- 9) Hikita, H. and S. Asai: *Kagaku Kōgaku (Chem. Eng., Japan)*, **28**, 1017 (1964)
- 10) Jones, L. O. and S. Whitaker: *AIChE J.*, **12**, 525 (1966)
- 11) Kataoka, H. and K. Miyauchi: *Kagaku Kōgaku*, **36**, 888 (1972)
- 12) Kojima, H., T. Imanara and H. Inazumi: Preprints of 6th Autumn Meeting of the Soc. of Chem. Engrs., Japan, p. 163, Tokyo (1972)
- 13) van Krevelen, D. W. and P. J. Hoftijzer: *Rec. Trav. Chim.*, **67**, 563 (1948)
- 14) Levich, V. G.: "Physicochemical Hydrodynamics", Prentice Hall (1962)
- 15) Pincent, B. R. W., L. Pearson and F. J. W. Roughton: *Trans. Faraday Soc.*, **47**, 263 (1951)
- 16) Pincent, B. R. W., L. Pearson and F. J. W. Roughton: *Trans. Faraday Soc.*, **52**, 1512 (1956)
- 17) Rosenberg, D. U.: "Methods for the Numerical Solution of Partial Differential Equations", American Elsevier (1969)
- 18) Ruckenstein, E. and C. Berbente: *Chem. Eng. Sci.*, **20**, 795 (1965)
- 19) Stainthorp, G. P. and J. M. Allen: *Trans. Instn. Chem. Engrs.*, **T 85** (1965)
- 20) Whitaker, S.: *Ind. Eng. Chem., Fundamentals*, **3**, 132 (1964)

技術報告

搅拌噴流層による粒子のコーティング速度について*

鬼山和彦**・関口 勲**

東畑 平一郎**

中央大学理工学部 工業化学科

緒 言

造粒操作は食品、製鉄、製薬および肥料工業などの諸分野で広く行われ、皿型、ドラム型および流動層型などの装置形式が多く研究開発されている⁹⁾。流動層型造粒機については Lee ら¹⁰⁾、Grimett¹¹⁾、Metheny ら¹²⁾ および原田ら¹³⁾ によって研究され、これらの装置は、結合液ないしは被覆液を噴霧するノズルを流動層の自由表面上において、下向きに設置するかまたは装置の側面に取り付けた機構を主体としている。本研究の搅拌噴流層形式*** では、実際の造粒操作に関して、1) 噴霧液滴の飛散逃出、2) ノズル付近の粉体付着凝集、3) 流動化粒子群の局所的な液滴の付着、4) 粒体凝集物の異常な成長などに起因するトラブルの防止を目的とした機構を持つ。このために本装置の構造は、後述のように搅拌パドルを内蔵した流動層の形式で、かつ層上部付近に上向きの2流体ノズルを設置してコーティング噴霧液と粒子群

との一様な接触のもとで造粒を行えるようにした。

そこで本報告ではこの種の回分式造粒装置形式における粒子のコーティングの問題を取り上げ、その粒子の成長速度式について主に検討を行った。その結果、コーティング総括速度定数が噴霧領域での粒子成長速度定数と領域因子なるものの積で示された。そして、この総括速度定数とコーティング溶液の濃度、ノズルの気-液比との相関およびこの領域因子と無次元項表示による操作変数との相関式を実験的に検討し、これらの相関が本搅拌噴流層の設計指針に寄与することを認めた⁹⁾。

1. コーティング粒子の成長速度式

Fig. 1 は本装置における層内の粒子の運動状態を示す。ここで層内を、その中心部の2流体ノズルによるコーティング液の噴霧とその同伴空気流の影響を受ける部分さらにそれ以外の部分に区分し、前者を噴霧領域とし後者を流動領域と呼ぶことにする。ノズルより噴霧するコーティング液は流動領域から噴霧領域に入ってくる粒子に付着し、粒子群はある滞留時間を経て乾燥されつつ流動領域へ戻る。粒子の成長はこの過程を連続的に繰り返すことによって進行すると考える。ここで1個粒子に対するコーティング液中の固形分の付着する速度 $dm/d\theta$ はその粒子の表面積に比例する****として次式で表す。

