粉体の物性に関する製剤学的研究 (第 1 報¹⁾) 変速回転円筒内の粉体の挙動

気賀沢和雄, 斎藤守弘, 飯村秀樹, 渡部一夫

グレラン製薬株式会社研究所²⁾Pharmaceutical Studies on Physical Properties of Powders. I.¹⁾
Behavior of Powders in Variable Rotating Cylinder

KAZUO KIGASAWA, MORIHIRO SAITO, HIDEKI IIMURA and KAZUO WATABE

Research Laboratories Grelan Pharmaceutical Co., Ltd.²⁾

(Received February 8, 1972)

A method for determination of the flow property of each powder was studied and a new method better reproducibility was established by evaluating the flow property with the speed of a rotating cylinder when a sample in the variable rotating cylinder (Fig. 1) is completely adhesive to the inner wall of the cylinder. Further, this method is can be used extensively for the determination of flow property of liquids like water, oils, and viscous liquids, and powder such as polysaccharides and inorganic salts. There was a correlation between the rotating speed of the cylinder and the angle of repose. Further, the effect of particle size and shape on the rotating speed of the cylinder was found.

粉体の流動性に影響をおよぼす因子は、粒子径、粒子形状、粒子の付着性、その他種々考えられる。粒子の集合体としての流動性の指標として、安息角、内部摩擦角、流出速度³⁾、タッピング減少率⁴⁾、流出最小径⁵⁾などがあげられる。しかし、これらの方法は、装置の形式、大きさ、試料供給方法、操作方法のちがいににより測定値が一定に得られず、再現性、測定値のバラツキがある。したがって流動性を他の物性と関連づけて説明したり、これらを統一的に表現することは困難であった。今回著者らは、変速回転円筒装置を用い、各種粉体および液体について、回転円筒内の挙動および回転速度を検討した結果、流動性を回転速度によって表わすことにより再現性の良い流動性測定が可能ながことが判明したので報告する。

実 験 の 部

変速回転円筒装置を用いての測定 測定装置——実験に用いた装置を Fig. 1 に示す。回転円筒 (A) は透明プラスチック製であり、内径 20.5 cm, 厚さ 3.3 cm の円板状で、外部から観察可能とした。試料の流体と円筒内壁との摩擦効果を一定にするために、JIS 規格 No. 120 のサンドペーパーをはりつけた。この装置は円筒の軸を水平に保って回転させるもので、Fig. 1 に示すように、円筒を保持する軸は、ローラーチェーン、ホイール (B)、無段変速機 (C)、を介して、電動機 (D) につながり、円筒には任意の回転速度が与えられ、その回転速度は Auto-Counter (E) からの電気パルスを発信音にかえるとともに、記録計に記録することにより測定される。

測定方法——試料を回転円筒中に一定量入れて回転させ、あらかじめ設定した観察点 (Fig. 2) に到達したときの円筒の回転速度を測定した。

観察点 I——円筒の回転速度を毎分 1 回転と設定し、円筒内の試料の表面運動角を測定した。

観察点 II——円筒内における試料層の最大せり上り高さが 10 cm (円筒内径 20.5 cm) となったときの円筒の回転速度を測定した。

観察点 III——円筒内における試料層の最大せり上り高さが 15 cm となったとき。

観察点 IV——円筒内における試料層の最大せり上り高さが 20 cm となったとき。

観察点 V——円筒内の試料が円筒内壁に完全に付着して回転するとき。

1) 日本薬学会第 91 年会発表, 福岡, 1971 年 4 月。

2) Location: 2-12-3 Sakurashinmachi, Setagayaku, Tokyo.

3) JIS Z 2502—1966. 日本規格協会, 東京, 昭和 41 年 3 月 1 日改正 (1966).

4) 青木 大, 小川俊太郎, 林 信一, 平山雅美, 薬剤学, 27, 93 (1967).

5) 青木 大, 小川俊太郎, 林 信一, 平山雅美, 中島秀和, 薬剤学, 27, 98 (1967).

Fig. 1. Apparatus of Variable Rotating Cylinder

安息角の測定——安息角は円錐堆積法⁶⁾により測定を行なった。測定はベースリング径 40, 50, 60, 70, 80, mmφ の 5 種類を用い、直線の勾配から安息角を求めた。

見掛け比容積の測定——20 ml のメスシリンダーを用いて行なった。また、タップ充填比容積は垂直落下のタッピングマシン（落差 1.5 cm）により 1500 回タップ後の比容積を測定した。

