(色材, 53 [10] 594-601. 1980)

粉体の凝集造粒とその操作

関 口 勲*

1. ま え が き

造粒とは文字どおり“粒”をつくる操作をいい、とくに最近では固体処理上の工程や製品の管理面で重要視されるようになってきた。粒をつくる観点からは粉碎、晶析、噴霧乾燥、液相反応(例、マイクロカプセル)などの操作も広義の造粒であるが、化学工学の分野では①粉体の凝集(agglomeration)ないしは被覆(coating)によって粒径を増大させる方法、②粉体凝集物の細分(reduction)ないしは溶解物質の分散冷却固化(prilling)による方法を広く造粒といい、圧縮や押出しの操作を伴う場合には成形ともいう。

さて、熔融物質の噴射造粒以外の造粒機構についてふれてみると、微粉体を小集合群に結合させて粒あるいは小成形物とする操作にはバインダーを用いずに常温あるいは高温下で強力な圧縮力を利用する場合、またはそれほど高圧縮力を用いなくても適当なバインダーを粉体に混合して凝集造粒をおこなわせる場合がある。いずれにしても、粉体の凝集(付着)という現象が造粒操作の基礎になるのであるが、いわゆる粉体物性からいきなり造粒の操作設計ができるという現段階ではない。すなわち、粉体物性、凝集付着現象論、粉体の力学的特性、造粒装置の構造と操作、造粒物の諸特性というような一連の相互関係による広い領域から造粒操作は成り立っている。

著者は色材関係の分野について全くの素人であり、個々の色材を取り上げて造粒の効用を述べるのがむずかしいので、ここでは造粒操作の一般論あるいは留意点を紹介し、当協会の方々に少しでもお役に立てばと考える。

2. 造粒装置の特徴

造粒プロセスの構成は、その代表例として図-1のように示され、図中の二重枠の部分が造粒装置の本体である。造粒の前処理には混合、ねっか、溶解、溶融などの操作による原料の材料調整を行なったり、あるいは後処理には分級、乾燥、焼結、解砕などの操作を伴うことが多い。造粒装置の本体はその造粒機構の点から類別すると表-1のように示され、これらは多種多様の造粒目的に応じて開発された代表的な装置形式である。ここで造粒機構を二通りに分類しているのは次のような理由による。

(1) 自足造粒：転動(振動、混合など)、流動層(噴流層)、かくはん混合などによる造粒機構で、材料自体

1) 転動造粒系

2) 流動層造粒系

3) 押出造粒系

4) 圧縮造粒系

5) 解砕造粒系

6) 噴射造粒系

図-1 造粒プロセスの構成例

昭和 55.6.18 受理

Agglomeration Characteristics of Powders for Granulation Techniques

Isao SEKIGUCHI

* 中央大学理工学部

東京都文京区春日 1-13-27 (〒112)

