水平回転円すい型容器による造粒と分粒との同時操作* (製品粒度特性に及ぼすバインダー・粒子供給比の影響)

杉 本 益 規** 川 上 隆 司*** 中 村 恵 威***

Simultaneous Operation of Granulation and Separation in a Horizontal Rotating Conical Vessel (The Effect of the Feed Ratio of Binder to Powder on the Sizes of Products)

by

Masunori SUGIMOTO, Takashi KAWAKAMI and Shigetake NAKAMURA

(Faculty of Engineering, Toyama University, Takaoka)

In order to investigate the effect of the feed ratio of binder to powder on the sizes of products in a simultaneous and continuous operation of granulation and separation by using a single horizontal conical vessel which has a pair of the outlets of the each end, the experiments have been carried out by feeding CaCO_3 -powder and dropping water into the centre of the vessel rotated at the critical speed ratio, 0.2, and by discharging the granulated and separated products from the both outlets of the vessel.

The size and shape of the products granulated were found to be affected by the feed ratio and the average residence time. The small spherical particles were discharged from the narrow end of the vessel at a relatively low feed ratios, while the large spherical particles from the wide end at a high feed ratios.

(Received Feb. 22, 1982)

キー・ワード：造粒，分粒，水平回転円すい型容器，同時操作，偏析

1 緒 言

造粒操作は、医薬工業をはじめ、食品、化学肥料工業等の分野でも古くから発展してきている。最近では、石炭粉末あるいは活性汚泥の造粒化による再処理法が注目されてきている。したがって、これらの造粒プロセスの連続化、自動化は重要な操作の一つといえる。

従来、造粒プロセスでは、造粒と分粒（整粒）操作^{1)~4)}は、別々な操作として取り扱われることが多い。しかし、粉体プロセスの省エネルギー的対策の一つに粉体プロセスの複合化を挙げることができ、単一装置による造粒と分粒との同時操作はプロセスの複合化の手段として重要な操作の一つといえよう。

筆者らは前報にて、水平回転円すい型容器⁵⁾の回転に伴う転動効果と同容器内粒子軸方向偏析特性^{6)~8)}を利用し、単一同容器による造粒と分粒との同時操作を試み、その可能性について報告した。

本報では、同容器による同時操作において得られる造粒製品粒度特性および分粒排出特性に及ぼすバインダー・原料供給比の影響について実験的に検討した。その結果、同時操作に関する二、三の有益な知見を得たので、ここに報告する。

なお、本報では、同時操作の基礎的研究を目的とし、バインダー供給には、滴状給液法についてのみ検討を行った。

2 実 験

2・1 実験装置と試料

実験装置の系統図および円すい型容器の詳細図を、Fig. 1 (a), (b)に示す。本装置の本体である截頭された鋼板製の円すい型容器①（以下、容器と呼ぶ）は、内径 25.4 cm ϕ 、長さ 30 cm の水平回転円筒②内に固定され回転できるようになっている。容器の両端には原料の連続供給および造粒された粒子群の連続的排出を容易にするために、アクリル製のオリフィス型出口せき③を設置した。

また、容器内壁への粉末の付着を防止するために、

* 原稿受理 昭和57年 2月22日

** 正 会 員 富山大学工学部 高岡市中川園町

*** 富山大学工学部 高岡市中川園町

Fig. 1. Experimental apparatus.

図示のごとくスクレーパー⑨を容器内壁に沿って設置した。なお、同スクレーパーは、容器外部の支柱に固定された2本のアーム⑨'により支えられている。

原料供給装置には、テーブル型フィーダー④、および電磁フィーダー⑤を用い、原料を連続定量供給できるようにした。

バインダー供給装置には、オーバーフロー方式のヘッドタンク⑥、ニードルバルブ⑦、およびフローメーター⑧を用い、バインダーを滴状に長時間連続定量供給できるようにした。

