50.8	76.2	101.6
概略供給能力 (ℓ/hr)	0.6	1.3	4	11	43	110	360	960
	3.6	7.7	24	66	260	660	2170	5750
概 略 寸 法	A	636	636	796	796	896	946	1046
	B	484	484	484	484	484	484	484
	C	505	505	505	505	505	505	505

6. 計量機との組み合わせ

計量機と組み合わせて、ホッパ内の原料の減少量より供給量を算出しコントロールするロスインウェート方式によりさらに精度の高い安定供給が出来る。

〔納入事例〕

1) 概要

Fig. 7 は、ベルトコンベアで搬送されている食品の上に添加物を連続的に微量供給するためにロスインウェート方式を採用した例です。微量供給のために計量機はファイントロン本体重量を機械的にキャンセルする機構を備えておりホッパ内の原料の重さだけを測定し、その減

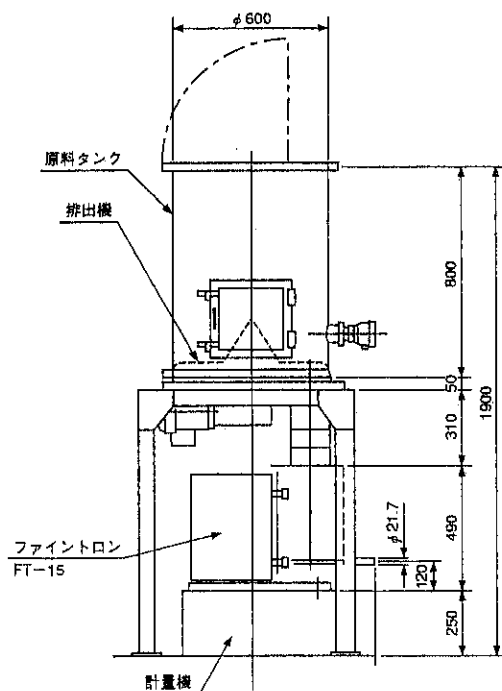


Fig. 7 ロスインウェート方式による供給装置

量の程度により供給量を算出し、設定値になるようコントロールする。

ファイントロン上部にはテーブルフィーダ型排出機を備えた原料タンクが設置され、ファイントロンホッパ内の原料が常に最低量以上あるように原料が補充される。

なお原料は当社振動式スクリュフィーダでも連続供給ができない程困難な物であった。

2) 要求仕様

供給量 34~80g/min

供給精度 $\pm 10\%$

3) 計量機仕様

型式 減量式定量供給制御装置

秤量 3 kg

秤量単位 間隔/読取 0.002kg/0.002kg

秤量範囲 0.008~3 kg

静荷重精度 $\pm 1/1500\text{FS}$

重量検出機 ロードセル 1点支持

4) 運転データ

Fig. 8 は運転データの一例で、計量制御を行わなかった場合時間経過と共に供給量が大きく変わるが、制御を行うことにより要求仕様内にはいる安定供給ができた。

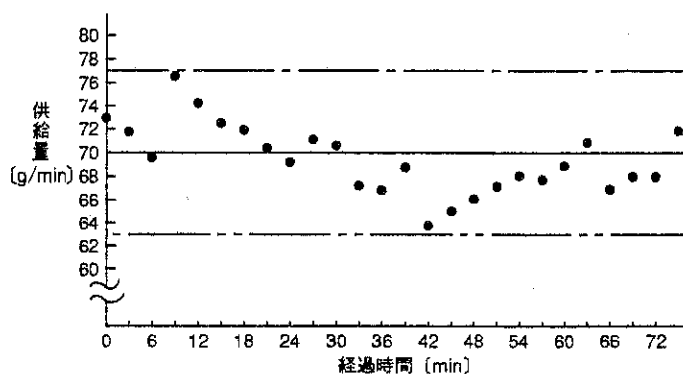


Fig. 8 ロスインウェート方式による供給例

高性能排出機

サイクロネータ CYN型

技術開発グループ*

1 概要

粉体を貯蔵タンクから引出し、次のプロセスに供給する装置として従来より、振動を利用した装置や、回転羽根を回転させる事により排出させる装置が用いられている。

近年計量排出や、自動制御のために多くの複雑な制御装置が使用されるようになり、それらに影響を与えない排出機が要求されると共に、貯蔵タンクの全高を低くして、スムーズに粉体を排出させたい要求が高まってきている。

サイクロネータは、独特の機構により低い動力で、プ

Table. 1 ホソカワミクロンサイクロネータの仕様

型 式 ・ 寸 法	CYN-8	CYN-12	CYN-15	CYN-18	CYN-20
A	812	1212	1518	1818	2024
B	280	430	570	630	730
(排出口径) C	□150	φ220	φ220	φ390	φ390
D	360	420	420	480	480
モータ kw	0.75kw. 4p	1.5kw. 4p	1.5kw. 4p	2.2kw. 4p	2.2kw. 4p
偏心軸回転数 RPM	20	20	20	20	20
概略最大能力 M ³ /Hr	5	10	10	25	25

