粉体の形態制御における造粒技術*

Granulation Techniques for Controlling Forms of Particulate Materials

関 口 勲**
SEKIGUCHI Isao

Abstract Granulation techniques have been developed to produce granular materials, such as all forms of granules, small compacts, coating particles, and small grains or prills, for demand application in widely differing industries. A primary objective in this review is to present a generalized accounts of the diverse granulation methods in a systematic way. In the case of size-enlargement of fine powders, there are two principal modes of granulation. One is achieved by tumbling, agitating, or fluidizing raw materials in the presence of liquid binders, and the other includes granulation processes in which materials are forced to flow in a plastic or sticky condition through dies or screens or in molds. The former is especially reviewed from a design viewpoint of granulation processes.

Keywords : Agglomerate, Granule, Pellet, Granulation, Fluidized Bed Granulator, Tumbling Granulation

1. はじめに

産業用、あるいは日常生活に用いられる粉粒体状物質は様々な形態になっているが、それらは使用の目的や条件に最も適した形態になっていることが望ましい。すなわち、造粒とは文字どおり「粒をつくる」操作であり、何らかの「粒」をつくるための利点がなくはならず、それに付随して多様な造粒技法が開発されている。各種の産業における造粒製品、すなわち造粒物は、次のような目的で製造される。

- (1) 最終製品の使用条件に最適な造粒物の形態とする直接的な目的(例：日常生活でみられる医薬品の顆粒や錠剤、角砂糖やインスタントコーヒーなどの食品、農薬や肥料などの粒状品、飼料ペレット、触媒、洗剤など)。
- (2) 中間工程において造粒物をつくり、固体処理を容易にする間接的な目的(例：製鉄、セラミックス、粉末冶金などの工業分野においてハンドリ

ング、反応、成形、熔融、焼結などの操作性を改善するための顆粒、ペレットなど)。

これらの造粒物は業種特有の大きさや形に特徴があって、しかも構造や成分などは大幅に異なる。そして多様な造粒物にはそれぞれに用途目的に沿った品質の評価が行われるため、造粒物の製造に関わる装置・操作は様々な展開に繋がっている[1]。

2. 造粒装置・操作の成立と分類

造粒の方法には対象とする原料状態(溶液、懸濁液、コロイド液、熔融液、粉体など)とともに目標の造粒物形態によって多様な装置と操作が挙げられる。Fig. 1は主として粉粒体の濃厚相内システムにおける造粒機構を中心にして、気相内造粒システムと液相内造粒システムの両造粒機構を説明する模式図[3]である。中央の縦軸(造粒過程での最終剪断抵抗)は乾燥状の粉体のみであるが、その右側は固・気2相に液体分の増加に伴う湿潤

* 1997.11.3 受付

** 中央大学理工学部応用化学科 〒112 東京都文京区春日1-13-27
TEL(03)3817-1913 FAX(03)3817-1895 E-mail : kanko@apchem.chem.chuo-u.ac.jp

Fig. 1 The scheme illustrating relationship between agitating torque and agglomeration behavior with increasing liquid or gas-phase in dense particle-phase granulation systems.

粉体の凝集造粒現象の発生があり、気相分の消滅と共に塑性限界、さらに液性限界に到達して液体連続相になる。最高ピーク値(Ⅲ)に該当する箇所は「形」を形成する上で最も凝集性の強いところで、そのときの液体含有量が塑性限界である。この場合、粒子の凝集集合体としての強度は、一般に液体分による(吸引圧)×(飽和度 S : 粒子群内の空隙に占める液体の体積比)に比例するから、 $S = 1$ のときに最大値としてよい。 $S > 1$ では液性限界を過ぎて泥しょう状の流動性を示し、さらに懸濁液での液中造粒の範疇(液相内分散滴の固相転換、懸濁粒子の凝集造粒など)に入る。 $S < 1$ におけるピーク値(Ⅴ)では湿潤粉体の転動造粒や攪拌造粒の際に核化造粒物の合体と崩壊の繰り返しによる2次的な凝集造粒物が生成する。この付近では一般にダイ押出や圧縮(乾燥粉体の圧縮による小成形体をつくることもある)による造粒、さらに⑤～⑦の間では転動や攪拌のような造粒操作が行われる。