* <Studies on Rate of Coating Particle in the Stirred Spouted Bed>

Received on November 16, 1972

化学工学協会第4回秋季大会（広島，1970年10月）および同東北大会（仙台，1972年8月）にて講演発表

** Kazuhiko Kiyama (学生会員), Isao Sekiguchi (正会員) and Heiichi Tohata (正会員) Dept. of Ind. Chem., Chuo Univ., Tokyo, Japan

*** 本論文でいう搅拌噴流層とは、搅拌パドルを内蔵した流動層の一部にノズルからの噴流を付置し、粒子群を強制循環させたものをいい、ノズルの噴流がない場合を搅拌流動層として区別した。

**** ノズルからのコーティング液によって粒体が凝集する場合には、別に取り扱う必要がある。

Fig. 1 Flow pattern of solid particles in stirred spouted bed

Fig. 2 Details of stirred spouted bed settled multiple paddles

* コーティング粒子の物質収支より、 $dm = \rho_s \cdot \phi_{sr} \cdot r^2 \cdot dr$ が成り立つ。ここで ϕ_{sr} は半径基準の表面積形状係数、 r は造粒物の半径を示す。上式を造粒径 x で表示すると、 $dm = 1/2 \cdot \rho_s \phi_{sr} x^2 dx$ 、 $\phi_s = \phi_{sr}/4$ になり、この式の辺々を $d\theta_s$ で割れば得られる。

$$\frac{dm}{d\theta_s} = k S_p(x) \quad (1)$$

ここで定数 k はノズルのコーティング溶液の噴霧条件によって影響を受けるものと推定される。一方粒子径 x なる粒子の成長速度 $dx/d\theta_s$ は、 $S_p(x) = \phi_s x^2$ および $dm/d\theta_s = \frac{1}{2} \cdot \phi_s x^2 (dx/d\theta_s) \rho_s$ の条件を Eq. (1) に適用すると次式になる。

$$\frac{dx}{d\theta_s} = \frac{2k}{\rho_s} = R \quad (2)$$

ここに粒子の成長速度定数 R は層内粒子に対するコーティング溶液の付着条件によって変化する。上式で示される θ_s は噴霧領域に滞留する粒子の滞留時間であり、これは容易に測定できないので Lee ら⁵⁾ と同様に、実験時間 θ に対して次式のように表す。

$$\frac{d\theta_s}{d\theta} = k_1 \frac{V_s}{V} \quad (3)$$

ここに、 V_s は噴霧領域の体積、 V は搅拌噴流層の全体積を示し、 k_1 は 2 流体ノズルの同伴空気流に起因した両領域における粒子群のみかけ密度に影響される定数であり、これは $k_1 = \rho_{s1}/\rho_s$ で示される。結局、実験時間 θ におけるコーティング粒子径はシード粒子径 x_i として次式で示される。

$$x = C\theta + x_i$$

ただし

$$C = \frac{R k_1 V_s}{V} \quad (4)$$

定数 C は前述した噴霧領域での粒子成長速度定数 R と区別し、本噴流層内での総括粒子成長速度定数と呼ぶことにする。また噴霧領域の大きさに関係する $k_1 (V_s/V)$ を領域因子 Z_f と呼び、 $C = Z_f \cdot R$ で総括粒子成長速度定数を定義し、以下の検討の際には操作変数と関連して両領域の相互関係を示すことにする。