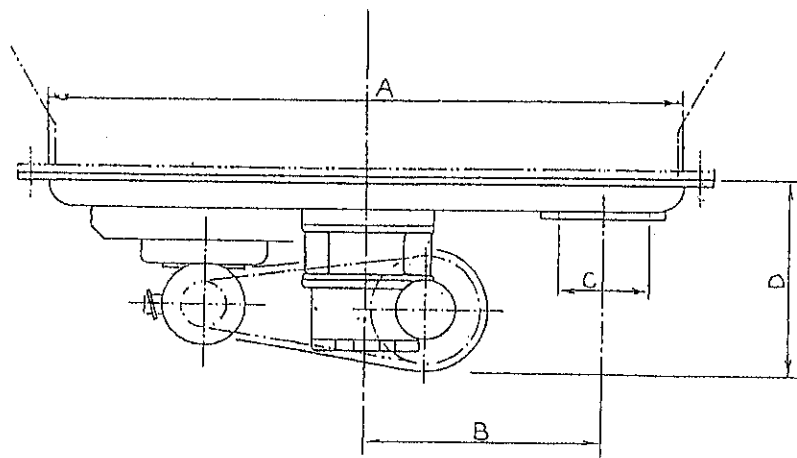


Fig. 1

* ホソカワミクロン株式会社 技術本部
(〒573 枚方市招堤田近1-9)
Tel. (0720) 55-2231

リッジ、アーチングなどの現象を防止しながらスムーズに排出させることができる排出機である。

2. 特 長

車輪型ロータを偏心軸の回転により、ハイポサイクロイド型遊星運動を行なわせる事により、ロータは揺動運動と共に、粉体自身の抵抗力の差により自転運動を行ない、自転と公転の複雑な動きにより、ブリッジ、アーチング、ラットホールなどの現象を防止しながら、スムーズに排出させることができる。

ロータを直接回転させる従来の装置と異なり、粉体自

身の物性に応じた最適な自転運動を行なうため、無駄な攪拌を行わず、粉体物性を損なう事が少なく、省エネ型排出機である。

3. 標準仕様

装置の標準仕様の一部を Table. 1 および Fig. 1 に示す。

4. 適用例

次工程のプロセスに応じ、当社製のロータリバルブや、定量供給機を組合せて運動させる事が簡単にできる。一例を Fig. 2 に示す。

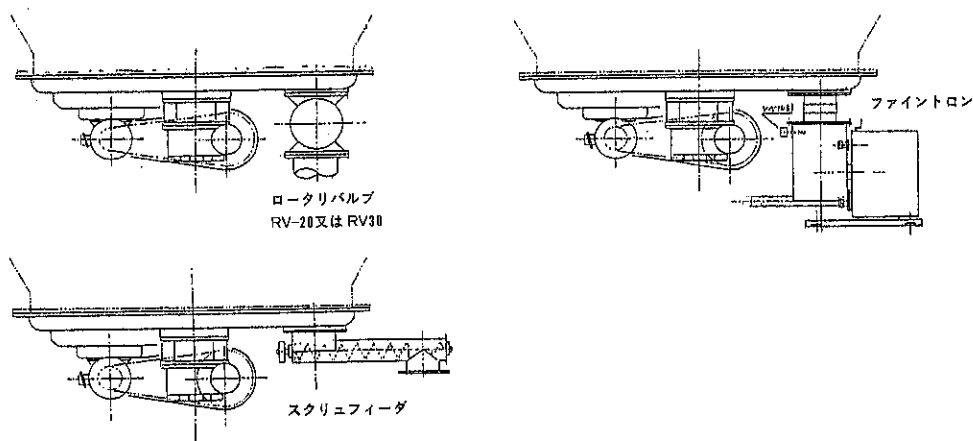


Fig. 2 ホソカワミクロンサイクロネータの適用例

コンテナアクチベータ

(CONTAINER ACTIVATOR)

技術開発グループ*

1. はじめに

粉粒体の輸送用にフレキシブルコンテナ（以降フレコンと呼ぶ）という大型の袋が良く用いられる。しかし、内容物を取り出すときはクレーンで吊って置いて底部の紐を解き、出にくい場合人手で押したり揺すったりして排出するのが従来の方法である。その場合、重いフレコンの下での作業が非常に危険であり、また、粉塵の発生により作業環境は非常に悪い場合が多い。

これらの問題を解決するために、最近当社で開発したコンテナアクチベータについて紹介する。

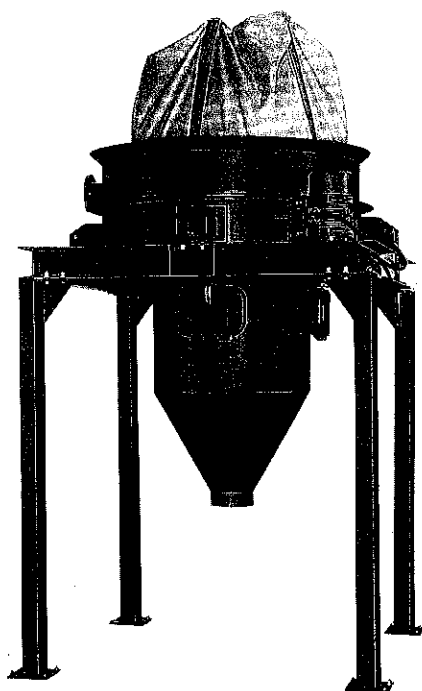


Fig. 1 架台付コンテナアクチベータ

2. 構造

本体はフレコンを載せる上部ケーシングと下部のシュート部からなり、防振ゴムを介して架台に設置されており振動により本体全体が水平方向に細かく振動する。それによりフレコンの内容物がスムーズに排出される。シュート部の上部には紐を解くためのハンドホールがある。上部ケーシングと下部のシュート部には除塵用ダクト接続フランジがあり、それらを除塵機と接続することにより外部への発塵が防止できる。

さらに、底部に排出口がないワンウェイバッグ（使い捨てバッグ）の場合にも、ケーシングの内側にバッグカッター（オプション）をセットすることにより簡単に排出させることができる。