また、左側は気相分の増加、すなわち通気を伴う粉粒体層であるが、回転分散板(通気用)、攪拌翼などを内蔵した場合には通気のみによる最小流動化空気速度に至らなくても粉粒体が通気と共に

流動化を呈するようになる。すなわち、転動(または攪拌機能付)流動層、攪拌流動層などによるスプレー加液方式の造粒装置類は通気のみによる粒子群の完全流動化を必要としない。さらに通気による気相分が増加すると、粉粒体の運動は上昇空気流に支配された完全な流動化(Ⅰ)に移り、通常の流動層型では通気量の増加(流動化開始速度以上の過剰空気流量)により達成される。流動層から輸送相になる流動化状態では、内部または外部循環型の流動層による輸送相内においてスプレーからバインダー液による凝集造粒を行うが、この領域では流動化粒子群が分散側にシフトされやすいためにコーティング造粒が主流である。これより先は気相内造粒システムであって、特に気相内での液滴分散系における造粒操作(気相内分散滴の固相転換)が主要な役割を果たす。

以上のように広義の造粒では多様な造粒処理方法を必要とするが、粉体材料を中心とする粉粒体濃厚相においては造粒特有の装置類が開発され、最適な造粒物を得るための操作が実施されている。ここで粉粒体濃厚相内造粒システムを主体とした造粒装置類は、次のように大きく分類される。

(1) 成長様式による造粒：転動、振動、攪拌など

Fig. 2 Tumbling, agitation and aeration arrangements in various granulators.
(→ : Spray nozzle, → : Air inlet)

の作用で運動している湿潤粉体、あるいはこれらの作用や流動層などで乾燥状粉体にスプレー液（凝集用バインダー）を供給し、凝集現象を利用して顆粒、ペレットなどの造粒物に成長させる方法。
(2)機械加工様式（圧密様式）による造粒・成形：乾燥状粉体、またはバインダーを含む湿潤粉体を押出、ロール間圧縮（ロール表面に多数の凹部（ポケット）がある）、打錠（ダイ内粉体を衝撃圧縮）などの機械的加工によって円柱状ペレット（小さい場合：顆粒）、錠、ブリケットなどの造粒物・小成形物をつくる方法。

なお、ここでは「成長様式による造粒」の概要のみを記述する。この分類に属する造粒装置類は主として回転傾斜パンや回転ドラムによる方式が主流であったが、現在では多様な造粒品を目指して装置・操作の部分的な改良が進み、Fig. 2で示すような装置類が開発されている。図中の矢印はスプレーの位置または空気流入口を示し、さらに左右・上下の矢印は往復運動または振動を表す。

3. 転動、攪拌などを主体にした造粒装置類

3. 1 湿潤粉体の造粒現象

固・液・気系の濃厚粒子群（湿潤粉体材料）では、吸湿から塑性限界に至るまでの状態において転動、振動、攪拌などの機械的な操作によって凝集に伴う造粒現象が発生しやすい。造粒操作では造粒装

置内の粉体にスプレー滴（バインダー）を加えるか、あるいは加液混合後に造粒装置に供給して粉体の凝集造粒を期待する。もちろん、装置型式によっては乾燥を伴いつつ粒径制御を行うこともあるが、基本的には湿潤粉体の凝集造粒現象を原料調製の立場から検討しておくことが重要である。このような湿潤粉体の凝集造粒現象については、Fig. 3のようなタッピング型水平旋回造粒試験装置を用いて、どのような原料調製のもとで確かな凝集造粒物が発生するかについて有益なデータが得られる[4]。円錐振り棒の先端部がその周辺に円形配置してある10本の金属円柱群に衝突することによって生じるゴム円板中心部の衝撃振動については、1回の衝突による垂直方向の波形が初期の衝撃励振作用の直後に最大残留応答を示し、これに続いて減衰する残留衝撃スペクトルが現れる。ゴム円板の垂直振動に関する振動強度（加速度／重力加速度、打撃時の最大加速度を基準）が $G = 0$ においては水平円旋回運動のみで容器底面上の湿潤粉体は比較的穏やかな転動運動となる。水平方向の振動強度と波形特性は一定とみなせる。詳細については省略するが、底面中心部で打撃を受けつつ水平旋回円運動を行う湿潤粉体は、転動運動と圧密を伴って凝集粒内の液体分の負圧吸引力により、いわゆる球形ペレットになるが、原料調製条件によっては粉粒状またはペースト状になる。