2. 実験装置および操作方法

実験装置本体の詳細は Fig. 2 に示してある。内径 228 mm、高さ 800 mm、厚さ 1 mm のステンレス製の円筒部 1 と円錐角 60°、高さ 160 mm、厚さ 1.5 mm の同製の円錐部 2 および内径 79 mm、高さ 140 mm、厚さ 4.5 mm の耐熱硬化ガラス製の円筒部 3 の三つの部分より成り立っている。この円筒部 3 内には鋼製の長さ 30 mm、高さ 2 mm、幅 2 mm でエッジが付いている搅拌パドル 5 が交互に位置している。そして、その中央には上向きに 2 流体ノズル 4 を組み込んである。この 2 流体ノズルは液側で内径 0.34 mm、外径 0.48 mm、それに空気側で内径 1.22 mm、外径 1.75 mm の鋼製である。Fig. 3 は本 2 流体ノズルの噴霧液滴の粒度分布の実測値を抜山-棚沢の式⁷⁾で示したものである。Fig. 3 によれば、このノズルの液滴分布は抜山-棚沢の式を満足している。この

分布の測定に際しては、ワセリンを塗布したプレパレート上に写真用シャッターを用いて噴霧液滴をうけ、それを顕微鏡写真にとり液滴径を求めた。なおノズルは搅拌パドルと同時に回転するのではなくて、固定して設計してある。搅拌パドルを回転させるためにプーリー6にベルトより動力を与える。多孔板は Fig. 2 で示される位置にあり、孔と孔との距離は 5.0mm, 孔の径 1.5mm, そしてその開孔率は 7.49 パーセントの真ちゅう製である。

流動化流体を整流するために、多孔板に 350 メッシュのスクリーンを取り付けた。サンプリング位置は Fig. 2 に示すサンプル採取口 19 である。Fig. 4 は実験装置のフローシートを示している。コンプレッサー 8 よりノズルの 2 次側流体（空気）を装置本体内に圧入する。圧入圧力はゲージ圧 2Kg/cm² であり、その流量はオリフィス 9 で測定し、調節はニードルバルブ 10 で行った。次には装置本体に適当量の粒体を塔上より投入した。流動化ガスはブローア 11 で熱源 12 を通して装置塔底より流入させる。なお、この流量は空塔で 8.23 l/sec の一定な条件にした。流入温度は熱電対 (C-A 型) により塔入口で測定し、その温度は 120°C の条件に保った。コーティング剤は岩塩を用い、タンク 13 でヒーター 14 によって溶解し、サーモスタットにより一定温度 60°C に調節してある。コーティング溶液は定量ポンプ 15 により流入させ、その流量はオリフィス 16 で測定し、この調節はニードルバルブ 17 で行った。また、粒体の円滑な流動化には搅拌パドルをモーター 18 により回転数 518 rpm の条件下で実験した。シード粒子としてガラスビーズ（真密度、2.58 g/cm³、その大きさ（体面積平均径）が、No. 2: 0.600mm, No. 3: 0.470mm, No. 4: 0.305mm の 3 種類のものを用いた。

サンプリング方法は、サンプル採取口よりノズルからの溶液を噴霧させた時の時刻を零として、それより 30 分間隔でもって 120 分まで行った。採取した試料は顕微鏡で写真撮影し、その粒径を測定して個数基準の粒度分布および代表径（体面積平均径）を求めた。

3. 実験結果および考察

3・1 コーティング粒子の総括成長速度定数 C について

Fig. 5 にシード粒子の代表径が 0.600mm であるガラス粒子に関して、一定の操作条件における粒度分布を示す。

Fig. 6 はシード粒子の代表径が 0.470mm であるガラスビーズに関して、コーティング時間 θ と粒子径 x_r との相関を示している。この結果、コーティング剤濃度の増加は速度定数に著しく影響し、その測定値が Eq. (4)

Fig. 3 Relation of $X^{3/2}$ and $\frac{dn}{X^2 dx}$ for two-fluid nozzle

1 Cylinder	6 Pulley	12 Heater	17 Needle valve
2 Cone	8 Compressor	13 Tank	18 Motor
3 Cylinder	9 Orifice	14 Heater	
4 Nozzle	10 Needle valve	15 Pump	
5 Paddle	11 Blower	16 Orifice	