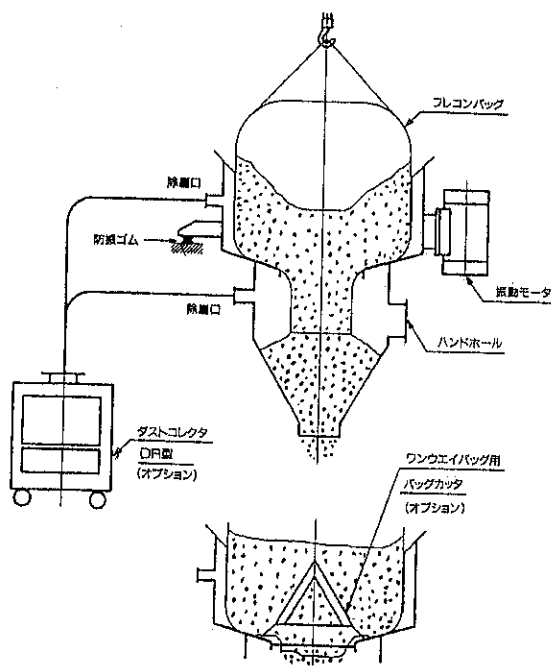


Fig. 2 コンテナアクチベータの構造

* ホソカワミクロン株式会社技術本部
(〒573 大阪府枚方市招堤田近1-9)
Tel. (0720) 55-2231

3. 操作方法

この装置の排出操作は簡単である。

- ・クレーンなどによりフレコンを吊り下げコンテナアクチベータの上部ケーシングへ載せる。
- ・除塵装置を動作させる。
- ・ハンドホールからフレコン底部の紐を解く。
- ・振動を与えることによって、内容物を排出させる。

ワンウェイバッグの場合

フレコンをバッグカッタの上に降ろすだけで底部は切り裂かれ、その後振動を与えることにより排出することができる。

4. 特徴

- ・流動性の悪い、取扱の困難な粉粒体でも容易に安全に排出することができる。
- ・フラッシングが起こりやすい原料でも安全に排出することができる。
- ・フレコン直下の作業がなく安全である。
- ・外部への発塵が起こらず作業環境がよくなる。
- ・各種機器との接続が容易である。

5. 適用例

- ・直接原料タンクや混合機へ投入。
- ・空気輸送装置と組み合わせ遠方へ輸送。
- ・供給機との組み合わせ。

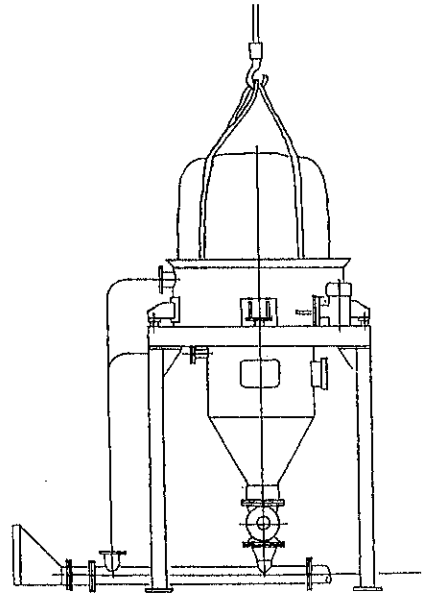


Fig. 3 空気輸送装置と組み合わせた例

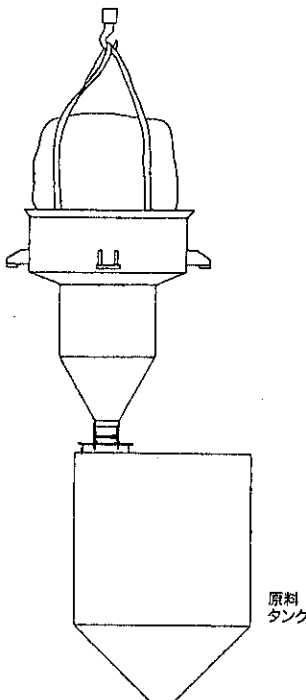


Fig. 4 タンクへの投入例

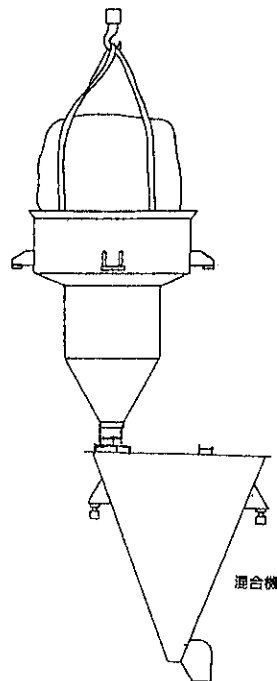


Fig. 5 混合機への投入例

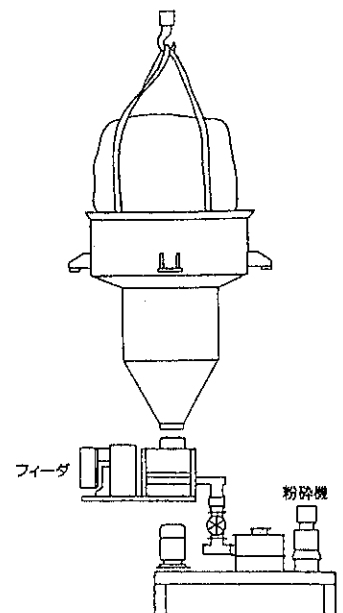


Fig. 6 フィーダと組み合わせた例

6. 標準仕様

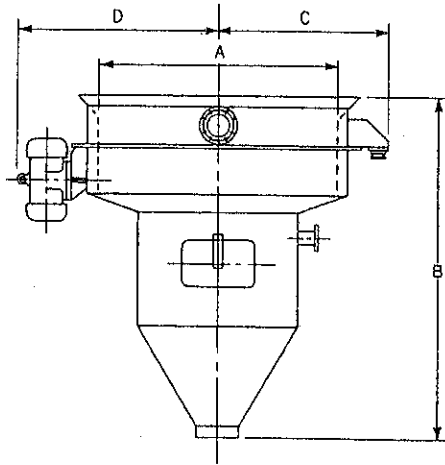


Table 1 コンテナアクチベータの仕様

形 式		CA-10	CA-12	CA-15	CA-17	
振 動 モ ー タ	kW	0.4	0.4	0.75	0.75	
適用フレコン直径	mm	800	900	1000	1300	
		900	1100	1400	1600	
概 略 重 量	kg	340	380	450	500	
概略寸法	A	mm	1000	1200	1500	1700
	B	mm	1711	1750	1805	1841
	C	mm	750	850	1000	1100
	D	mm	902	1002	1216	1316