原料の調製条件としては、乾燥状態でのタッピング充填による最密充填時の空間率 ϵ_0 を基準にして飽和度（粉体層内の空間に占める液体の体積割合）を $S = 1$ と定め、凝集指数 I_g （造粒操作時

Fig. 3 Schematic diagram of a tapping type gyratory agglomerator.

の含液率 C_d)/($S=1$ に相当する含液率 C_{PL})によって決定する。ここに、 C_d と C_{PL} は乾量基準で、 $C_{PL} = \varepsilon_0 / (1 - \varepsilon_0) \cdot (\rho_l / \rho_s)$ で示される。ここに ρ_l と ρ_s はそれぞれ液体と粒子の密度である。凝集指数により湿潤粉調製を行ない、この試料を用いて造粒実験を行なった結果、生成造粒物の平均径 X_v が一定となる最終平衡時(造粒時間: 1400s)での $X_{v\infty}$ に対する振動強度 G の関係はFig. 4のように示される。この造粒可能領域における凝集指数 I_g については α (最小) $\leq I_g \leq \beta$ (最大)のように一般化すると、 $I_g < \alpha$ では粉と小塊の混合物、 $I_g > \beta$ では部分的または全体的にペースト状になる。造粒可能領域内において最終平衡時の凝集粒は、 I_g が低いほど、また G 値が高いほど大きくなっている。造粒可能領域における凝集粒の成長過程は、核化凝集領域、遷域およびペレット成長領域に分けられ、この遷移領域以降は凝集粒の崩壊と合体を繰り返して粒径を増大させ、最終的には力学的に平衡な均一径の球状ペレットになる。ここでの特徴点は $G=0$ の条件で崩壊のない穏やかな転動造粒の場合、核化凝集造粒となる。このときの粒度分布は積算残留質量百分率 $R\%$ について理論的に導出された $R=100\exp(-Bx^3)$ (B : 定数)[5]と一致する。このような関係は $I_g = \beta$ と $G \neq 0$ の場合にも同様である。しかし、 $\alpha \leq I_g \leq \beta$ 、 $G \neq 0$ の場合には、造粒の途中において急激な破壊による破片の一部と凝集粒(核)が合体すると、その時点で大きな凝集粒が生成し、かつ G が大きいほ

Fig. 4 Agglomeration criteria for calcium carbonate powder agglomerated with methanol.

ど安定した大きな凝集粒が得られる。この場合には振動による衝撃力と造粒物強度が釣り合っている。すなわち、調製時において明瞭な凝集粒になっていない湿潤粉体が微視的にランダムな凝集状態から先験的確率をもって造粒現象へ移行する基本的な性質は、核化凝集造粒過程に現れるが、均一粒度を要求する造粒操作では機械的、かつ操作面で生成凝集粒の部分的な破壊を導きつつ粒径制御を行う必要がある。

3. 2 転動、攪拌などの装置・操作の特徴

成長様式による造粒物の生成機構は、造粒装置・操作の方式によって異なるが、次のように分類される。(1)レイヤーリング造粒は、造粒途中で造粒物の崩壊を伴う湿潤粉体の造粒、あるいは乾燥状粉体にスプレー液滴を供給するときの造粒に起こりやすい機構である。(2)アグロメレーション(凝集)造粒は、粉体に対する含液量またはスプレー液滴の供給量の多い場合に現れる機構であるが、造粒物の形態制御(粒径・形状・見かけ密度)のために間欠的な乾燥、あるいは機械的分散作用(例: 攪拌、振動など)が必要である。(3)コーティング(被覆)造粒は、レイヤーリング造粒に似ているが、基本的には粒子または造粒物の表面にフィルムまたは微粒子を付着させる機構で、通気流動化のような希薄な粒子群中で操作される。