Fig. 4 Schematic diagram of experimental apparatus

で充分に表せることがわかる。さらに、コーティング粒子群の顕微鏡観察による結果から、コーティング噴霧体

Fig. 5 Size distribution of coating particles

Fig. 6 Relation of θ and x_{ss} in stirred spouted bed

および粒子同士の凝集が生じておらず、かつコーティング剤は粒子表面に均一に付着していることを認めた。

一方、総括粒子成長速度定数 C は領域因子 Z_f と噴霧領域での粒子成長速度定数 R との積で示されているが、 R はノズルからのコーティング噴霧条件により規定されるものであり、 Z_f は粒子充填量、流動化ガス量および攪拌パドル回転数など、いわゆる噴霧領域に存在する粒子群の滞留量を規定する因子により変化するものと推定される。そこで、総括粒子成長速度定数に対する噴流層の操作変数の影響を検討する場合にはどちらか一方の因子を固定して比較しなければならない。Fig. 7 は流動化ガス量、攪拌パドル回転数および充填量など Z_f 因子に影響すると考えられる変数を一定にして、 R が総括粒子成長速度定数 C に及ぼす影響を示したものである。これによるとコーティング噴霧液滴径の影響は定数 C にほとんど現れておらず*、 Z_f 一定とみなせる条件下ではコ

* 使用したノズルにおいて、気-液比 (1,000 Q_L/Q_G) が 1.797 および 2.107 である場合に、液滴の体面積平均径はそれぞれ 69 ミクロン、73 ミクロンであり、その差が数ミクロンであったために、顕著な影響が示されなかったと考えられる。

Fig. 7 Relation of concentration of binding liquid agent and growth rate constant of coating particle

ーティング物質の収支そのもので C が決まってくることをわかる。

立場を変えて次項では、領域因子がいかにコーティング総括粒子成長速度定数 C に作用しているかを操作変数の無次元項により定量的に検討してみた。

3・2 領域因子と操作変数との相関について

前述したように、 Z_f 因子は、 $Z_f = k_1(V_s/V)$ で与えられるが、 Z_f 因子を算出するにあたり、噴霧領域とその他の領域における粒子群のみかけ密度の直接的測定は、装置内の特異的な粒子流動などにより、現状では困難である。そこで、 Z_f 因子を噴霧および噴流層内に滞留する粒子量の比から誘導し、それぞれの領域に滞留する粒子量を本攪拌噴流層の流動状態から得られた数式モデルのパラメータ値から算出した⁴⁾ (Appendix 参照)。以下では粒子群の滞留量で定義した Z_f 因子により検討を行った。

領域因子は、層内充填量が一定な条件では、噴霧領域に滞留する粒子量が増大することより大きな値を示す。したがって Z_f 因子はノズルの空気量、流動化ガス量および攪拌パドルの回転数の増加とともに大きくなることが推定されよう。Fig. 8 は Z_f 因子と充填量とパドル回転数との影響を考慮した F_p/WN の無次元項との相関をノズルのガス流量 Q_G および流動化ガス量 Q のパラメータで示したものである。これによると、 Z_f 因子はパドル回転数、ノズルのガス流量および流動化ガス量の増加とともに大きくなっている。したがって、パドル回転数および空気量の増加はコーティング総括成長速度定数の増大に寄与することが認められる。結局、無次元量 F_p/WN , Q_G/Q (ノズル 2 次空気量の影響の項) および円筒基準のレイノルズ数を用いて Z_f 因子に関する実

験式を求めると、Eq. (5) が得られる。Fig. 9 はこれを示したものである。

$$Z_f = 1.3 \times 10^{-8} (F_p/WN)^{-0.73} (Q_a/Q)^{3.0} (D_{cu} \rho_f / \mu_f)^{2.5} \quad (5)$$

ただし、 $0.012 < Q_a/Q < 0.026$, $5,900 < D_{cu} \rho_f / \mu_f < 8,900$, $2.0 \times 10^{-4} < F_p/WN < 8.0 \times 10^{-3}$ の範囲である。