特許一言メモ No. 145

一韓国工業所有権四法改正要旨一

韓国工業所有権四法改正法律案が93年12月国会で通過、94年1月より施行された。各法律別主要改正内容は次の通り。

A. 商標法

- (1)更新出願時の使用証明提出制度を廃止した。ただし、登録商標が3年以上不使用の不使用取消審判制度は存続するので登録商標の管理に注意を要する。
- (2)商標更新登録出願の期間、満了前1年に加え、満了後6ヶ月の猶予期間を設けた。
- (3)不使用取消審判請求人に、審決確定日または当該登録商標の放棄日から3ヶ月間の出願優先機会を与えた。
- (4)要旨変更された商標が登録された場合の取扱規定を新設。

B. 意匠法

- (1)94年1月以降出願の意匠権の存続期間を8年から10年

に延長した。

- (2)意匠権の実施権の範囲を類似する意匠にまで拡大し、侵害行為も類似意匠物品の生産にのみ使用する物品を業として実施する行為も、権利侵害したものとみるように改正。

- (3)単独意匠または類似意匠への出願変更期間を、最初の出願または類似意匠出願の査定、または審決の確定まで拡大した。

C. 特許法および実用新案法

今回、工業所有権4法全部が改定されたが、特許法および実用新案法に対しては刮目すべき改正はなかったので以下省略。

(“News Letter KOREA” Feb.15.'94より抜粋)

(特許室)

粉体工学研究所の測定室紹介

粉体工学研究所*



Fig. 1 測定室の一角

細川粉体工学研究所は昭和33年9月に設立され、以来長年に亘って粉体の基礎研究、関連機械装置、ならびにシステムの新製品開発・研究に従事いたしております。

当測定室では開発研究に伴う測定や社内で依頼される試料の測定ならびに社外からの依頼測定にも対応できる体制を整えております。

近年、受託測定会社が増加しておりますが、当測定室では粉体を対象として様々な物性測定を行っていることが特長となっています。

粉体の物性測定におきましては、測定前の前処理技術から測定機種を選定、機器の操作、結果の検討まで熟練した技術と経験が必要となります。当測定室では長年の豊富な経験やノウハウを生かして粉体測定を専門的にっております。

測定粉体の種類は多種類におよび、鉱物、食品、医薬品、プラスチック、塗料、金属、セラミックス、トナー、JISの標準ダスト等があげられます。

特にJISの標準ダストは(財)日本粉体工業技術協会の委託を受けて八幡分室で製造されていますが、粒度分布が規格内に入っているか非常に注意をはらって測定しております。

測定項目は大きくわけて、粒度分布、水分、流動性、付着力、写真、比表面積、真比重等があげられ、それぞれの測定に使用している装置をTable 1に示します。

以下にそれぞれの測定機の主なものについて自社で開発した製品を中心に紹介致します。

* ホソカワミクロン(株) 技術本部

(〒573 大阪府枚方市招提田近1-9)

Tel. (0720) 55-2220

Table 1 当社で測定できる主な項目

測定項目	装置名
粒度分布	コールターカウンタ マイクロトラック セジメントグラフ アンドレアゼンピペット 篩分
比表面積	ベット法、ブレーン法 恒圧通気法
水分	赤外線水分計 恒温槽 カールフィッシャー
写真	走査型電子顕微鏡 透過型電子顕微鏡 光学顕微鏡
流動性	パウダテスタ
付着力	コヒテスタ、アグロボット
真密度	ピクノメータ
帯電量分布	イースパートアナライザ
浸透速度	ベネトアナライザ
白度	光電白度計
水素イオン濃度	pH 計
粘度	オストワルド法 回転式粘度計

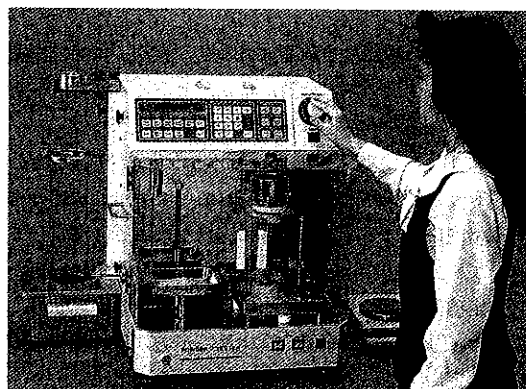


Fig. 2 パウダテスタ

1. パウダテスタ (Fig. 2)

パウダテスタは粉体の基本的な特性値、安息角、ゆるみ見掛比重、かため見掛比重、圧縮度、スパチュラ角、凝集度、均一度、崩壊角、分散度、差角を測定し、総合評価として流動性と噴流性が求められます。パウダテスタの用途は粉体プロセスの設計や製品の品質管理に中広

く使用されています。

測定手順は、液晶パネルに対話形式で表示されるので操作性に優れ、測定値はマイクロコンピュータによって自動演算されます。



Fig. 3 コヒテスタ

2. コヒテスタ (Fig. 3)

コヒテスタは粉体層の付着力を測定する装置で、貯槽内における粉体の凝集、固結現象の評価、表面改質の効果判定、品質管理等に中広く応用できます。測定はストレーンゲージで検出した引張応力と差動トランスで検出した変位が応力変位曲線として描き出されると同時に最大引張応力、破断距離、引張エネルギーがコンピューターで演算されてプリントアウトされます。

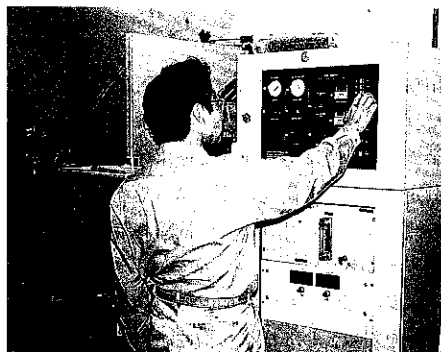


Fig. 4 イースパートアナライザ

3. イースパートアナライザ (Fig. 4)

