転動流動層装置によるコーティング用核粒子の調製

坂 本 浩*

The Preparation of Core Particles for Coating by Rotating Fluid Bed Equipment

by

Hiroshi SAKAMOTO†

A granulator was developed which could produce granules with a smooth surface and narrow particle size distribution in order to improve coating efficiency. This study reports on the granulation process using the new granulator.

For evaluation of granules obtained by altering process parameters as cores for coating, the shape, apparent specific gravity, particle size and fractal dimension were examined.

The following conditions were found to be essential to obtain granules suitable for subsequent coating process:

- 1) The size of spray mist should be kept in the range of 40 μ m
- 2) The moisture content of the fluid bed should be made as high as possible provided that good fluidization can be maintained.

Key Words : Rotating Fluid-bed Equipment, Coating Granulation, Surface Morphology, Fractal

1. 緒 言

流動層装置により造粒される顆粒剤・散剤(細粒)は、軽質で表面形状も不規則なものが多く、コーティング用核粒子に適しているとは言えない。さらにコーティング操作において粉化や団粒の生成等の問題が生じることもある。これらの問題を解決するために、筆者らは転動流動層装置を開発した。

流動造粒では、造粒機内で流動化した原料粉体にバインダー溶液をスプレーすることにより、粒子間に付着・凝集が生じて造粒が促進される¹⁾。したがって、スプレーミスト径が造粒物の表面形状等の製品特性に大きな影響を及ぼすと考えられる。しかしミスト径と

造粒物の物性に関する研究は、いまだ不十分である。

本研究では、コーティング用核粒子を加工する目的で、新開発した転動流動層装置を用いてスプレーミストや層内水分、ならびにバインダー濃度を種々変化させて造粒を行った。得られた造粒物については、粒度分布やフラクタル次元による形状、あるいはみかけ密度を測定するとともに、これらの物性値とスプレーミスト径および操作条件の関係を調べた。その結果、コーティング用核粒子を加工できる操作条件を明らかにすることができたので報告する。

2. 実験方法

2.1 実験装置

開発した転動流動層装置の概略をFig. 1に示す。この装置は形式的には複合型であり、攪拌と流動層の特長を持つ。さらに新型の噴霧ノズルが取付られている。装置設計においては、原料粉末に対してどのような力を加えると目的とする造粒物が生産できるかを検討し

1994年 3月 8日受付

第31回粉体に関する討論会(1993年10月, 神戸)にて発表

* (株)パウレック粉体工学研究所(〒563 大阪府池田市豊島南2-15)

† POWREX Corp.,

(2-15 Toyoshima-minami, Ikeda-shi Osaka 563)

Fig. 1 Rotating fluid bed equipment (Model MP-01)

た。コーティング用核粒子としては球形で重質なものが望まれる。したがって、造粒操作中は対象物に対して剪断力と転動圧密を作用させる必要がある。そこで凸状体を放射状に付けた回転体(回転ディスク)を流動層装置の底部に設けた。流動化空気は、容器底部中央から通気して、回転ディスクと容器底面の間隙を通り、回転ディスク外周端部を経て対象物を流動させる。造粒容器断面積相当の風速を、通常の流動層装置と同等の0.5~2.0m/sとした。

流動状態の粉末は、スプレーにより湿潤され、凝集と分散を繰り返しながら、回転ディスクの転動圧密作用を受けるようにした。さらに、通常の流動層装置で流動化が困難な粉末(微粉末で凝集性の強い粉末等)も、回転ディスクの搅拌・分散作用により吹き抜け(流動不良)を解消させて、容易に安定した流動層が形成できるように工夫した。

適切なスプレーには、1)ミストの良好な分散状態、2)適当なミスト径、3)ノズル先端近傍に粒子が無いこと、4)ノズル先端~粒子間の距離が短いことが重要であると考えられる。従来のノズルを流動層の下部に挿入した場合、結合剤溶液が霧状に分散する以前に原料粉末と接触・付着することから、局所的な濡れ過剰あるいはノズル先端に粉末が付着などしてスプレーは阻害されることが多い。これらの問題解決と1)~4)を実現するためにFig. 2に示す新型ノズルを開発した。すなわちノズル外周に鞘を設け、鞘とノズルの間

Fig. 2 Coaxial nozzle for tangential spray

から圧縮空気を吹き出し、ノズル先端部でスプレーミストが十分に霧化する距離・空間(スプレーゾーン)を形成させるように工夫した。このスプレーゾーンにおいてスプレーミストと粉体粒子を接触・付着させて造粒を促進させる。

本研究では、ノズル位置と造粒性の関係を明らかにする目的で、造粒容器の下部側面に付設した新型ノズル(接線スプレーと呼ぶ)と、従来のノズルを上部から下向きにスプレーするトップスプレー方式を比較した。