試料——実験に用いた試料およびその物性値を Table I に示す。

TABLE I. Physical Properties of Powders

Sample	D_p (mesh)	ϕ_r	V_0 (cm/g)	V_t (cm/g)
Glass beads A	55/80	23.0	0.69	0.65
B	120/200	32.6	0.73	0.65
C	250/400	33.5	0.76	0.66
MgO·Al ₂ O ₃ ·2SiO ₂ A	40/60	28.0	2.80	2.54
B	60/80	29.2	2.86	2.58
C	100/200	31.8	2.88	2.42
CaHPO ₄ A	60/80	33.4	1.02	0.88
B	100/200	38.0	1.20	0.94
Crystalline cellulose A	60/80	36.0	3.56	2.76
B	100/200	38.0	3.80	2.64
Lactose (E.F.) ^{a)} A	60/80	40.5	1.45	1.08
B	100/200	41.6	1.59	1.11
Lactose (S.D.) ^{b)}	60/80	34.2	1.59	1.19
Corn starch	200>	51.6	2.18	1.29

a) prisms

b) spray dried particle

D_p : particle size

ϕ_r : angle of repose

V_0 : apparent specific volume before tapping

V_t : apparent specific volume after tapping

結果および考察

各観察点における回転速度と流動性

各試料おのおの 150 cm³ を回転円筒内に入れ、漸次回転数を増加してゆき、各観察点に到達したときの回転数および円筒内壁の周速度の値を Table II に示した。周速度は、回転速度と円筒内径より算出した。

$$V = \pi DN \quad V: \text{周速度}$$

D : 円筒内径

N : 円筒の回転速度

6) 青木隆一, 粉体工学研究会誌, 6, 3 (1969).

Fig. 2. Behaviors of Powders in Variable Rotating Cylinder and Observed Points I—V

TABLE II. Rotating Speed at Observed Point

Sample	Observed point I ^{a)}	II ^{b)}		III ^{b)}		IV ^{b)}		V ^{b)}	
		rpm	m/min	rpm	m/min	rpm	m/min	rpm	m/min
Glass beads A	21.5	12.8	8.2	57.7	37.1	87.7	56.5	141.5	91.1
MgO·Al ₂ O ₃ ·2SiO ₂ B	26.5	5.0	3.2	46.6	30.0	79.6	51.2	126.1	81.2
CaHPO ₄ A	32.0	—	—	50.3	32.4	80.9	52.1	124.0	79.8
Crystalline cellulose A	33.5	—	—	38.7	24.9	66.7	42.9	118.2	76.1
Lactose (E.F.) A	41.5	—	—	30.0	19.3	67.0	43.1	104.9	67.5
Corn starch	70.5	—	—	—	—	—	—	100.3	64.6
Water	—	—	—	—	—	—	—	294.1	189.3

sample volume 150 cm³

a) observed point I: surface kinetic angle [°]

b) observed point II—V: rotating speed

観察点 I の円筒回転数 1 rpm での表面運動角は粉体の流動性を表わすものとして知られ、各分野での報告⁷⁻¹⁰⁾が見られるように、一定の傾向が認められる。観察点 II, III および IV はそれぞれ流動性と関連がある数値が得られるが、試料の種類によって観察による判定がしにくいものがあった。観察点 V すなわち高速回転になって、試料が円筒内壁に完全に付着して回転する時点での回転速度は、観察点 I の表面運動角と同様に、流動性と良く関連した数値が得られた。この観察点 V での測定は観察のしやすさから、ばらつきの少ない、再現性を有し、また、表面運動角の測定不可能な流動性の悪い粉体および流動性の良い液体のような流体も同一条件で測定が可能であることが最大の特徴で、Table II に示す水の流動性、すなわち回転速度が粉体の回転速度の何倍も大きいことから、粉体と液体の流動性の比較ができる。粉体および粘性物質を含めた流体の流動性、流動量の絶対値の係数がこの変速回転円筒法の観察点 V から得られる可能性が考えられることから、今後各因子を究明して検討する計画である。

Fig. 3. Correlation between Rotating Speed at Observed Point V and Angle of Repose

1. corn starch
2. lactose (E.F.) A
3. crystalline cellulose A
4. CaHPO₄ A
5. MgO·Al₂O₃·2SiO₂ B
6. glass beads A

Fig. 4. Relation between Surface Kinetic Angle and Angle of Repose

1. corn starch
2. lactose (E.F.) A
3. crystalline cellulose A
4. CaHPO₄ A
5. MgO·Al₂O₃·2SiO₂ B
6. glass beads A

7) 三輪茂雄, 粉体工学研究会誌, 7, 205 (1970).

8) 杉本益規, 化学工学, 32, 291 (1968).

9) F. C. Franklin, L. N. Johanson, *Chem. Eng. Sci.*, 4, 119 (1955).

10) 井伊谷鋼一, “粉体工学ハンドブック,” 第5版, 朝倉書店, 東京, 1970, pp. 84—88.