湿潤粉体原料、あるいはスプレー液滴による粉体付着の完全濡れの湿潤粉体から生じる凝集造粒物の強度は、 k を強度係数として $k=L/x^2=K_f(SP_s)$ のように表される[6]。ここに L は圧縮力、 P_s は吸引圧、 X は球状造粒物の直径、 S は飽和度、 K_f は破壊機構による定数である。この球状造粒物が2分割するように破壊する場合には $k=4L/(\pi X^2)$ とすることもある。湿潤造粒物の吸引圧は飽和度の増加とともに急激に減少するが、気相(気泡)空間が増加すると造粒物強度は逆に低下する。このことから強度係数は (SP_s) に比例して増加し、結果的に $S=1$ のときに強度係数は最大値を示す傾向がある。また、造粒現象を呈する含液率(乾燥基準、 C_d)は $S \leq 1$ において次式のように示される。

$$C_d = C_{PL} I_g(\text{feed}) = S \frac{\varepsilon}{1 - \varepsilon} \frac{\rho_l}{\rho_s} (\text{agglomerate}) \quad (1)$$

ここに ρ_l 、 ρ_s は液体と粒子の密度、 C_{PL} (塑性限

界相当含液率)は乾燥粉体の最密充填時における空間率 ε_0 を用いて $C_{PL} = [\varepsilon_0 / (1 - \varepsilon_0)] (\rho_l / \rho_s)$ を基準値とする。この C_{PL} と式(1)と(2)から前出の凝集指数 I_g は

$$I_g = \frac{1}{K_f} \left(\frac{1 - \varepsilon_0}{\varepsilon_0} \right) \left(\frac{\varepsilon}{1 - \varepsilon} \right) \left(\frac{k}{P_s} \right) \quad (2)$$

で表されるが、実装置での凝集粒の空間率や破壊機構は予測することが困難である。ゆえに、造粒操作条件は式(1)に基づいて $I_g = C_d / C_{PL}$ で調製し、転動、攪拌などによる造粒では $I_g = 0.5 \sim 0.85$ の範囲(粒度が変わる)が良好である。

Fig. 5 は、鉄鋼原料の粉鉱石、肥料などの大量造粒処理に用いられる傾斜パン型造粒機(最大パン直径: 8 m)の概要を示す[7]。この装置は回転する傾斜パンに粉体とスプレー液を供給し、成長した球状ペレットを下部のリムから排出させる方式である。大きく成長したペレットは原料粉体や未成長凝集粒よりもパン底面との摩擦抵抗が小さいために上層部へ移動して排出される。この分級作用によって傾斜パン型は、やや傾斜のついた回転ドラム型よりも均一な粒度のペレットが生じやすい。滞留量は粉体の供給速度、パン体積、パン内粉粒体のかさ体積、パン回転数、傾斜角、粉粒体の動摩擦係数などにより変わる[8]。スプレー液の供給は、パン内の粉粒体の中間層付近の含液率が $I_g = 0.60 \sim 0.75$ 程度で制御される。このパン型造粒機の操作は底面の粉体付着、レーキとスクレーパー、粉体とスプレー液の供給位置などによって不安定になりやすいため、特に注意を要する。Fig. 6 で示すような標準的な回転ドラム型造粒機では原料として予備混合後の湿潤粉体を用いるか、

Fig. 5 Inclined pan granulator.

Fig. 6 Drum granulator.