この式は操作変数からその数値の算出を可能にし、本攪拌噴流層による粒子のコーティング速度に関する設計指針に役立つことが認められた³⁾。

結 言

本研究は、運動している粒子群と上下方向でコーティング剤との様な接触をもたらすために、噴流層内で上向きに取り付けた2流体ノズルとそれに円滑な流動を起こさせる攪拌パドルを備えた攪拌噴流層について行ったものである。コーティング粒子成長速度式を、層内を流動と噴霧の領域に分けて誘導し、また、総括粒子成長速度定数については、噴霧領域での粒子成長速度定数と領域因子とに分けて検討を行った。その結果、以下に述べる結論を得た。

1) コーティング粒子群の顕微鏡観察により、本実験の条件下では目的どおり、コーティング噴霧体および粒子同士の凝集は生じておらず、コーティング剤が粒子表面に均一に付着していることがわかった。

2) 粒子成長に関しては、その測定値が Eq. (4) で充分に表せることからコーティング粒子成長速度式 [Eq. (4)] は有用であることが認められた。

3) 噴流層内でのコーティング総括成長速度定数を、噴霧領域での成長速度定数とこの領域に滞留する粒子量を規定する領域因子に分けることにより、操作変数との関連性を明確にした。

4) その結果、領域因子 Z_f は攪拌パドルの回転数ノズルの2次空気量および流動化ガス量などにより規定されることが判明し、操作変数の無次元項表示による相関から Eq. (5) で示される実験式を得た。

Appendix

Z_f 因子の算出について

噴霧領域での粒子群のみかけ密度 ρ_{0s} および噴流層内のそれ ρ_0 はそれぞれ Eq. (a), Eq. (b) で与えられる。

$$\rho_{0s} = W_s/V_s \quad (a) \quad \rho_0 = M/V \quad (b)$$

ここで W_s は噴霧領域内での粒子群のホールドアップ量、 M は噴流層内での粒子ホールドアップ量を示す。

2流体ノズルの2次空気流により、噴霧領域の粒子群のみかけ密度と噴流層のみかけ密度には差が生じる。そこで、この差を補正するために、前述した定数 k_1 を用いて Eq. (a) と Eq. (b) とを等置すれば、結局次式が得られる。

Fig. 8 Relation of Z_f and F_p/WN

Fig. 9 Relation of $Z_f(Q_a/Q)^{-3.0}(D_{cu}\rho_f/\mu_f)^{-2.5}$ and F_p/WN

$$k_1(V_s/V) = W_s/M = Z_f \quad (c)$$

したがって領域因子 Z_f は噴流層内に滞留する粒子量と噴霧領域に滞留する粒子量の比により示される。そして W_s および M は、連続式の攪拌噴流層における流動および噴霧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図でモデル化した場合と同様に、次式で示される時定数などから算出した。

$$T_1 = \frac{W_s(1-r)}{rF_p} \quad (d)$$

$$T_2 = \frac{W_f(1-r)}{F_p} \quad (e)$$

ここで、 r は噴流に同伴される粒子の割合、 W_f は流動領域に滞留する粒子量、 F_p は粒子供給速度を示す。 Z_f 因子の算出手順にあたっては、モデル化して得られた滞留時間分布の線図より T_1 および r を定め、Eq. (d) に F_p を代入することにより W_s を求めた。また M を連続式攪拌噴流層の全粒子ホールドアップ量 W からピストン流れ部の粒子ホールドアップ量 W_p を差し引いて求めた。このようにして算出した数式モデルのパラメータの適用性を検討するために、滞留時間分布の平均の時定数、散乱の時定数およびボード線図でパラメータの妥当性を

Fig. 10 Relation of $(T_m)_{calc}$ and $(T_m)_{exp}$

Fig. 11 Relation of $(T_s)_{calc}$ and $(T_s)_{exp}$

Fig. 12 Bode diagram

考察した。Fig. 10 および Fig. 11 は実測の T_m と T_s に対して推定された r , T_1 , T_2 の値から得られた T_m , T_s との相関を示している。これらの図から平均の時定数、散乱の時定数の計算値と実測値とに充分な相関が認められた。しかしながら選ばれたモデルの関数形が不適当であれば、一般に数式モデルのパラメータ値は、ボード線図の高周波領域および低周波領域の少なくともどちらか一方で計算値と実測値にずれを生じる。したがって両領域での一致の程度は数式モデルのパラメータの適否を判断する尺度となる。Fig. 12 の実線は、上述のようにして推定したパラメータを用いてモデルのゲイン、位相から計算された曲線を示し、プロットは実測の粒子の滞留時間分布をベクトル加算して得られた値である。この図より、高低周波領域において計算値と実測値が十分に一致している。以上のことから推定された数式モデルのパラメータ値の妥当性が証明された。