表-1 造粒形式の分類³⁵⁾

分類	形 式			造粒方法の特徴
	①	②	③	
〔Ⅰ〕 自足造粒機構	(a) 転動造粒	回 転 皿	回 転 円 筒	① 傾斜した回転皿内の供給粉体に液体バインダーを散液して凝集造粒物を生成させ、かつ回転皿の分級効果を利用して比較的大きく成長した造粒物をリムより排出させる。
				② 傾斜した回転円筒に湿潤粉体を供給し、これが円筒内で転動運動しているうちに凝集造粒物となる。
				③ 回転円筒の操作方式と同様であるが、踵切円錐形による凝集造粒物の分級効果を利用しつつ比較的大きく成長した造粒物を排出させる。
	(b) 流動層造粒	流 動 層	変 形 流 動 層	① 熱風で粉体を流動化させ、これにスプレから液体バインダー(水溶液、コロイド液など)を散液して凝集造粒を行う。なお、約150 μ 以上の粒子径の粉体では操作条件によって被覆造粒も可能である。
				② ①の場合と同様であるが、層内の粉体に循環流を与え、かつ分級効果を利用して比較的大きく成長した造粒物を排出させる。
				③ 噴流層の特徴を利用して粗い粒子にスプレからの水溶液、コロイド液などを付着させ、同時に乾燥させながら被覆造粒を行う。
	(c) かくはん造粒	バ グ ミ ル	ヘ ン シ ェ ル	① 粉体と液体バインダーを混練し、フロック状の粉体凝集物を出口の解砕機構によってほぐす。
				② 粉体と液体バインダーを高速でかくはん混合して細粒状の凝集造粒物にする。
				③ 回転容器内の粉体に液体バインダーを添加しつつ、回転混合羽根によってかくはんして凝集造粒物にする。
〔Ⅱ〕 強制造粒機構	(d) 解砕造粒	回 転 ナ イ フ (垂 直)	回 転 ナ イ フ (水 平)	① 回転ナイフによって粉体の凝集物を解砕してスクリーンから排出させる。
				② 高速の回転ナイフによって粉体の凝集物を解砕して円筒状のスクリーンから排出させる。
				③ 角柱状ないしは円柱状の回転バーによって粉体の凝集物をほぐすようにしてスクリーンから排出させる。
	(e) 圧縮成形	圧 縮 ロ ー ル	ブ リ ケ ッ テ ィ ン グ ロ ー ル	① 粉体に適当なバインダーを混合したものを圧縮ロールで板状に成形し、これを後工程で解砕処理する。
				② 回転ロール表面のモールドに粉体をくいこませ、かつ圧縮してブリケットをつくる。
				③ 臼の中に定容量の粉体を充てんし、これを下杵と上杵の間で圧縮成形して錠をつくる。
	(f) 押し出し成形	ス ク リ ュ	回 転 多 孔 ダ イ ス	① 低湿の粉体をスクリューで輸送し、かつ円筒状のダイスから押し出す。
				② 低湿の粉体を回転ダイスとロールの間に投入し、これをロールによってダイスから押し出す。
				③ 低湿の粉体を円筒状のダイス内に投入し、これを回転パドルによってダイスから押し出す。
	(g) 溶融造粒	ス プ レ 塔	噴 流 層	① ノズルによって溶融物質を微粒化し、この落下溶融液滴を冷風中で固化させる。
				② 上向きのノズルから溶融物質を噴射し、これと同時に空気流に伴った水滴で溶融液滴を冷却固化させる。
				③ 冷却したスチールベルト上に溶融液滴を滴下して冷却固化させる。

は所望の凝集（被覆）造粒の状態になるまで装置内に滞留させる必要がある。

(2) 強制造粒：押出し、圧縮、解砕、噴射などによる造粒機構で、ダイス、モールド、ロール（タイヤ）、ブレード、ノズルなどを用いる機械的な要因に伴う材料の力学的挙動が主体となる。

自足造粒機構による造粒法では粉体の凝集（付着）に適性な液体バインダーの添加が必要であり、固・液・気系の凝集・付着現象あるいは化学反応に関連した装置の操作設計が基本的な問題となる。強制造粒機構では通常の乾燥粉体、湿潤粉体、熔融液（微粒子を含む場合もある）などを対象材料として、いわゆる圧縮論、流動論、スプレー論などのレオロジーを基礎技術とする分野である。そして、このような各種の造粒機構をもった装置によって生産される造粒物としては、分散性、圧縮性、崩壊性、溶解性、保形性、その他の使用目的に合致した諸要件の改善につながる最適寸法、形状、内部構造、硬さなどにしなければならない。したがって、造粒操作には粉体原料を単に造粒すればよいということばかりでなく、造粒物の品質管理面も含めた広い領域にわたる技術的配慮が必要になってくる。

なお、顔料、塗料、印刷インキなどを主として取り扱う色材工業では、製造工程中の作業能率の改善をはかったり、あるいは粉体特性の改善による高度の商品化を目的として、いわゆる粉体の顆粒化が多いとすれば、表-1の流動層、かくはん、解砕、押出しなどの操作による造粒法が対象になるものとする。処理量の多いカーボンブラックについては、転動造粒法が採用されている^{1,2)}。