または乾燥粉体を供給しつつスプレー液を添加する方式であり、ドラムの回転に伴う転動作用のもとで凝集造粒の操作を行う[7]。ドラムの内壁面には湿潤粉体が付着しやすいので、同図の下段に示すような各種の付着防止用の対策が必要になる。フロック状の湿潤粉体は核化凝集領域、遷移領域および成長領域(ボーリング)に従ってペレットに造粒されるが、造粒物の粒度分布はブロードになりやすい。このドラム内の流れはほぼ押出流れに近いので、小型の回分式ドラム造粒機による予備造粒実験の結果が適用される。

転動造粒の速度・粒度分布論としては、まず傾斜回転パン底面上での槽円軌道モデルによるペレットの成長速度[9]、同じく転動含水球による粉体付着速度モデル[10]、パン内の完全混合流れと完全偏析の領域設定に排出の理想分級モデルによるポピュレーションバランス[11]などの研究例がある。また回分式回転ドラムでは転動に伴う核化凝集造粒機構の統計力学的モデルによる粒度分布則[5]、その他の粒度分布の実験式[12,13]、核化凝集造粒における成長速度式[14]、生成ペレットの崩壊とレイヤーリングを伴う粒度分布式[15]、異径造粒物間接触数と合体確率を考慮したポピュレーションバランスによるシミュレーション[16,17]などがある。回転円錐状ドラムによる粒子偏析現象の応用例としては、そのドラム内に粉体とスプレー液を連続的に供給し、造粒と同時に偏析分離により大小の造粒物を頭切形円錐の両端(大口径と小口径)から排出させる機構である。すなわち、原料粉体に対する液体バインダーの供給比が減少すると小口径側では小さい良質(球状)の造粒物が排出され、逆にその供給比が増大すると大口径側では大きい良質の造粒物が排出される[18]。これ

とは別途の方法として、小さい造粒物の粒径制御ためには閉回路式円錐ドラム内(大口径側：閉鎖)に粉碎媒体ボールを充填して大造粒物を破碎し、小口径側から微細な造粒物を排出するシステム設計法がある[19]。

なお、化学肥料、医薬品、食品などにおいて添加液体に対する溶解度が異なる多成分系粉体の造粒では、温度、成分比、液体量などによる造粒への影響があり、このために乾燥雰囲気中で攪拌を伴う造粒操作を行うことが多い。このときの造粒物の粒径制御には円筒状容器側壁にチョッパーを付け、その底面に高速攪拌翼を取り付けた方式の攪拌造粒機[18]、これに回転円板状の底面と容器側壁との間の円環状スリットに乾燥用の空気を通した転動攪拌造粒機、あるいは回転ドラム内の軸中心にピン付攪拌機を取り付けた造粒機[19]が挙げられる。これらの装置では特に攪拌混合過程に生じる攪拌トルク(または消費電力)の計測システムにより凝集造粒物の制御(粒径、見かけ密度、形状)が行われる。

4. 気流による粒子群の流動化を主体にした造粒装置類

4. 1 粒子群の流動化と造粒の特徴

この種の操作による造粒物には重質・軽質顆粒、凝集粒、(フィルム)コーティング粒子(微粒子、顆粒)、複合粒子(複合成分)、球状粒子(ビーズ)などの名称がある。これらのうち、コーティング粒子の場合には完全に粒子間の付着現象がない状態で操作され、これ以外は粒子間付着、またはシード粒子に対するレイヤーリングによる操作形式である。いずれも流動化粒子に対してスプレー滴(溶液、懸濁液、熔融液など)の付着を必要とするが、高温下での粒子間の融着のような場合もある。以上の造粒目的で用いられる一般的な通気式の造粒装置は、典型例としてFig. 7 にスプレー付流動層造粒装置の概要を示す。特にスプレーノズルの位置は流動層の上部(トップスプレー)、その側壁でのサイドスプレーおよび分散板中心部のボトムスプレーの各方式があり、ノズル先端部への粉体付着を減少させる対策としてはトップスプレー方式を採用することが一般的である。スプレー液(バインダー)の供給速度が層内の乾燥速度よりも大きいと、層内では残留液体分による非流動化現象が起きやすくなる。

Fig. 7 Variations on FBG process.