Nomenclature

C = overall growth rate constant of particles [cm/sec]	S_p = surface area of a particle [cm ²]
C_a = concentration of agent in spray liquid [—]	T_1 = time constant as defined by Eq. (d) [min]
D_c = diameter of cylinder [cm]	T_2 = time constant as defined by Eq. (e) [min]
F_p = feed rate of particles [g/min]	T_L = delay time [min]
$ G(j\omega) $ = gain [—]	T_m = mean delay time constant [min]
$LG(j\omega)$ = phase [degree]	T_s = dispersion time constant [min]
$j = \sqrt{-1}$ [—]	u = superficial gas velocity in cylinder part [cm/sec]
k = constant as defined by Eq. (1) [g/cm ² ·sec]	V = volume of stirred spouted bed [cm ³]
k_1 = constant as defined by Eq. (3) [—]	V_s = volume of spray zone [cm ³]
M = weight of particles in stirred spouted bed (= $W_d + W_f + W_s$) [g]	W = packed weight of particles (= $W_d + W_f + W_p + W_s$) [g]
m = weight of a particle [g]	W_d = holdup of particles in apparent dead space [g]
N = rotational speed of paddle [rpm]	W_f = holdup of particles in fluidized zone [g]
Q = gas flow rate [cm ³ /sec]	W_p = holdup of particles in plug flow zone [g]
Q_a = gas flow rate of air in nozzle [cm ³ /sec]	W_s = holdup of particles in spray zone [g]
Q_L = liquid flow rate of solution in nozzle [cm ³ /sec]	X = diameter of spray droplet [cm]
R = growth rate constant of particles in spray zone [cm/sec]	X_{vs} = volume surface mean diameter of droplet [cm]
r = ratio of particles entrained into jet [—]	x = particle diameter [cm]
	x_1 = diameter of a feed particle [cm]

ρ_{vs}	= volume surface mean diameter of a particle [cm]		spouted bed	[g/cm ³]
Z_f	= zone factor [—]	ρ_{zs}	= apparent density of particles in spray zone	[g/cm ³]
θ	= residence time of particles in stirred spouted bed [sec]	ρ_f	= density of gas	[g/cm ³]
θ_s	= residence time of particles in spray zone [sec]	ρ_s	= density of particles	[g/cm ³]
μ_f	= viscosity of gas [g/cm sec]	ϕ_s	= surface shape factor [—]	
x_s	= apparent density of particles in stirred	ω	= angular frequency	[rad/min]

Literature cited

- 1) Grimett, E. S.: *AIChE J.*, 10, 717 (1964)
- 2) Harada, K. and J. Fujita: *Kagaku Kōgaku*, 33, 793 (1969)
- 3) Kiyama, K., I. Sekiguchi and H. Sudo: Bull. of the Faculty of Sci. and Eng., Chuo Univ., 15, 205 (1972)
- 4) Kiyama, K. and H. Sudo: *Kagaku Kōgaku*, to be published
- 5) Lee, B. S., Chu, J. C. and S. Lawroski: *AIChE J.*, 8, 53 (1962)
- 6) Metheny, D. E. and S. W. Vance: *Chem. Eng. Progr.*, 58, 45 (1962)
- 7) Nukiyama, S. and Y. Tanasawa: *Trans. Soc. Mech. Engrs.*, 4, 86 (1938)
- 8) Sekiguchi, I. and H. Tohata: *J. Res. Assoc. Powder Tech.*, 7, 133 (1970)