2.2 造粒用試料

造粒用粉体試料には、乳糖(DMV-200M)、局方コーンスターチ(松谷化学工業(株)製)、アセトアミノフェン(粉碎品、吉富製薬(株)製)を用いた。また結合剤にはヒドロキシプロピルセルロース(信越化学工業(株)製HPC-LEP)を3,4,5,6,7%の濃度に調製して採用した。ここで結合剤の溶媒は精製水である。Table 1に固形分処方を示す。

2.3 スプレーミスト径の測定

ミスト径の測定はレーザー式粒度分布測定器(Malvern Instrument: Model 2600C)を用いて、Fig. 3に示すような方法により、噴霧空気量および液速度を変化させて行なった。ノズルには小容量型(970型、口径 1.2×10^{-3} m)と大容量型(940型、口径 2.2×10^{-3} m)を採用した。また結合剤溶液としては5, 8%の濃度に調製したものをを用いた。さらに測定距離はノズル先端

Table 1 Test formulations in granulation

	MP-01	MP-01
Lactose	0.42 kg	
Corn starch	0.18 kg	
Acetaminophen		0.6 kg
Total	0.6 kg	0.6 kg
Binder, HPC-LEP	0.024kg	0.024kg

Fig. 3 System measuring droplet size distribution

から0.045, 0.09, 0.18mと変化させた。なおミスト径の測定は室温で行なっている。

2. 4 造粒物の物性測定方法

ロータップふるいを用いて求めた質量基準に基づく粒度分布から、平均粒子径($D_{g,50}$)および幾何標準偏差(σ_g)を求めた。また、みかけ密度はJIS-9721に基づき測定している。さらにフラクタル次元は、太田²⁾らの方法を用いて測定した50個の平均値により表現した。

2. 5 造粒操作条件

造粒実験には転動流動層装置(マルチプレックスMP-01型)を用いた。流動化風量=30m³/h, 給気温度=348K, 回転ディスクの回転数については、綿野³⁾らの報告を参考にして380rpmで操作した。外気については特に制御を行わずに実験を行なった。スプレー速度は造粒中の湿潤粉体の含水率(湿量基準:以後層内水分と呼ぶ)がスプレー開始後20分で12.5, 15.0, 17.5, 20.0, 22.5%になるように初期添加スプレー速度を変化させた。さらに20分以後はこの層内水分を保持できるスプレー速度で添加した。また噴霧空気量についても0.028, 0.035, 0.037, 0.042, 0.051, 0.065, 0.076m³/minと変化させて造粒実験を行なった。この場合、小容量ノズル(970型)を使用している。

3. 実験結果と考察

3. 1 噴霧空気量とミスト径および造粒物

ノズル先端から0.045mの距離で測定したミスト径と噴霧空気量の関係をFig. 4に示す。ここでミスト径は質量基準ふるい下分布の90%径($D_{m,90}$)相当で表現した。Fig. 4から、ミスト径($D_{m,90}$)は噴霧空気量が増加すれば小さくなっていることが分かる。しかし小容量ノズル(970型)は0.1m³/min, 大容量ノズル(940

Fig. 4 Relation between atomizing air flow rate and droplet size

Fig. 5 Relation between atomizing air flow rate and granule size

型)では0.6m³/minに噴霧空気量の限界があった。これは噴霧空気流路の圧力損失によるものと考えられた。

Fig. 5は噴霧空気量を変化させて造粒操作を行ない、得られた造粒物の平均粒子径($D_{g,50}$)を示したものである。 $D_{g,50}$ は噴霧空気量を増加させると小さくなっていることが分かる。噴霧空気量が多くなるとミスト径が小さくなるので(Fig. 4), 造粒に寄与する結合剤量が少なくなることから、平均粒子径が小さくなったと考えられる。また、アセトアミノフェン系(○)は、乳糖・コーンスターチ系(△)に比べて造粒物の平均粒子径が大きいことが分かる(Fig. 5)。これは、原料粉末の溶解性・吸水性等により造粒に必要な層内水分が異なることによるものと考えられる。すなわち、アセトアミノフェンはやや難溶性で、吸水性もコーンスターチに比較して小さいので、結合剤が粒子内部に浸透する割合が少なく、粒子表面において造粒に関与する結合剤が多くなったためと考察される。

粒子形状を表すフラクタル次元と噴霧空気量の関係をFig. 6に示す。ここでフラクタル次元が小さいほど造粒物の表面形状は円滑であることを示している。Fig. 6から、アセトアミノフェン系および乳糖・コーンスターチ系とも噴霧空気量が多いほどフラクタル次元が小さい値を示していることが分かる。このことはミスト径が小さくなれば小さな凝集物が生成し、さらにこの凝集物が凝集して成長することから表面形状が円滑になったと考えられる。表面形状の平滑な造粒物が得られているのは、噴霧空気量が0.07m³/min付近である。この噴霧空気量におけるミスト径は約40μmである(Fig. 4)。