イースパートアナライザは空気振動場における粒子の運動からレーザードップラー法によって粒度と帯電分布量を同時に測定する装置で、電子写真用トナーや粉体塗料等の帯電現象の研究や品質管理に利用されています。

データとしては、粒度分布、 q/D 分布、粒径別の帯電量分布等が任意にプリントアウトされます。



Fig. 5 ペネトアナライザ

4. ペネトアナライザ (Fig. 5)

ペネトアナライザは媒液が粉体層へ浸透する速度から粉体の濡れ性や接触角を測定する装置で、粉体の液中への分散性や表面改質の評価、紙、繊維などへの液体の浸透速度の評価に応用されています。

測定においてはまず、試料をセルに充填し、電子天秤につり下げます。次に測定媒液を受皿に入れ、昇降装置により、上昇させてゆくと、粉体層の下部に液面が接触し、粉体層に媒液が浸透してゆきます。その時重量増加と時間のデータをコンピューターで演算し、結果がプロットアウトされます。



Fig. 6 セジメンピュータC型

5. セジメンピュータC型 (Fig. 6)

セジメンピュータC型は遠心沈降式の粒度分布測定装置です。遠心沈降式の粒度測定機は一般に光やX線で粒子濃度の変化を検知して粒度を測定しますが、セジメンピュータC型は遠心沈降に伴うサンプル懸濁液の重心移動を検知して粒度分布を測定します。光を使用した測定機の試料濃度は低濃度であるのに較べセジメンピュータC型の試料濃度は高濃度で測定できます。このため、データも安定し、試料を薄めずに粒度を測定できるメリットもあります。

また、高濃度のスラリーの安定性や凝集状態を評価することができるのも大きな特長です。

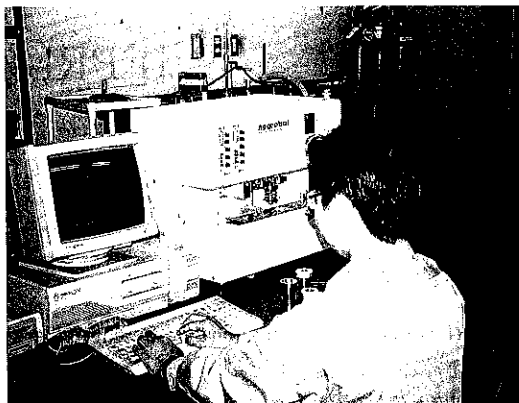


Fig. 7 アグロボット

6. アグロボット (Fig. 7)

アグロボットはコヒテスタと同様に粉体層の付着力を測定する装置で、粉体の凝集や固結現象の評価、あるいは表面改質の効果判定等に応用できます。

コヒテスタと異なる特徴は垂直引張破断方式を採用し、試料を投入すれば、圧縮試験から引張試験まで全自動で測定されます。また、圧縮力が最高100kgfまでと、コヒテスタに比べ高圧荷重をかけることができ、またソフトの充実により各種の解析結果が得られます。

当測定室では、測定に関するコンサルタントも行っておりますので、気軽に御相談下さい。また、粉粒体機械に関する御相談につきましては営業部及び技術部を紹介致します。

当測定室は常に正確なデータを迅速に提供できる体制を維持するとともに、今後も測定内容を拡張し、御依頼者に満足いただけるようにさらに充実化を図ってまいります。よろしくお願いいたしますので、よろしくご利用頂ければ幸いです。

IFPRI の近況報告

横山 豊和*

Toyokazu Yokoyama

1. IFPRI とは

IFPRI (International Fine Particle Research Institute: 国際微粒子研究協会) については既に粉体工学会誌等で何度か報告されているのでご存じの方も多いと思うが、本誌ではまだ報告されることがないのでここに改めて簡単に紹介し、その近況を報告する。

IFPRI は粉粒体工学・技術の分野における国際的な一種の研究組合組織で、1979年頃に米国の総合化学会社であるデュポンが中心になって創設されたものである。この組織の主な目的は粉粒体関連分野での基礎的な研究・技術の発展・進歩を目指した産学の交流と協力を推進することであり、会員会社からの会費を基にして、関心が持たれているテーマについて世界中のそれぞれの専門家に研究委託する形をとっている。1994年5月現在会員会社は Table 1 に示す29社で、その内日本企業は5社となっている。

ここで取り扱われる研究テーマは会員会社の意見を参考にして、IFPRI 技術委員会で選定され、年次総会での発表や研究報告書により厳しく評価され、その継続や中止が決定される。会員会社の要望はバラエティに富み、また、研究テーマの内容は粉粒体工学の広い分野にまたがっており、ある意味で世界の粉体工学の動向を伺うことができる。ただし、その研究内容の詳細については原則として1年間はクローズされることになっている。ここでは昨年の IFPRI の年次総会の研究報告に関連して研究テーマの方向性について簡単に紹介する。

2. IFPRI 第14回年次総会の概要

IFPRI の年次総会は年に1度米国または欧州で行われ、全会員会社のメンバーと関連研究者が一堂に会して研究発表や情報交換などの交流が図られる。また、IFPRI として新しいテーマの展開については、その分野の専門

家を招待して特別講演を依頼し、それが契機となって新しい研究プロジェクトが始まる場合も少なくない。

さて、第14回の年次総会は1993年6月27日(日)から7月1日(木)までロサンゼルス近郊の Pasadena 市にある Doubletree Hotel で行われた。6月27日(日)の参加登録、予備打合せ会議の後、28日(月)より3日間研究報告会、ポスター討論が行われ、最終日は研究報告に対する評価や今後の方針の検討が行われた。また、報告会の中日の午後には会場近くの2つの大学(カリフォルニ