3. 粉体の凝集と造粒

上述の各造粒法での粉体原料については造粒操作を行なうに際して表-2のような凝集性、成形性あるいは解

表-2 造粒機構の代表的パターン

造粒系統	造粒の代表的パターン	造粒性
転動造粒	転動（振動、混合）中の湿潤粉体の凝集	凝集性
流動層造粒	流動層内粒子の液滴付着による凝集	
押出造粒	ダイス押出しによる湿潤粉体の成形	成形性
圧縮造粒	モールド内粉体の圧縮による成形	
解砕造粒	粉体凝集物の再分散	解砕性 分散固化性
噴射造粒	熔融物質の分散冷却固化	

表-3 粉体の凝集要因

固体粒子間の結合 力	a) 分子間力 (van der Waals 力) b) 各種の量子効果による結合力 c) 静電荷、磁力による結合力
自由流動液体によ る付着および凝集	a) 粒子間の橋かけ液体による界面 張力および毛細管負圧 b) 充滿液体による毛細管負圧
非流動物質による 付着および凝集	a) 粘結剤による結合力 b) 吸着層による引力
固相の橋かけ形成 による結合力	a) 焼結、焼固、溶解 b) 化学反応 c) 溶質物質の再結晶など

砕性というような特性を備えていることが必要であり、噴射造粒法を除くと粉体の凝集・付着現象の問題が介在している。すなわち、固体粒子間の結合力の要因としては表-3のような種類をあげることができ、造粒物はこの種の凝集（付着）要因によってハンドリングに耐えるものとしなければならない。固体粒子間の結合力の詳細については文献³⁻⁸⁾を参照されたい。

いわゆる乾燥状態にある固体粒子間力で造粒操作と関連して注目されるのは、マクロ粒子間の問題で van der Waals 力に関する Dahneke⁹⁾の研究があげられる。すなわち、接触変形している球状固体粒子間力 (F_{coh}) については、Hamaker 式に反発力を考慮した Hertz 式を適用して次式が成立する。

$$F_{coh} = \frac{A}{12Z_0^2} \cdot \frac{x_{p1} \cdot x_{p2}}{x_{p1} + x_{p2}} \left(1 + \frac{A^2 k^2}{108Z_0^2} \cdot \frac{x_{p1} \cdot x_{p2}}{x_{p1} + x_{p2}} \right) \quad (1)$$

ここに、 $k = (1 - \nu^2)/Y$ で、 ν はポアソン比、 Y はヤング率、 A は Hamaker 定数、 Z_0 は接触変形後の固体粒子間の距離、 x_{p1} 、 x_{p2} は 2 個の固体粒子直径である。(1) 式の右辺第 2 項は強い圧縮応力下での固体粒子間における接触変形の影響を表わす。表-4 は k の値による硬質、中間および軟質の物質に分け、それぞれの場合の

表-4 $F_{coh} / \left(\frac{A}{12Z_0^2} \cdot \frac{x_{p1} \cdot x_{p2}}{x_{p1} + x_{p2}} \right)$ の値

粒子径 [μ]	硬質物質 ($k = 2 \cdot 10^{-12}$ m^2/N)	中間物質 ($k = 2 \cdot 10^{-11}$ m^2/N)	軟質物質 ($k = 2 \cdot 10^{-10}$ m^2/N)
(A = 10^{-19} J, $Z_0 = 4 \text{ \AA} = 4 \cdot 10^{-10} m$)			
0.1	1.000	1.002	1.226
1.0	1.000	1.023	3.261
10	1.002	1.226	23.61
100	1.023	3.261	227.1

$F_{coh}/[A/12 Z_0^2 \cdot x_{p1} x_{p2} / (x_{p1} + x_{p2})]$ の値を示す。この結果から判断すると、銅、鉄、ガラス粉などに比べてプラスチックのような粉体の方が圧縮成形しやすいことが理解できよう。また、固体粒子表面での化学吸着と関連して興味ある点は粉砕、研磨などによって生じた新表面が Beilby 層（層厚：数百Å）の形成によって化学活性に富む粉体であり、この種の Kramer 効果はその非可逆性とともに関係する粉体表面物性、ふん囲気とも関係する粉体圧縮のような場合の凝集要因の一つにあげられよう。なお、粉体の静電帯電については一般に van der Waals 力に比べて弱い結合力¹⁰⁾で、かつ不安定のため、工業上の造粒操作に大きく影響するものとは考えにくい。