実験試料には、市販の炭酸カルシウム（一級試薬）を用い、バインダーには、純水を使用した。

2.2 実験方法

容器回転速度を 17 rpm に固定した後、原料（炭酸カルシウム）を、電磁フィーダー⑤を通して容器軸方向中央部へ連続定量供給した。なお、この原料供給位置の設定に関して、前報にて造粒および分粒特性は、原料供給位置に無関係であることが実験的に得られたので、本報では容器軸方向中央部を原料供給位置の代表位置とした。容器両端のオリフィスから原料の排出が始まった後、原料供給位置と同位置にバインダーの連続定量滴状給水を開始した。容器両端からの粒子の排出特性が定常状態に達したことが認められた後、容器小口径端および大口径端からの各造粒粒子排出速度 D_{P1} , D_{P2} (g/min) の測定と各排出粒子の採取を行っ

た。容器両端において、一定時間採取された各製品粒子を万能投影器により、粒度分析を行った。

また、各造粒粒子排出速度比（歩留り） $y(-)$ は、容器回転軸の傾斜を水平に対してわずかに変化（ -2° $+2^\circ$ ）させることにより調節を行った。なお、歩留りは、次式にて算出された。

$$y = \frac{D_{P1}}{D_{P1} + D_{P2}} \quad (1)$$

3 実験結果と考察

3.1 造粒特性に及ぼすバインダー・原料供給比の影響

Fig. 2 は本容器にて造粒作用を受け、容器両端から排出された全造粒粒子群の粒度分析結果の代表例である。なお、操作条件として、平均滞留時間 $\bar{\theta}$ をほぼ一定（ $\bar{\theta} \approx 90$ min）に保つために、原料供給速度 $F \approx 17$ g/min に固定し、バインダー（純水）供給速度 G (g/min) を種々に変化させた。ここで、平均滞留時間 $\bar{\theta}$ は、次式にて算出されたものであり、 H (g) は、ホールドアップ重量である。

$$\bar{\theta} = \frac{H}{F + G} \quad (2)$$

Fig. 2. Representative size-distribution of CaCO_3 agglomerates for different feed rates of water.

同図より、造粒された粒子の粒度特性は、バインダー供給速度 G によって支配されていることが認められる。すなわち、 G の増大に伴い造粒粒子群の粒径も増大している。また、各 G における R 分布曲線の形状について注目すると、 $G \approx 1.0$ g/min を境界として変化していることが認められる。すなわち、 $G \geq 1.0$ の場合には、一部に小粒子を含むかなり均一な粒径を有する大粒子が造粒されており、一方、 $G \leq 1.0$ の場合には、均一な小粒子を含む粒子が造粒されている。

Fig. 3 は、両端より排出された全粒子群の粒度分布をもとに算出した全造粒粒子群の平均径 $\bar{x}_0$ (mm) とバインダー供給速度 G との関係を示したものであり、平均滞留時間を一定に保ち、 G のみを変化させた場合の結果である。

同図より、 $\bar{x}_0$ と G との間には、多少ばらつきが認められるが、ほぼ歩留り y に無関係に次式で近似でき

Fig. 3. Experimental relationship between arithmetic mean diameter of total particles discharged and feed rate of water at $F=17\text{g/min}$, and $\bar{\theta}=90\text{min}$.

ることが得られた。

$$\bar{x}_0 = K_1 \cdot G, \quad (K_1 = 6.0 \text{ mm min/g}) \quad (3)$$

なお、(3)式中の K_1 の値は、原料およびバインダーの各物性、また装置の操作条件に依存するものと考えられる。

つぎに、 $F=10-100\text{g/min}$, $G=0.3-6.3\text{g/min}$, $\bar{\theta}=15-170\text{min}$ の範囲で種々に変化させ、 $\bar{x}_0$ に及ぼすバインダー、原料供給比 $W(=G/F)$ および平均滞留時間 $\bar{\theta}$ の影響を実験的に検討した。その結果を、Fig. 4 に示す。

Fig. 4. Comparison of experimental results and calculated results by Eq.(4) for arithmetic mean diameter $\bar{x}_0$.