Fig.1 研究評価検討会風景

それぞれの研究テーマに対して活発な論議がなされる。中央の座長席にみえるのは、技術委員会チェアマンの Dr. T. Taylor (Unilever)。



Fig.2 南カリフォルニア大学での見学風景。中央の案内役は、1990年第1回 KONA 賞を授賞した Campbell 教授。

* ホソカワミクロン株式会社 技術本部
粉体工学研究所

Table 1 IFPRI 会員リスト

(1993年4月30日)

	ヨーロッパ	アジア	アメリカ
1. Agfa-Gevaert NV	ベルギー		
2. Bayer AG	ドイツ		
3. AKZO Research bv	オランダ		
4. Alcoa International Ltd.			カナダ
5. Alcoa Laboratories			USA
6. British Nuclear Fuels	イギリス		
7. DSM Research bv	オランダ		
8. Dow Deutschland Inc.	ドイツ		
9. E.I. du Pont de Nemours			USA
10. Eastman Kodak Company			USA
11. Engelhard Corporation			USA
12. ECC International Ltd.	イギリス		
13. Exxon Research & Eng. Co.			USA
14. Fisons plc	イギリス		
15. ホロカワミクロン		日本	
16. 石川島播磨工業		日本	
17. Imperial Chem. Ind. plc	イギリス		
18. 三菱重工業		日本	
19. Mobil Research & Dev. Corp.			USA
20. 日清製粉		日本	
21. The Procter & Gamble Co.			USA
22. SCM Chemicals Inc.	イギリス		
23. Shell Research bv	オランダ		
24. 清水建設		日本	
25. 3M Company			USA
26. Tioxide Group Services Ltd.	イギリス		
27. Unilever Co.			USA
28. U.O.P.			USA
29. Xerox Corporation			USA

ア工科大学, 南カリフォルニア大学) の粉体工学関連研究室の見学を行った。

参加者は同伴者を除いて、企業関係50人余り(内日本人は7人)、大学研究所その他から約50人(同7人)と全体で100人余りで大学関係者が半分近くを占めた。今回ホソカワグループからは、MPSのDr.C.C. Huangと横山が参加した。発表件数は3件の展望講演と2件のコンサルタントレビューを含んで口頭発表が約30件あった。また、ポスターセッションでは、会員会社と大学関係者の両側からの発表があり、いずれにおいても活発な質疑応答が行われた。プログラムの詳細や日本からの参加者については京大の増田教授によって粉体工学会誌 Vol. 31, No. 1に報告されておりここでは省略する。

3. 研究報告の内容

IFPRI 研究テーマは現在のところ全体として大きく、①レオロジーと固液分離、②粉粒体流れ、③粒径微細化(粉碎)、④粒子生成、⑤粉粒体物性測定の5つの分野に

分けられている。全体的には基礎的な研究がほとんどであるものの、標準粒子の製造と評価といった実用的な面に重点を置いたテーマもいくつか見られる。

IFPRI では従来よりどちらかといえばスラリーの流動や分離に関する研究テーマに強い関心が示されていたが、次第に乾式粉体の流れや粉碎に関する研究の比率も増え、最近では粒子生成やシミュレーションといった方向にも力が入れられてきており、現在のところ上記の5つのカテゴリーでほぼバランスが取れている。

委託研究の内容についてみると最初のカテゴリーではスラリーのレオロジー特性に及ぼす粒子の凝集構造の影響などに関する理論ならびに実験面からの基礎的な研究と、固液分離に関するモデリングやスケールアップの問題などの比較の実用的な面からの検討が行われている。粉粒体の流れについては流動層やライザー中の粒子の動力学に及ぼす温度や粒度分布、気体物性あるいは電場の影響などが取り扱われている。粉碎に関しては単粒子衝突破砕テストやジェットミルの実験的基礎研究、粒子破

砕のコンピュータシミュレーションなどが行われている。粒子生成では気相、液相反応法ならびにアトマイズ法による粒子の生成メカニズムに関する研究が進められている。粒子物性関係では標準粒子の作製や分散、スラリー中の粒子特性の新しい光学的計測方法の検討などが見られる。

第14回の年次総会では前回に引き続き特にコンピュータシミュレーションに関する講演、発表が目立っており、阪大辻教授の粉粒体の挙動に関するセミナーやコンサルタントとしてのカナダのマクギル大学の Savage 教授のレビュー、南カリフォルニア大学の Campbell 教授による粒子破壊に関する研究報告など、それぞれこの分野での国際的なオーソリティによるプレゼンテーションが行われた。また、粒子特性のキャラクタリゼーションに関して、X線や光、電磁波、超音波等を用いて粉体プロセス内の粉粒体の挙動を把握するトモグラフィの応用研究や、剪断場での電界作用を利用したレオ・オプティカルな粒子特性評価方法あるいはフォースミクロスコピーを用いた非常にミクロなレベルでの付着力の測定に関する研究など様々な観点からの研究が紹介された。

ところで、前回の年次総会より会員会社等の参加のためにポスター展示が始まったが、今回 IFPRI では初めての試みとして、研究委託を受けている大学研究機関が中間報告を短い口頭発表以外にポスターセッションで重点的に行うことになった。出席者全員がいくつかのグループに分かれて、順番に各ポスターを回り、討論するという形式で準備がよくなされており、特に日本人にとっては直接に発表者に研究内容を詳しく質問しやすいとあって好評であった。

4. IFPRI 日本リーダーの交代

年次総会中のパンケットで京大名誉教授井伊谷先生が IFPRI 功労者として表彰された。先生はこれまで粉体工学の分野で日本の世界への進出について大きな役割を果たしてこられたが、この IFPRI 創始についても重要な貢献者の1人である。日本がこのような国際的な組織に参加し、ここまで日本メンバーの立場が向上してきたのは先生のご尽力によるところが大変大きいと思われる。先生