このほか、圧縮力のみによって粉体の凝集要因をつくりだす方法としては、加熱によって固体粒子の表面改質ないしは焼結のような現象を誘発させて固体粒子間の接着を促進させる場合がある。焼結はたとえ融点以上に加熱しなくても、表面構造の変化、ガス脱着、活性化、軟化などによって凝着する粉体固有の熱的性質、あるいは蒸着、表面拡散、内部拡散、粘性（塑性）流などの固体粒子間の物質移動を伴う機構があげられる⁷⁾。このように焼結現象を二通りに分類してみると、特に前者の場合には造粒の予備処理として流動層や混合機で粉体を加熱してからブリケットting、タブレットtingなどの操作を行なって造粒物（成形物）とすることができ、鉱石、金属、石炭、プラスチックなどの粉体を高温（ホット）ブリケットtingで実施している例がある。後者の物質移動を伴う場合は十分に時間をかけて操作できる加熱方式の転動造粒（円筒形）を別として、粉体充てん物を加熱しながらの造粒操作では効率がわるく、造粒後の問題となる。

強い圧縮力による固体粒子間の接着を期待せずに粉体を凝集させる方法としては、加湿とか、特別の液体バインダーを粉体に混入して、すでに述べた各種の造粒法を対象としてみる事ができる。まず、一般に気相中の蒸気圧を制御することによって固体粒子表面には微小な液滴核を生じさせ^{*}、これが毛管凝縮液に発達して固体粒子間に橋かけ液体が形成される。凹面状のメニスカス表面の蒸気圧はいわゆる液体平面上の蒸気圧よりも小であるため（Kelvin 式）、メニスカスに蒸気が凝縮しやすくなって橋かけ液体の形状は急激に大きくなる。すなわち気相中での橋かけ液体の存在は Kelvin 式と Young-Laplace 式から次式のように示される。

$$\frac{RT}{v_m} \ln \frac{P_0}{P} = \sigma \left(\frac{1}{R_2} - \frac{1}{R_1} \right) \quad (2)$$

ここに、 P/P_0 は相対湿度、 R はガス定数、 T は温度、 σ は液体の表面張力、 v_m は液体のモル比容、 R_1, R_2 は橋かけ液体表面上で互いに直交する面における曲率半径である。（2）式は橋かけ液体内外の圧力差（右辺）、相対湿度（ P/P_0 ）および毛管凝縮ポテンシャル（左辺）であって、間接的な固体粒子間の吸引力に対する相対湿度の関係を示す。この種の取り扱いには、吸着層の形成段階も含めて、固体粒子の表面物性、相対湿度、凝集要因などを粉体特有の現象としては握する必要がある。

また、固体粒子間の橋かけ液体については、ぬれ性のよい粉体に直接液体分を添加することによっても生じるし、幾何学的な橋かけ液体の形成状態は気相からの蒸気凝縮の場合と同様であろう。このような湿潤粉体は液体分による潤滑作用も加わって圧縮あるいは押出しによる操作で造粒物ができるようになるが、転動による造粒では塑性限界相当液体分の 70~80% 程度まで含液させる必要がある。しかし、強力に圧密されていない湿潤造粒物では乾燥後に使える適当な硬さの造粒物にならなかったり、あるいは液体分に溶質を含むような場合には乾燥後に結晶化して固結造粒物にもなる。一般には、粉体に適当な成形性（凝集性）と強度をもたせる意味で表-5 のようなバインダーを用いることが多い。もちろん、医薬、食品、飼料、製鉄、化成肥料、農薬、触媒などの諸分野では、それぞれ特有の機能をもった造粒物が要求されるので、この種のバインダーの選定は混入しても差し支えない物質で、造粒物に適当な硬さあるいは崩壊性をもたせることに留意しなければならない、これに造粒装置形式とその操作条件との関係も無視できない^{12~18)}。