これより、全造粒粒子群の平均径 $\bar{x}_0$ は、ほぼ $\pm 30\%$ の誤差範囲で、(4)式にて与えられていることを得た。

$$\bar{x}_0 = K_2 \cdot W \cdot \bar{\theta}^{-0.23}, \quad (K_2 = 310 \text{ mm} \cdot \text{min}^{0.23}) \quad (4)$$

なお、(4)式からわかるように、本実験範囲においては、平均径 $\bar{x}_0$ は平均滞留時間 $\bar{\theta}$ の -0.23 乗に比例していることが認められる。すなわち、これは平均滞留時間の増大に伴い造粒粒子群の平均径が減少することを意味しており、造粒ゾーンにおいて造粒された粒子が回転容器の回転に伴い、cascading 運動を受け、造粒粒子相互間の衝突による圧縮や摩砕等により粒子が整形された結果、平均滞留時間の増大に伴い平均径が減少するものと考えられる。また、これらより、(4)式中の K_2 は回転速度等の関数であるものと推定される。

また、この結果は、先に大内山、田中らによって導出された乾式造粒モデルの結果と定性的に一致している。

3・2 同時操作における造粒粒子群の分粒特性

Fig. 5 は、原料試料である炭酸カルシウム (CaCO_3) 粉末が容器内で造粒された後、容器両端より排出された各造粒粒子群の粒度分析結果の代表例である。

同図より、容器小口径端および大口径端から排出された造粒粒子群の粒度特性が異なっていることが認められる。すなわち、これは供給された原料粒子群が造粒作用を受けた後、水平回転円すい型容器内での流下現

Fig. 5. Representative size-distribution of particles (P1, P2) discharged from each end of the vessel at $G=0.57\text{g/min}$, and $F=17\text{g/min}$.

Fig. 6. Particles discharged from the narrow end (P1) and wide end (P2) of the vessel, at $F=17\text{g/min}$, and $\bar{\theta}=90\text{min}$.

象を通して分粒作用を受け、容器両端より排出されたことによるものと考えられる。

一方、Fig. 6 は、容器両端から排出された造粒粒子群の大きさと形状に関する代表例を示したものである。

ここで、P1, P2 は、それぞれ容器小口径端および大口径端からの各排出粒子群である。なお、同図は、平均滞留時間 $\bar{\theta} \approx 90$ min の場合について示されたものである。

同図(a)からわかるように、 $G=0.57$ の場合には、P1 側から均一球状小粒子が排出しており、P2 側から造粒の不十分な細かい粒子、snow balling 現象によって生じた大粒子およびその中間の大きさの非球状粒子が排出している。一方、同図(b)より、 $G=1.87$ の場合には、P1 側から造粒の不十分な細かい粒子および非球状粒子が、P2 側から均一球状粒子が排出されている。

これらの結果より、平均滞留時間 $\bar{\theta}$ が一定の場合、造粒粒子排出特性（粒子径と粒子排出端）は、バインダー供給速度 G によって影響されていることが認められる。

一方、両端より排出された全造粒粒子群の平均径 $\bar{x}_0$ と G との間に(3)式の関係が認められ、造粒粒子の排出特性は、造粒粒子径と密接な関係にあるものと推定される。

本報では、上述の排出特性が各製品の排出粒子平均径 $\bar{x}_p$ によって支配されるものと考え、種々のバインダー・原料供給比 W および平均滞留時間 $\bar{\theta}$ のもとで得られた結果の整理を試みた。

Fig. 7 は、本装置による同時操作において得られた造粒粒子の整粒特性を検討するために、容器両端から排出された各製品粒子群の粒度分布標準偏差 σ_p (mm) と全排出造粒粒子群の粒度分布標準偏差 σ_0 (mm) との比 σ_p/σ_0 を各製品粒子の平均径 $\bar{x}_p$ (小口径側製品粒子平均径 $\bar{x}_{p1}$ あるいは大口径側製品粒子平均径 $\bar{x}_{p2}$) に対して点てつした結果である。

Fig. 7. Experimental relationship between standard deviation ratio (σ_p/σ_0) and arithmetic mean diameter of the product.