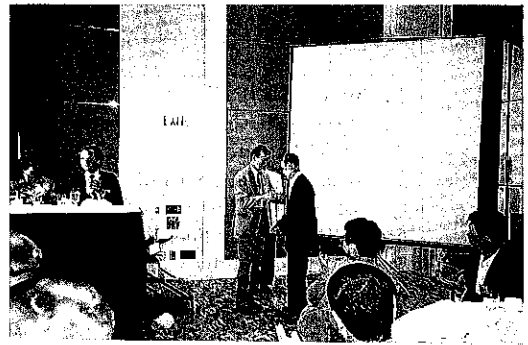


Fig.3 パンケットにて Ford 会長より井伊谷京大名誉教授に感謝状とともに記念品が手渡された。



Fig.4 米国屈指のカリフォルニア工科大学構内にて、向かって右から京大増田先生、田中達夫先生ご夫婦、筆者と Dr. C.C. Huang (Hosokawa Micron Powder Systems)

は IFPRI アジアブロックのアドバイザーをしてこられたが、一応今回で退かれることになった。そういう意味で今回は1つの大きな転換期になる感じがした。井伊谷先生の後を受けて名古屋大学名誉教授の神保先生がこの役を引受けられることになり、新たな展開が期待されている。この組織自体は元々欧米の企業と大学関係者が中心となり発展してきたものであるが、次第に日本会員の割合が増えてきたこともあり、今後さらにその役割が重要になってくるものと思われる。

—以上—

ホソカワ ニュース

◎東京支店移転（平成6年3月）

当社東京支店はサンシャイン60ビル内にありましたが、事業部門と管理部門が分散し効率が悪くなっていたことや、ビルの立地として必ずしも交通のアクセスがいいとはいえなかったため、平成6年3月、板橋区にある板橋センタービルに移転いたしました。同時に都内に分散していた関係会社3社（㈱メナルディ・クリスウェル・ジャパン、大正産業㈱及びホソカワエンタープライズ㈱）を同事務所に統合いたしました。



◎米子会社のリストラ（平成6年1月～3月）

米国内で環境保全機器の製造販売を行なう Hosokawa Environmental Systems は事務所を、平成6年1月、粉体機器・システムの製造販売を行なう Hosokawa Powder Systems（ニュージャージー州）内に移転・統合いたしました。また、ろ布の製造販売を行なう Menardi-Criswell は従来2ヶ所（オーガスタ／ジョージア州及びマッカレン／テキサス州）に分散して

いた工場を、新たに建設したトレントン（サウスカロライナ州）工場に集約し、本年3月より新工場で業務を開始いたしました。

◎独子会社ロシア向けにアルミニウム電解炉排ガス集じんシステム受注（平成5年12月）

当社ドイツ子会社 Hosokawa Mikropul GmbH（ケルン）はロシアよりアルミニウム精練工場の排ガス再処理装置を邦貨換算約10億円受注しました。これは電解炉からの排ガスを乾いた状態で粉状のアルミナに接触・吸着させ、乾式集じん機パルスエアで粉塵とともに捕集し、排ガス中よりフッ素をフッ化アルミとして回収し、再び原料とともに電解炉に戻す技術であります。ロシアにおけるアルミニウム精練工場近代化の第一号案件であり、今後更新の必要のあるロシアのアルミニウム精練工場のモデルとなるものと期待しております。

◎OTEMAS（大阪国際繊維機械ショー、平成5年11月）

平成5年11月11日～17日までの7日間、インテックス大阪において第5回OTEMAS（大阪国際繊維機械ショー）が開催されました。当社は樹脂乾燥システムを国内及び国外の繊維メーカーにPRするため今回初めて参加しましたが、当社コマへは国内外から7日間で770名にものぼる来場者があり、なかなかの活況を呈し充実した展示会となりました。



◎第27回粉体工学に関する講演討論会（平成5年8月）

平成5年8月26日、大阪科学技術センターにおいて恒例の粉体技術談話会主催「第27回粉体工学に関する講演討論会」が開催されました。今回は「造粒と粒子設計」をメインテーマとして講演と討論がなされましたが、当社からは横山研究所長が、平成4年に当社グループの一員となったビーベックス社の造粒技術及び新開発のアグロマスター等を中心に説明を行い、出席者の興味を引いておりました。

◎'93粉体工業展（平成5年7月）

粉体工業展が平成5年7月7日～10日の4日間、関西で初めて開催されました。全体では東京・晴海での展示会と比較すれば、出展会社数及び小間数とも半分程度の規模でしたが、当社への来場者は晴海と比べても遜色なく成功裡のうちに終了いたしました。

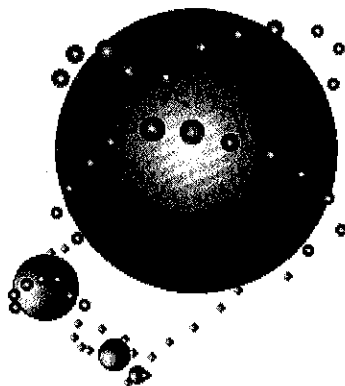
なお、当社の出展機種は以下のとおりです。

- ①ナウタミキサ NXV-1
- ②アグロマスタ（支援システムを含む）
- ③アグロボット
- ④ラボミキサ LV-1
- ⑤新型パウダテスタ PT-N
- ⑥ビーベックス造粒機器（ギヤーベレタイザ、ファーマパクタ、エクストルー・ド・ミックス他）
- ⑦コンテナアクチベータ
- ⑧ファイントロンFT型 等12機種
- ⑨関係会社メナルディ・クリスウェル・ジャパン
ろ布サンプル



◎アジア代理店会議開催（平成5年6月）

近年特に重要性を増しているアジア市場への積極的な販売展開をはかるため、韓国、台湾はじめとするアジア各国にある当社代理店及び当社香港支店等を中心に合計25名の出席者を集め「アジア代理店販売会議'93」が開催されました。新製品及び最新アプリケーションの研修、市場状況等に関する情報交換、さらには人的交流を通しアジア市場の重要性を再認識するとともに、拡販についての共通の認識をもつことができ有意義のうちに終了いたしました。