4. 造粒操作の留意点

前述のように造粒装置にはそれぞれ特徴的な装置形式があつて、これに粉体の凝集（付着）現象とをからみ合せて如何なる所望の造粒物が得られるかは造粒操作の重要なポイントである。しかし、実際に造粒装置を使って

表-5 造粒に用いられるバインダーの例

水 溶 液 (コロイド液)	砂糖、デキストロース、コーンシロップ、ゼラチン、グルー、CMC、PVA 水ガラス、無機薬品など
他の溶媒とともに 用いられるもの	ワックス、ラッカー、シラック、高分子物質類など
そ の 他	アスファルト、ピッチ、粘土、消石灰、ベントナイト、ドロマイトなど

* ぬれの接触角が零に近いほど、固体表面に熱力学的に安定な液滴核が生成しやすくなる¹¹⁾。

表-6 各種含液率の表示方法

含 液 率	(湿量 基準)	C_w	(液体)の質量 (粉体+液体) の質量	$\frac{C_d}{1+C_d}$
	(乾量 基準)	C_d	(液体)の質量 (粉体)の質量	$\frac{C_w}{1-C_w}$
	(体積 基準)	C_v	(液体)の体積 (粉体)の真体積	$\frac{\rho_p}{\rho_l(1/C_w-1)}$
飽和度		S	(液体)の体積 (粉体)内の 空間体積	$\frac{C_w}{1-C_w} \cdot \frac{1-\varepsilon}{\varepsilon} \cdot \frac{\rho_p}{\rho_l}$

所望の造粒物がどのように得られるかを予測することはむずかしいので、予備的な造粒試験が欠かせない現状であり、ソフト面に重点をおかざるをえない。特に各種各様の湿潤粉体を対象材料とする場合には、かきまぜ混合(ねっか)、転動、圧縮、押出しなどの操作に関連した粉体の複雑な凝集現象を伴うので、ここでは湿潤粉体を主体にした造粒操作の留意点について概説したい。

4.1 粉体材料と液体分

通常、湿潤粉体(固・液・気系)は、乾燥するとあるもろさ(friability)をもつか、あるいは溶質の再結晶によって極端な固結状態に変化したり、逆に液体分の増加に従ってある粘着性(sticky)をおびて可塑性を示し、ついには自由流動の状態になることが知られている。このような現象は固体粒子の粒度、形状、充てん構造などの幾何学的条件が一定であっても、いろいろな表面物性をもつ粉体があるから単に含液率(表-6)のみによって規定できないことも事実である。そこで、粉体の保水能力として吸引圧を調べてみると、大体フルイ分けできる程度(約40 μ 以上)の粉体では毛細管吸引圧を示し、その粒度以下では浸透吸引圧が支配的になってくる^{19,20)}。前者は特に粉体層に液体が充滿している場合に毛管上昇法、あるいは気・液が混相している場合に遠心法によっても求められる²¹⁾。後者の浸透吸引圧は空気加圧法²²⁾、機械的加圧法²³⁾あるいは蒸気圧法などによって求められる。このような特性はバルクの液体の化学ポテンシャルに対して粉体内の液体分による $\Delta\mu$ として熱力学的に取り扱われる¹²⁾。この $\Delta\mu$ は粉体の層構造、含液率、蒸気圧、橋かけ液体のメニスカス、粒子荷電、溶質の存在、力場、温度などによって異なり、湿潤粉体のいろいろなコンシステンシー現象と密接な関係をもつものと考え*。

* 潤潤粉体層内の液体分による化学ポテンシャル $\Delta\mu$ は測定時において動的な影響を無視できないので、この $\Delta\mu$ はあくまで静的な取り扱いのもとに成立する。

図-2 湿潤粉体のかきまぜトルクと含液率の関係

さて、図-2は湿潤粉体のかきまぜ混合時に現われるかきまぜトルクと含液率の一般的関係を示す。粉体は含液率の増加とともに凝集造粒現象をおこし、最大かきまぜトルク付近からペースト状態に移行する傾向があり、生成造粒物の毛管吸引圧 P_s と飽和度 S の関係は次式²⁴⁾を利用して示すことができる。

$$P = \frac{P_s}{\sigma \cos \theta} \cdot \frac{\varepsilon}{1-\varepsilon} \cdot \frac{x_{pvs}}{\phi} = f(S) \quad (3)$$