Fig. 6 Relation between atomizing air flow rate and fractal dimension

3.2 層内水分と造粒物

次に、流動層内部の原料粉末の層内水分が20分で12.5, 15.0, 17.5, 20.0, 22.5%になるように、流動化空気の蒸発能力を考慮したスプレー速度で造粒した結果をFig. 7に示す。 $D_{g,50}$ の大きい造粒物は、流動層内の水分が多い場合に生成させていることが分かる。これは、層内水分が高いと付着・凝集に関与する結合剤溶液が多くなり、その結果、造粒物の粒子径が大きくなったと考えられる。アセトアミノフェン系の場合、20%以上の層内水分では過剰湿潤のため流動不良となり、粗大粒子が生成したので運転を停止した。乳糖・コーンスターチ系でも層内水分が25%以上で、アセトアミノフェン系と同様に過剰湿潤となり流動不良が生じ、さらに装置内壁への付着も多くなったため造粒実験を中止した。これらの結果より、造粒には原料粉末

Fig. 7 Relation between water content and granule size

Fig. 8 Relation between water content and σ_g

Fig. 9 Relation between water content and bulk density

の物性(例えば吸水性)に応じた適当な範囲の層内水分が存在することが確認できた。過剰湿潤を生じない範囲内で層内水分を高くした場合、幾何標準偏差(σ_g)に大差は見られない(Fig. 8)が、みかけ密度は大きくなっていることが分かる(Fig. 9)。この結果、コーティングに適したみかけ密度の高い(重質)造粒物は、流動不良が発生しない範囲内で層内水分を高くすることにより加工できることが確認できた。

3.3 スプレー方式と造粒物のみかけ密度

接線スプレー方式と、上部から下向きにスプレーするトップスプレー方式とを比較した結果をFig. 10に示す。接線スプレー方式を採用して生成した造粒物のみかけ密度は、結合剤溶液濃度の増加にともない大きくなっていることがわかる。一方、トップスプレー方式により生成した造粒物のみかけ密度は、極大値をとった後小さくなる傾向を示した。接線スプレー方式で

Fig. 10 Effects of binder concentration and spray mode on bulk density of granules

は、粉体試料にミストが接触・付着する距離が短いので、スプレーされた直後の粘度状態で、ミストが原料粉末と接触・付着して浸透することから、粒子間距離が小さくなる。その結果、みかけ密度が大きい(重質)な造粒物が生成されたと解釈される。これに比べて、トップスプレー方式では、スプレーされたミストが原料粉末と接触する前に幾分か乾燥される。そのために、結合剤溶液がさらに高濃度な状態になり、高結合力と、低い溶液浸透速度状態となるので、粒子間距離は大きくなる。このような理由により、トップスプレー方式では、みかけ密度の小さな(軽質)造粒物が生成されたと推察される。以上の結果より、下部接線ス

プレー方式は、トップスプレー方式に比べて、重質造粒に適していることが分かった。

4. 緒 言

コーティングに適した核粒子を加工するため、転動流動層装置を開発した。さらに、新しい噴霧ノズルを作成し、ミスト径を測定するとともに、造粒条件を変化させて実験を行い、得られた造粒物の物性を調べた。その結果以下のことが言える。

コーティングに適した核粒子を加工するためには、1) 表面形状が滑らかで(フラクタル次元が小)、2) みかけ密度は大きく(重質)、3) 平均粒子径も要求規格範囲内で可能な限り大きく、4) 粒度分布をシャープ(幾何標準偏差 σ_g が小)にしなければならない。

これらの1)~4)を実現する操作は、A) スプレーミスト径が約 $40\mu\text{m}$ になるような噴霧空気量にする。B) 層内水分は流動不良が生じない範囲で高くする(アセトアミノフェン系で10~17.5%、乳糖・コーンスターチ系で12.5~22.5%)。C) バインダーは原料粉末の物性(例えば吸水性・溶解性等)および結合力と浸透速度を配慮して、できるだけ高い濃度(5~7%)にする。D) スプレーノズルの位置は流動層の下部に付設すればよいことが分かった。

この様な操作条件において、コーティングに適した核粒子が得られることが確認できた。

[謝 辞] スプレーミストの測定にご協力して頂いた、信越化学工業(株)合成技術研究所、丸山氏はじめ関係の方々に深く感謝致します。

Nomenclature

$D_{m,90}$: particle diameter of 90% cumulative undersize

$D_{g,50}$: 50% mean particle diameter (μm)
 σ_g : geometric standard deviation (—)

References

- 1) Nishimura, K., H. Kakizaki, T. Fukazawa, S. Kishitani, K. Kasahara and T. Asai : *Yakuzaigaku*, 38, 196(1978)
- 2) Oota, M., Y. Mizuno, K. Terashita and K. Miyanami : Abstr. of the 9th Symp. on Particulate Preparations and Designs, p.5, Mie, Japan(1992)
- 3) Watano, S., K. Terashita and K. Miyanami : Abstr. of the 7th Symp. on Particulate Preparations and Designs, p.55, Shiga, Japan (1990)