同図より、実験値にはかなりばらつきが観測されるが σ_p/σ_0 と $\bar{x}_p$ との間にはほぼ図示の曲線のような相関関係が認められる。すなわち、小口径側製品に着目すれば、製品粒子平均径 $\bar{x}_{p1}$ の増大に伴い σ_p/σ_0 は増大し、ほぼ1に漸近している。一方、大口径側製品に着目すれば、製品粒子平均径 $\bar{x}_{p2}$ が大になるほど σ_p/σ_0 は減少している。また、同図より、供給比 W 、平均滞留時間 $\bar{\theta}$ および歩留り γ の変化に無関係に、両製品とも平均径 $\bar{x}_p \approx 6$ (mm) において、 $\sigma_p/\sigma_0 \approx 1$ を示していることがわかる。本報では、これを境界粒子径 $\bar{x}_{PC}$ とする。

これより、 $\bar{x}_p < \bar{x}_{PC}$ なる製品粒子を必要とする場合には、 $\sigma_p/\sigma_0 < 1$ を満足する小口径側排出粒子を製品とすれば、大口径側排出粒子に比較してより均一な粒度特性をもつ製品が得られ、 $\bar{x}_p > \bar{x}_{PC}$ なる製品が必要ならば、 $\sigma_p/\sigma_0 < 1$ なる範囲で大口径側排出粒子を製品とすれば、より均一な粒度特性をもつ製品が得られることになる。

これは、上記同時操作では、必要とする製品の平均粒子径 $\bar{x}_p$ によって製品取り出し口を変えることにより、より均一な製品が得られることを示している。

なお、同時操作においては、境界粒子径 $\bar{x}_{PC}$ を推定することは最適操作条件を決定する上で重要な課題の一つである。しかしながら上記同時操作には、本実験にて採用した操作条件の外に容器回転速度、大きさ等の装置的操作条件に基づく造粒、分粒特性が複雑に関与しているものと思われることから、 $\bar{x}_{PC}$ の推定には、今後更に多くのデータの蓄積をもとに検討する必要があるだろう。

3・3 同時操作における分級効率

つぎに、同時操作における分級効率を、示標の一つである部分分級効率 $\eta(-)$ を基に検討を加えた。これらの代表例を Fig. 8 に示す。ここで、 x_{50} (mm) は、 $\eta=0.5$ を示す粒子径である。

同図に示した各曲線は、次式にて定義される修正 Morelus 式をもとに算出された結果であり、分離の鋭さを与える $\alpha(-)$ をパラメータに示したものである。

Fig. 8. Fractional recovery of the conical vessel in the simultaneous operation.

$$\eta = \frac{1}{1 + \exp\{a(1 - x/x_{50})\}} \quad (5)$$

実験結果と上式の計算結果を比較すれば、歩留り $y \approx 0, 1.0$ に近い操作条件での部分分級効率⁷⁾は、(5)式における a が 8~50にあることが認められ、このような操作条件では、本容器による同時操作において、かない高い分級効率が得られることが推定される。また、歩留り $y \approx 0.5$ では、 $a \approx 3$ となり、部分分級効率は前者に比較して小さい。

3・4 同時操作における粒子偏析特性

Fig. 6 にて示したように同時操作における製品の排出特性の一部は、先に報告した円すい型容器内粒子軸方向偏析特性による粒子排出特性とは異っていることが認められる。すなわち、Fig. 6 (a)にて示すような造粒粒子群の容器軸内方向偏析現象は、主として粒子 cascade 表面上で生じ、その結果、流下しやすい球状小粒子が容器小口径端に偏析し、回転粒子層断面方向中央部 (core 部) に偏析する造粒の不十分な細かい粒子および流下しにくい非球状粒子は、容器大口径側へ偏析し排出する。

この軸方向偏析特性は、前報にて示したごとく、回転容器内でなめらかな cascading 運動と回転運動を生ずる混合粒子の円すい型容器内粒子軸方向偏析現象と一致する。