ここに、 P は P_s に関して(3)式で示す無次元項、 σ は液体の表面張力、 x_{pvs} は固体粒子の体面積平均径、 ϕ は形状係数である。ここで P_s が増加すると化学ポテンシャル(毛管ポテンシャル) $\Delta\mu_c$ の低下量が大きくなり、粉体が液体分を強くとり込む性質をもつが、逆に固体粒子の集合組織としての力学的強度は弱くなる。すなわち、湿潤造粒物(球状)の圧壊硬さは次式²⁵⁾で示される。

$$\frac{L}{x^n} = k = KSP_s (n \approx 2) \quad (4)$$

ここに、 k は凝集強度係数、 K は造粒物の破壊機構に関する定数、 L は荷重、 x は造粒物直径である。凝集強度係数 k は SP_s に比例して増加し、 $S=1$ のときに最大値を示すことになる。また、粘土、その他のコロイド粒子のような固体粒子の集合体では溶質の影響を著しく受けるのであるが、内部摩擦抵抗の小さい粘質土の化学ポテンシャル $\Delta\mu_s$ (浸透ポテンシャル)に対する供試体(円柱状)の降伏値 q_0 の関係は次式²¹⁾で示される。

$$\Delta\mu_s = Kq_0 (K: \text{凝集係数}) \quad (5)$$

前述の浸透吸引圧を示すような湿潤粉体の造粒物では(5)から類推すると、その力学的強度が直接 $\Delta\mu_s$ に比

例して増加するものと考えられる。なお、湿潤粉体のフロック（あるいは小造粒物）の形成は造粒核として造粒操作（転動形式）に有用であるから、そのフロックの形成状態を力学的に調べる方法としては圧縮応力(σ)と対数ひずみ(ϵ)の関係から層構造の変化に伴うコンシステンシー現象としては握できる。このほか、粉体が凝集現象をおこす液体バインダーの適性量は、押込み硬さ試験^{26,27)}、針入度試験法（JIS K 2530）、塑性限界試験法（JIS A 1206）などで塑性限界値に相当する液体分も基準にとると便利である。

4.2 造粒操作上の問題

界面化学的にもぬれ性のよい湿潤粉体は、混合処理での機械的分散作用が加えられるとフロック状の凝集状態になるのが一般である。湿潤粉体を主体とする造粒操作では、このような凝集状態がそのまま造粒物の生成機構に大きく影響する。特にかきまぜトルク、固・液の混合度、粘着性などの時間的変化は、固・液の親和性、含液率、混合機の構造などによって複雑な現象を示す。この種の混合過程としては一般に対流混合、せん断混合、拡散混合などによる混合機構²⁸⁾が複雑に作用し合っていると考えられ、未解明な部分が多い。まず、フルイ分けできる程度の粗粒に液体分が均一に混合している湿潤粉体層ではせん断速度が大であるとせん断仕事量が液体の粘度によって著しく増加するので^{29,30)}、湿潤粉体のかきまぜ速度は低速の方がよい。また、湿潤粉体層の乱雑な層構造の変化が直接現われるかきまぜトルクの測定はいろいろな混合状態をは握しやすい。Michaels ら³¹⁾は粘土-水系の含水率とかきまぜトルクについて前出の図-2のような関係を得ており、さらにバドルのせん断効果によってかきまぜトルクが大きいくほど混合速度は大きくなるという結果を示している。一般に、ある一定の含液率のもとでかきまぜトルクと時間の関係をみると、かきまぜの初期にみられる凝集粒が生成する状態ではミクロの混合は不良であり、成長凝集粒が破壊されるようになると固・液の混合がさらに進展する³²⁾。このような傾向は、特にぬれのよくない粉体とか、高粘度の液体の場合に顕著である。参考例として図-3 はジャケット付フンガーブロング形(複軸)混合機で 70°C の石炭粉に同温度のアスファルトを添加して混合度 M (Michaels らの表示法³¹⁾) およびかきまぜトルク T に対する時間的変化を示す(液体分の添加方式は粉体層表面の中心部に瞬間的に投入する)。かきまぜによるせん断力が作用してくると混合は進展するようになり、最大かきまぜトルクのピークが終了するころからは一定のトルク値になって、ほぼ均一な固・液の混合状態に到達したものと解釈される。