“粉砕”誌投稿規定抜萃

1. 原稿の種類

1.1 研究報告

粉体工学に関連する完結した研究で、他誌に未発表のもの。和文の著者摘録と英文要旨をつけて下さい。また図表の説明は英訳して下さい。なお、研究報告には査読があります。

1.2 技術報告

粉体工学に関連する工業化試験、工業装置の運転あるいは設計法に関する研究成果をまとめた内容のもの。なお、技術報告にも査読があります。

1.3 総説(解説および講義も含む)

粉体工学に関連あるいは寄与する分野の解説的記事、この場合特に著者の意見や見解を盛り込んだ入門的にわかり易く説明したもの。

1.4 参考資料

粉体工学に関連する研究や調査などのメモ、記録、あるいは装置の設計、運転、測定等に必要と思われる内容をもつもの。粉体工学に関連する問題に対する意見あるいは討論、本誌に発表された研究論文に関する補遺あるいは意見を記述したもの。

1.5 文献紹介

粉体工学に関連する文献の紹介、紹介者の意見や批判を適当におりませたもの。

1.6 随筆

1.7 その他

2. 原稿の編集

1) 研究報告および技術報告につきましては査読委員の査読結果に従って訂正を求めることがありますので御協力下さい。

2) 原則として年1回発行します。

3) 抜刷を御希望の場合は編集事務局へ御連絡下さい。実費にてお願いいたします。

4) 掲載済の原稿は返却いたします。

5) 掲載しました原稿に対しては若干の稿料を送らせていただきます。ただし、研究報告および技術報告は原則として抜刷100部贈呈し、稿料は支払いません。

◎連絡先

〒573 枚方市招提田辺1丁目9番地

ホソカワミクロン株式会社 粉体工学研究所

“粉砕”編集事務局宛(Tel 0720-55-2220)

原稿募集

“粉砕”誌の原稿を募集いたします。粉体工学に係る研究報告、技術報告、総説、参考資料、文献紹介、随筆など特徴ある記事をふるって御投稿されるようお願いします。ご一報いただきましたら、原稿用紙をお送りいたします。

次号発行予定 平成7年8月末日

原稿締切 平成7年4月末日

編集後記

*平成5年8月26日(木)大阪科学技術センターで開催された粉体技術談話会主催の「第27回粉体工学に関する講演討論会」の内容を本誌の特集として掲載いたしました。

*今回は産業界に広く用いられている“造粒技術”にスポットを当てメインテーマとして「造粒と粒子設計」を採りあげ、各種造粒技術の特徴と応用、問題点等について第一線の研究者、技術者によって講演されたものであります。なお、今回より財団法人ホソカワ粉体工学振興財団のKONA賞受賞者による特別講演も行われ、その内容をも掲載いたしました。

*本誌巻頭言に(財)ホソカワ粉体工学振興財団の吉岡直哉常務理事が公益財団のあり方等について「助成活動が本当に価値あるものかどうか厳しく評価する必要がある」と述べられている。依然として厳しい円高と景気の低迷の中、各自身の困りの事柄を厳しく評価し整理するよい機会かもしれない。

(F. N)

“粉 砕” No. 38 1994年

平成6年10月1日	印刷
平成6年10月5日	発行
編集発行責任者	横山 豊 和
発行所	ホソカワミクロン株式会社 粉体工学研究所 大阪府枚方市招提田近1丁目9
印刷所	ナニワ印刷株式会社 大阪市北区天満1丁目9-19

システムで考える **ホソカワ** 製品と技術

食品・医薬用
粉粒体の殺菌システム



メイン機種／
ナウタミキサ
NXV型

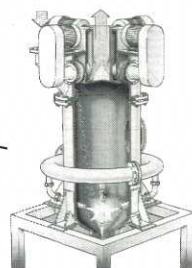
世界の粉体技術
を融合
粉体技術連峰
を形成

PET乾燥システム



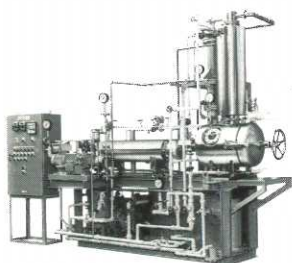
メイン機種／ソリッドエア

トナー製造システム



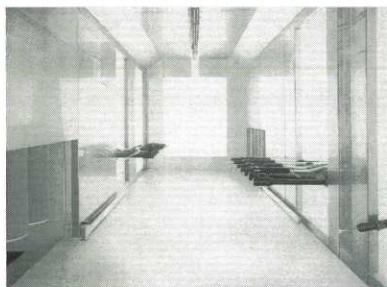
メイン機種／カウンタージェットミル

クラックスシステム



瞬間真空乾燥技術

粉体塗装システム



焼却炉排ガス処理システム



メイン機種／パルスエア

メカノフュージョンシステム



微粒子複合新素材創造技術

その他、各種のシステムに対応できます。
お気軽にご用命ください。



ホソカワミクロン 株式会社

粉体システム事業本部

〒541 大阪市中央区瓦町2丁目5-14 TEL.(06)233-3960 FAX.(06)229-9250

〒173 東京都板橋区板橋3丁目9-7 TEL.(03)5248-5700 FAX.(03)5248-5709

環境システム事業本部

〒541 大阪市中央区瓦町2丁目5-14 TEL.(06)233-3962 FAX.(06)229-9254

〒173 東京都板橋区板橋3丁目9-7 TEL.(03)5249-5720 FAX.(03)5248-5729

ESB事業部

〒573 大阪府枚方市招提田近1丁目9 TEL.(0720)55-6751 FAX.(0720)57-3722

〒173 東京都板橋区板橋3丁目9-7 TEL.(03)5248-5713 FAX.(03)5248-5709