一方、Fig. 6 (b)にて示すような造粒粒子群の場合には、粒径が極端に (不連続に) 大なる球状大粒子は、他の小粒子とは断面方向に混合することは困難となり、球状大粒子は粒子流下表面をすばやく転落し、粒子層下部 (tongue 部) に集まる。さらに、これらの粒子は粒子層の回転運動に巻き込まれることも困難となり、tongue 部分を回転しつつ容器の壁下部をころがり、レベルの低い大口径側へ移動し排出する。この偏析は、前報でのそれと逆の偏析現象を示している。

4 結 言

本報では、水平回転円すい型容器の連続分粒特性と同容器の転動効果による造粒特性とを利用した同容器による造粒と分粒との同時操作における製品粒度特性に及ぼすバインダー・原料供給比および平均滞留時間の影響について実験的検討を行い、次の結果を得た。

(1) 円すい型容器による造粒と分粒との同時操作は可能である。

(2) 造粒粒子径は、バインダー・原料供給比および平均滞留時間によって支配され、(4)式にて与えられる。

(3) 希望する製品の粒子径により、製品取り出し口を小口径側あるいは大口径側排出部に設定することにより、より均一な粒度をもつ製品が得られる。

(4) 同時操作において、歩留り y が 0 あるいは 1 に近い場合、本容器の分級効率は高い。

なお、本報では、バインダー供給には、最も単純な滴状給液法を用い、同時操作について実験的検討を行ったが、今後、一般に採用されているスプレー式給液法についても更に検討する必要があるものと考えられる。

本研究は、昭和56年度科学研究費補助金 (一般研究 (c)) の一部によった。

Nomenclature

- a : Parameter representing the sharpness of classification (—)
- D_F : Discharge rate of particles from the vessel (g/min)
- F : Feed rate of particles (g/min)
- G : Feed rate of water (g/min)
- H : Weight of hold-up (g)
- K_1 : Empirical constant in Eq. (1) (mm min/g)
- K_2 : Empirical constant in Eq. (2) (mm min^{0.23})
- R : Cumulative percent of residue (—)
- W : Feed ratio of water to CaCO_3 { $=G/F$ } (—)
- x : Particle diameter (mm)
- x_c : Particle cut-off size (mm)
- x_0 : Arithmetic mean diameter of total particles discharged from the vessel (mm)
- x_P : Arithmetic mean diameter of the product (mm)
- x_{PC} : Characteristic size (mm)
- x_{50} : Particle diameter at $\eta=0.5$ (mm)
- y : Yield { $=D_{P1}/(D_{P1}+D_{P2})$ } (—)
- η : Fractional recovery (—)
- θ : Average residence time { $H/(F+G)$ } (min)
- σ_P : Standard deviation of the product size (mm)

Subscripts 1, 2, and 0, denote particles discharged from the narrow end, from the wide end, and the sum discharged from the both ends, respectively.

(昭和56年10月30日 第19回粉体に関する討論会にて講演)

参 考 文 献

- 1) 神保元二, 化学工学, **32**, 740 (1968).
- 2) Kapur, P. C., and D. W. Fuerstenau, Ind. Eng. Chem., Process Design and Development, **5**, 5 (1966).
- 3) 日本粉体工業協会, “造粒便覧”, p. 83 (1975) オーム社
- 4) 関口 勲, 東畑平一郎, 化学工学, **32**, 1012 (1968).
- 5) 杉本益規, 川上隆司, 化学工学論文集, **8**, 530 (1982).
- 6) 杉本益規, 化学工学, **22**, 238 (1958).
- 7) 杉本益規, 山本健市, 化学工学論文集, **7**, 335 (1979).
- 8) 杉本益規, 松井泰次郎, 山本健市, 化学工学論文集, **7**, 512 (1981).
- 9) 川上隆司, 杉本益規, 化学工学協会第46年会要旨集, p. 94 (1981).
- 10) Ouchiya, N., and T. Tanaka, Ind. Eng. Chem., Process Design and Development, **20**, 340 (1981).
- 11) Molerus, O., Chem. Ing. Tech., **39**, 792 (1967).