粒子群の通気流動化に依存する造粒には、操作条件によって流動化粒子間の合体(凝集系)による凝集造粒、並びに非合体(分散系)による被覆造粒のように分類される。特に後者の例では一般に粒径が小さくなるほど操作的に難しくなる。すなわち、原料の粒径が大きいと被覆(コーティング)造粒側に、小さい粒子の場合には凝集造粒側にシフトしやすい。また造粒過程には顆粒の強度とも関連して層内の上昇気泡、せん断流などによる凝集粒の摩耗、衝撃破壊などが起こりうるが、これらの点については十分な解明が進んでいない。この点は粒子間の融着や架橋(液相、固相)のような結合力が存在する粒子群はどのように安定な流動層を形成するかである。一般に粘性の流動化粒子群の凝集化傾向は、凝集物の付着特性、接触面積、そして粒子群の運動により規定されような定性的関係がある[22]。これと同様の考え方のもとで、高温流動層(標準型)による高分子粉の凝集造粒では、Fig. 8 で示すような造粒曲線(凝集粒平均径と流動時間の関係)[23]が得られ、この場合のシミュレーションが行われている[24]。この図で説明すれば、流動層は回分等温断熱系(塔径/層高=1)として操作したとき、顆粒の成長過程は3領域に分かれる。最初の[I]では急激に顆粒の成長があって、次の[II]の段階では非常に緩やかになって、ほぼ力学的に平衡状態になる。ここまでの過程は造粒にとって望ましい条件であるが、初期軟化(焼結)温度よりも高い層温度になったり、過剰空気流量が低くなるようであると、大きな気泡を伴いつつ[III]の段階が現れて、短時間のうち

Fig. 8 Typical agglomerate growth of polymeric particles in hot fluidized beds for different operations.

に急激に非流動化状態になる。このような現象は層温度を含液率（実際はバインダー供給速度と乾燥速度の比による）に変え、NaCl粒子群をゼラチン水溶液で凝集造粒を行った場合にも同様な傾向を示す[24]。すなわち[III]の段階は安定な流動層の形成にとって危険な領域である。

そこで、安定な造粒操作では次のような対策が必要になる。(1)通気側は押し出し流れであっても、スプレー滴と粒子群は完全混合とし、力学的に安定な平衡条件まで造粒可能とする。(2)層内特定箇所のスプレー領域（液滴付着）において凝集造粒が促進され、その領域を離れた凝集粒は層全体に拡散混合されて、乾燥、他粒子との付着、または部分的に崩壊の諸現象を起こさせる。(3)装置構造の変更：例えば、内部または外部循環型、機械的攪拌、強力な粒子群の剪断流れ（転動）の機構を設けるとか、円錐型や噴流層型のように部分的に循環流を発生させるなどである。また、造粒物の特性（粒径、形状、見かけ密度）を制御する観点では、層内に攪拌翼、チョッパー、ジェット気流[25]、回転分散板などの機構を取り入れ、層内に液体分を残留させる方式がとられる。

4. 2 流動層造粒関連の装置・操作の諸問題

流動層の形成を前提として造粒の機構は、(1)スプレーによる層内の粒子間架橋液の付着強度、それに対する破壊の力学的関係（合体と分散）、(2)回分と連続操作における速度論と粒度分布論、収率やコーティング率などの付属問題、(3)造粒の過程における流動層の形成と変動、さらに乾燥（加熱）とスプレー液の供給条件、(4)用途別によ

る造粒物の評価などが挙げられる。これらは互いに複合的に作用し合うため、まず理論を含めて基礎的なデータの集積が必要である。(1)に関しては操作上の問題として凝集造粒または被覆造粒（コーティング、レイヤーリングなど）の操作的区分である。後者の被覆造粒は一般にドラフト管内蔵型、噴流層、輸送層などで操作しやすい。