安息角と観察点 V の回転速度との関連性

Fig. 3 に円錐堆積法により測定した安息角と観察点 V における回転速度の関係を示した。

安息角と観察点 V における回転速度との間には一定の傾向が存在することが判明した。一般に流動性の良否は安息角によって判定されているが、この結果から安息角の小さい、つまり流動性の良い粉体ほど高い回転速度を必要とし、流動性の悪い粉体ほど低い回転速度で円筒内壁に付着した。また、先に Table II で述べたように観察点 V における回転速度は粉体の流動性を判定することが可能な数値であると考えられる。

安息角と表面運動角

Fig. 4 に円錐堆積法により測定した安息角と観察点 I における表面運動角の関係を示した。

流動性の良いと思われる範囲では円錐堆積法により測定した安息角の方が表面運動角よりも数値的に若干高めに出ている。これは円錐堆積法による安息角の測定が粉体が動的状態から静的状態へ移行したときの角度を測定しているのに対して、表面運動角は動的状態での粉体の流動角を測定していることに起因するものと考えられる。

試料重量と観察点 V の回転速度

Fig. 5. Relation between Rotating Speed at Observed Point V and Sample Size

1. corn starch
2. lactose (E.F.) A
3. crystalline cellulose A
4. CaHPO_4 A
5. $\text{MgO} \cdot \text{Al}_2\text{O}_3 \cdot 2\text{SiO}_2$ B
6. glass beads A

Fig. 6. Correlation between Rotating Speed at Observed Point V and Sample Volume

1. corn starch
2. lactose (E. F.) A
3. crystalline cellulose A
4. CaHPO_4 A
5. $\text{MgO} \cdot \text{Al}_2\text{O}_3 \cdot 2\text{SiO}_2$ A
6. glass beads A
7. water

Fig. 5 に試料重量と観察点 V における回転速度の関係を示した。

粉体においては供給重量の増加に対して、回転速度に顕著に差は表われなかった。また、完全に付着して回転するまでの過程においては円筒内壁に近い部分から付着し始め、表層は規則的な粒子の落下がみられた。このことは粉体層が不連続体によるものである。供給重量が一定、たとえば 100 g で各粉体を比較すると回転速度にかなりの差が認められ、前に述べたごとく、この差は流動性の違いによるものと考えられる。円筒内壁に粉体が完全に付着するまでの過程から考えると、粉体層の厚さは一定の方が良く、重量一定の場合は各粉体の比容積が異なるので、層の厚さは一定しない。以下供給容量を一定として検討した。

試料容量と観察点 V の回転速度

Fig. 6 に供給容量と観察点 V における回転速度との関係を示した。

供給容量の変化、各粉体による回転速度の違いは、前項と同様の結果が得られた。供給容量一定にすることにより、粉体層の厚さが一定となり、観察点 II—IV まで同一の観点で測定し得た (Table II)。各粉体間の比較には容量を一定にする必要があることがわかった。なお、参考として示した水は粉体と異なり、供給容量により大きく回転速度が変化した。このことは粉体と液体の物性のちがいによるものと考えられ、詳細は次報で報告する。

粒子径および形と観察点 V の回転速度

粒子径および粒子の形と観察点 V における回転速度の関係を Table III に示した。

各粉体とも粒度の小さいものほど回転速度が低く、大きいものほど高い。すなわち、粒度により流動性がこと

TABLE III. Effect of Particle Size and Shape on Rotating Speed
(Sample Volume: 150 cm³)

Sample	Particle size mesh	Rotating speed	
		N rpm	V m/min
Glass beads A	55/80	141.5	91.1
B	120/200	132.7	85.4
C	250/400	124.5	80.1
MgO Al ₂ O ₃ 2SiO ₂ A	40/60	130.4	83.9
B	60/80	126.1	81.2
C	100/200	123.0	79.2
CaHPO ₄ A	60/80	124.0	79.8
B	100/200	122.0	78.5
Crystalline cellulose A	60/80	118.2	76.1
B	100/200	113.6	73.1
Lactose (E.F.) ^{a)} A	60/80	104.9	67.5
B	100/200	103.4	66.6
Lactose(S.D.) ^{b)}	60/80	117.2	75.4

^{a)} particle shape: prisms

^{b)} particle shape: nearly spherical particles

なる。粒度と安息角との関係にみられる結果¹¹⁾ と同一の傾向を示した。一方、プリズム状結晶の Lactose (E.F.) と球状粒子 (S.D.) とでは回転速度に差が認められた。粒子径および粒形は流動性に関する重要な因子の一つであることがわかった。

総 括

以上のことから変速回転円筒法による回転速度から各種粉体の流動性を比較測定することが可能であることを確認した。また、流動性に関する因子として粒子径および形も重要な因子の一つであることがわかった。今後、変速回転円筒装置を用い、流動性に関する諸因子の解明、流出量予測等が可能であると考え、目下検討中である。

11) D. Train, *J. Pharm. Pharmacol.*, **10**, 127 T (1958).