図-3 ベンガル炭-アスファルト系のかきまぜトルクと混合度の時間的変化

図-4 ベンガル炭-アスファルト系のかきまぜトルクと時間の関係に対する含油率の影響

なお、図-4 に示すように含油率が低いと最終のかきまぜトルク値にいたる時間が長くなる。このような場合には液体の粘度を下げるために減粘剤として適当な溶剤を使うと混合時間が短縮できる。

さて、固・液・気系の混合にはまだ多くの問題が残るが、一応、固・液の均一性については時間に対してかきまぜトルクが一定になる時点とし、凝集性については最大かきまぜトルクを示すときの含液率を基準にとればよいものとする。パグミルやアイリッヒのようなかきま

図-5 回転皿形造粒機の様式図

造粒法では、上述のような混合機内では湿潤粉体の凝集現象をそのまま利用するのであって、特にヘンシェル混合機による造粒法は特殊な回転刃による高速せん断の作用で非常に粒度の小さいソフトな顆粒が得られる。転動造粒法のうち、傾斜させた回転皿の造粒機では混合機内で湿潤粉体に粘着性をもたせると転動運動の作用が不良になるので、塑性限界値相当液体分の70~80%の含液率が望ましく、なるべく混合操作での造粒核を生かす方法をとることが重要である。元来、この回転皿造粒機は図-5のようにA, Bの位置で粉体と液体バインダーを供給し、十分に成長した造粒物を分級しつつ下のリムより排出させることが主体で、この方が小さい粒度の造粒物も得られやすい。このほか、転動による造粒法には回転円筒形造粒機がよく用いられ、円筒内壁には湿潤粉体のすべり止め用として金網、ゴムシート、フライトなどを付設したり、あるいは付着防止のためにスクレーパーを付設することもある。解砕造粒法は粉体凝集物を回転ナイフあるいは回転バーを用いて解砕して顆粒状の造粒物にする。参考例として200~800 μ 程度の粒度の溶成リン肥にアルコール廃液を添加して混合を行なうと、粗粒のために十分な凝集性がなく、よい造粒法が見いだせない経験があった。そこで図-6のようにに加熱しつつかきまぜると水分の蒸発とともに粘着性が増加し、最後には固結現象をおこしてからパドルのせん断力で解砕粉化される。この場合、粘着性が増加した時点で解砕造粒を行なうと顆粒とすることができる。また、圧縮ロールで粉体を板状に成形してから解砕するとハードな顆粒が得られ、同様に種々の造粒装置によって得られる造粒物をさらに小さい粒度にするためには、この解砕造粒法を利用すると便利である。最後に、湿潤粉体の取り扱いで興

図-6 加熱を伴う溶成リン肥-アルコール廃液系のかきまぜトルクと時間の関係

味のある点は、粉体にどの程度の液体バインダー量を添加すると固体粒子相互がすべりやすくなって押し出し成形が可能になるかである。荒川³⁹⁾はラム形押し出し機を用いて坯土を一定の速度で押し出し、押し出し圧力 P と含水率(体積基準) $\phi (=C_v)$ の関係を次式

$$P = P_0 e^{-K(\phi - \phi_0)} \quad (6)$$

のように表わし、押し出し圧力 P に対する固体粒子の相互作用や分散剤の影響を検討している。 ϕ_0 は粉体の最密充填に近い含水率で、 P_0 はその時の押し出し圧力、 K は流動変形時の固体粒子の相互作用に関係した定数である。

5. あとがき

造粒操作はその対象材料として各種各様の湿潤粉体を取り扱うことが多いのであるが、複雑な凝集(付着)現象を伴うために装置操作設計上の点ではなお多くの問題が残されている。各造粒法にはそれぞれ特徴的な造粒機構を備えており、凝集(付着)現象論、造粒速度論、粒