流動化粒子群の動的結合力については、成長様式による造粒操作の一般論として重要な問題になる。例えば、転動造粒のバインダーの役割としてはぬれ性ととも粘（弾）性が必要と考え、湿潤粉体層の剪断試験から粒子間架橋液の付着力や破断エネルギーの研究を行った際、粒子間を急激に引き離す場合は毛管付着よりも粘性効果（変形）が現れやすいことが分かった[26,27]。Tardos et al [28]は石炭流動層燃焼に関連して流動層内における粒子間力に注目していたが、その後では流動層造粒における粒子間架橋液体の粘性による付着力（動的結合力、粘結力）、気泡周囲粒子群の剪断流れ、粒子間衝突速度などの考察から凝集造粒支配の決定法について論述している。同じグループのEnnis et al [29]は顆粒の衝突モデルにおける粘結力と分離力に関する粘性ストークス数（無次元）を提案し、顆粒の合体と分散の機構を検討している。Kono et al [30]は流動層内に顆粒強度既知のトレーサーを用いて粒子間衝突と破壊の機構を調べている。特に、ここでは流動層の圧力変動が顆粒の崩壊に寄与するとして層内粒子の運動力（この力で顆粒が崩壊する時点）を測定している。

次に原田ら[31-34]は先駆的に回分・連続流動層造粒に関して物質収支式の数値計算を進め、造粒速度式、粒度分布、コーティング量分布など、それに凝集・被覆同時造粒の問題も含めて幅広く研究を行った。鬼山ら[35]は被覆造粒用として攪拌機構内蔵型連続噴流層を試作し、特にスプレー噴霧領域とその他に流動領域をフィードバックを伴う完全混合要素のブロック線によるモデル化を行い、造粒速度と操作条件の関係を検討した。その後、連続完全混合流動層内での粒子成長（レイヤーリング）または収縮（摩耗）による粒度分布については物質収支式、滞留時間分布関数、速度式などからの研究例[36,37]もある。安部ら[38,39]は微粒子懸濁液の噴霧による転動流動層内粒子のコーティングに関する一連の研究を行っている。また、乾燥とコーティングの特性ではスプレー加

湿による層内の断熱増湿系を取り扱ってコーティング効率を調べ、定量的なコーティング操作の評価法が検討されている。しかし、より良い造粒品を目指し、かつ造粒用に適した装置の開発ではますます複雑な構造と操作が要求され、未解明の問題はさらに増幅することになる。そこで、実際に流動層造粒関連の装置類を稼働させる場合には層内の温度、水分、湿度、粒径などのセンサーを取り付け、適正な造粒条件を制御する方法[40-42]、さらに適正な顆粒の形状・粒径・見かけ密度特性の制御方法としてAE波の利用[43]などがある。現在の実装置類にみられる造粒操作には、転動、通気および攪拌、またはそれらを複合化した装置機能が備えられて複雑な造粒機構になっている。

5. おわりに

本誌には初めて造粒技術分野を紹介するため、ここでは解説として造粒技術の全般的な内容を包括して記述し、これに続いて造粒成長様式の機構と装置・操作を主体にして概説を試みた。従って、造粒技術に関わる多くの論文や実装置の紹介は大幅に省略した。著者は「混相流」という立場から本テーマを整理したことがなく、内容的には焦点を絞りきれない面があった。この点は悪しからずご理解願いたい。

参考文献

- [1] 日本粉体工業技術協会編：造粒ハンドブック，オーム社
- [2] 関口 勲：粉体工学会誌，31,808-817(1994)。
- [3] 関口 勲：化学工学，61,273-275(1997)。
- [4] 関口 勲，太田喜之：粉体工学会誌，28,232-238(1991)。
- [5] 関口 勲，東畑平一郎：化学工学，32,1012-1020(1968)。
- [6] Newitt D.M and Conway-Jones,J.M.:Trans. Inst. Chem. Eng.,36,422-443(1968)。
- [7] 関口 勲：粉体工学会誌，26,734-738(1989)。
- [8] 河野尚志，山本晃生：化学工学，28,709-714(1964)。
- [9] Macavei,Gh.:British Chem.Eng.,10,610-614(1965)
- [10] 東畑平一郎，関口 勲，阿部二郎：粉体工学研究会誌，3,497-501(1966)。
- [11] Ouchiyaama,N. and T.Tanaka: Ind.Eng. Chem.Process Des.Dev.,20,340-349(1981)。
- [12] Capes,C.E. and P.V.Danckwerts:Trans. Inst.Chem.Engrs.,43,T125-T130(1965)。
- [13] Kapur,P.C. and D.W.Furstenaw:Ind. Eng.Chem.,5,5-14(1966)。
- [14] 梅屋 薫，関口 勲：材料，24,664-668(1975)。
- [15] Kapur,P.C.:Chem.Eng.Sci.,26,1963-1896(1971)。
- [16] Ouchiyaama,N. and T.Tanaka: Ind.Eng. Chem.Process Des.Dev.,21,35-37(1982)。
- [17] Ouchiyaama,N. and T.Tanaka: Ind.Eng. Chem.Process Des.Dev.,14,286-289(1975)。
- [18] Sugimoto,M., N.Yokota and H. Kawamoto :J.Chem.Eng.Japan,23,,244-246(1990)。
- [19] 杉本益規，横田尚子，杉原昌樹：粉体工学会誌，27,590-596(1990)。
- [20] 寺下敬次郎，大池敦夫，加藤雅也，宮南 啓：薬学雑誌，107,377-383(1987)。
- [21] 呉羽化学の特許と製造設
- [22] Siegell,J.H.:Powder Techn.,38,13-22(1984)。
- [23] 辻本広行：高温流動層におけるポリマー粒子の流動化と凝集，中央大学理工学研究科篇，大学院研究年報，18,p.319-22(1988)。
- [24] 辻本広行，関口 勲：1993年度秋期研究発表会講演要旨集，粉体工学会，71-75(1993)，東京。
- [25] 辻本広行，横山，関口 勲：粉体工学会誌，投稿中。
- [26] 梅屋 薫，関口 勲：化学工学，37,744-746(1973)。
- [27] 関口 勲，梅屋 薫：化学工学，37,704-712(1973)。
- [28] Tardos G., Mazzone, D and .Pfeffer,R: Can.J.Chcm.Eng., 63, 384-389(1985)。
- [29] Ennis,B.J.,Tardos,G. and Pfeffer,R.: Powder Techn.,65,257-272(1991)。
- [30] Kono,H.O.,Soltani-Ahmadi,A. and Suzuki,M.: Powder Techn., 52,49-58(1987)。
- [31] 原田和夫：化学工学，36,1237-1243(1972)。
- [32] 原田和夫，藤田仁四郎，吉村 証：化学工学，33,793-799(1970)。
- [33] 原田和夫，藤田仁四郎，吉村 証：化学工学，34,102-104(1973)。
- [34] 原田和夫，藤田仁四郎：化学工学，31,790-794(1967)。
- [35] 鬼山和彦，関口 勲，東畑平一郎：化学工学，38,163-169(1974)。
- [36] Uemaki,Q. and Mather,K.B.:Ind. Eng. Chem.,Process Des.Dev.,15,504-508(1976)
- [37] Mann,U.: Ind.Eng.Chem.,Process Des. Dev.,17,103-106(1978)。
- [38] 安部英一，広末英晴，菊池弘：粉体工学誌，22,278-287(1985)。
- [39] 安部英一，広末英晴：粉体工学誌，26,832-838(1989)。
- [40] Watano,S.,Terashita,K.and Miyanami,K.: Aclvanded PowderTechn,3,255-265(1992)。
- [41] Watano,S., Sato,Y. and Miyanami,K.: J.Chcm. Eng. Japan,28,282-287(1995)。
- [42] Watano,S.,Fukushima,T.and Miyanami,K.: Advanced Powder Techn,5,119-128(1994)。
- [43] Watano,S.,Fukushima,T.and Miyanami,K.: Powder Techn., 81,161-168(1994)。
- [44] 辻本広行，横山豊和，関口 勲：化学工学論文集，23,353-362(1977)。