度分布論, 流動変形論, population balance 論, 造粒物硬さ試験法などによって体系的にも整理されつつある。しかし, 予備処理としての湿潤粉体の混合特性は, そのまま造粒操作に影響する複雑な問題を含むので, ここでは主として湿潤粉体のハンドリングにかかわる造粒操作の留意点を取り扱った。なお, ソフトな顆粒状造粒物をうるためには流動層造粒法が一つの対象になりうるが, ここでは紙数の関係で割愛し, 造粒全般の問題を含めて造粒便覧³⁴⁾を参照されたい。

文 献

- 1) Ross, T. K. and T. Davies : *Trans. Inst. Chem. Engrs.*, 39, 28 (1961)
- 2) 沢 島 恭 : 粉体工学研究資料, No. 45 (1962)
- 3) 荒川正文, 安田真一 : 材料, 26, 858 (1977)
- 4) 近沢正敏 : 粉体工学会誌, 17, 272 (1980)
- 5) 梅屋 薫, 関口 勲 : 化学工学, 37, 704 (1973)
- 6) Pietsch, W. and H. Rumpf : *Chemie.-Ing.-Techn.*, 39, 885 (1967)
- 7) 関口 勲 : 化学工学, 32, 745 (1968)
- 8) 篠原邦夫, 田中達夫 : 粉体工学研究会誌, 9 (秋期臨時号, 英文), 56 (1972)
- 9) Dahneke, B. : *J. Coll. and Interface Sci.*, 40, 1 (1972)
- 10) Rumpf, H. : 化学工学, 26, 905 (1962)
- 11) 玉井康勝 : 桜井, 玉井編, 応用界面化学, 朝倉書店 (1967)
- 12) 関口 勲 : 粉体工学会誌, 16, 312 (1979)
- 13) 三宅康夫, 篠田愛信 : 粉体工学会誌, 16, 326 (1979)
- 14) 高山幸英 : 粉体工学会誌, 16, 331 (1979)
- 15) 大久保行真 : 粉体工学会誌, 16, 337 (1979)
- 16) 下村泰人, 仲田泰三, 池田順一, 田村信一 : 粉体工学会誌, 16, 341 (1979)
- 17) 野口達彦 : 粉体工学会誌, 16, 347 (1979)
- 18) 中村利家 : 粉体工学会誌, 16, 356 (1979)
- 19) Hains, W. B. : *J. Agr. Sci.*, 17, 264 (1927)
- 20) Croney, D. and J. D. Coleman : *J. Soil Sci.*, 5, 75 (1954)
- 21) 安富六郎 : 材料, 20, 681 (1971)
- 22) Newitt, D. M. and M. Coleman : *Trans. Inst. Chem. Engrs.*, 30, 28 (1952)
- 23) Westman, A. E. R. : *J. Am. Ceram. Soc.*, 16, 256 (1933)
- 24) 久保田徳昭, 河上忠男, 大谷茂盛 : 化学工学, 32, 822 (1968)
- 25) Newitt, D. M. and J. M. Conway-Jones : *Trans. Inst. Chem. Engrs.*, 36, 422 (1958)
- 26) 関口 勲 : 粉体と工業, 8, 49 (1978)
- 27) 中田宏志, 関口 勲, 東畑平一郎 : 粉体と工業, 10, 23 (1978)
- 28) 森 芳郎, 神保元二, 高城 真, 鷲尾文朗 : 化学工学, 25, 806 (1961)
- 29) 関口 勲, 梅屋 薫 : 化学工学, 37, 744 (1973)
- 30) 梅屋 薫, 関口 勲 : 化学工学, 37, 704 (1973)
- 31) Michaels, A. S. and V. Puzinausks : *Chem. Eng. Progr.*, 50, 604 (1954)
- 32) 前野 博 : 中央大学理工学部工業化学科卒業論文 (混炭機の混合特性), (1976)
- 33) 荒川正文 : 粉体工学研究会誌, 9, 476 (1972)
- 34) 日本粉体工業協会編 : 造粒便覧, オーム社, (1975)
- 35) 関口 勲 : 化学工学, 41, 73 (1977)