

ドラフトチューブ付き噴流層による粒子コーティング特性

伊地知 和 也*・原 口 克 郎**・上 村 芳 三***・幡 手 泰 雄*

Coating of Particles with Finer Particles in Draft-Tube Spouted Bed

Kazuya IJICHI, Katsurou HARAGUCHI, Yoshimitsu UEMURA and Yasuo HATATE

The application of a spouted bed to coating is promising in the pharmaceutical, food and agricultural industries. Few full-scale studies have been reported. We examined the coating of particles with finer particles by a draft-tube spouted bed equipped with a converging nozzle. Due to the proper shear stress of the high speed gas from the nozzle, this method may be more efficient for mono-core coating than the other coating apparatuses.

In this study, we investigated coating characteristics in a draft-tube spouted bed with a converging nozzle. Especially, we focused on the effects of inlet gas velocity, binder feed rate, and tube separation distance. Choking of the draft tube could be delayed by increasing inlet gas velocity and bed temperature, by decreasing binder feed rate, and by spacing binder feed.

1. 緒 言

流動層型造粒装置を用いた粒子の加工技術は、主に医薬、農薬、食品及び肥料工業において、徐放化などの放出の制御、粒子の表面改質等の目的で、広く応用され、多種多様なタイプの装置が提案されてきた¹⁾。これらの流動層によるコーティングには、コーティング材の溶液を流動層中に噴霧し、流動化粒子表面に乾燥析出させコーティング層を形成させるものと、微粉体のコーティング材を液中に懸濁させ噴霧し、コーティング材を個体のまま直接流動化粒子表面に付着コーティングさせる方法²⁾に大別できる。このうち後者の手法は、固体粒子による直接コーティングであるため、コーティング機構がシンプルであり、比較的容易にコーティング層の形成が可能である。しかし、実用に耐えうる技術は、未だ確立されていない。

そこで本研究では、これまで行ってきた、ドラフトチューブ付き噴流層における微粒子流動及び凝集造粒特性を基に、シリカ微粒子のカラスビーズ上へのコーティングを Wurster³⁾法により行った。この方法は、高速ガスの適当な解砕力が作用するため、シード粒子の凝集を抑える

ために、振動等の何らかの外力を必要とする他の造粒法と比較すると、微粒子の単核コーティングに適している。また、造粒物の取り出しが容易である⁴⁾という利点もある。しかし、この方法での造粒操作には、装置内の閉塞という大きな問題がある。そこで本研究では、閉塞を抑制する条件やコーティング操作における、操作、設計条件の影響について検討したので報告する。

2. 実験装置及び実験方法

2-1 塔本体

図1に、実験装置の塔下部の詳細を示す。

塔本体は内径70mm、高さ215mmのステンレス製の円筒部と高さ55mm、開角60度のステンレス製の円錐部によって構成されている。円錐部下部には、二流体スプレーノズル（液体用ノズル径0.5mm、気体用ノズル径1.75mm）が取り付けられており、これより流動化ガスと水を分散媒とするコーティング粒子懸濁液が装置内に導入される。ドラフトチューブには、内径24.5mmのステンレス製の円筒筒を使用し、二流体スプレーノズルの中心と一致するように塔本体に固定されている。チューブ距離の調整は、チューブの上下により行う。本実験では、二流体スプレーノズルからの導入ガスを懸濁液噴霧用ガスとしてだけではなく、噴流流動化用ガスとしても用いた。

2-2 装置概略及び実験方法

図2に、実験装置の概略図を示す。

平成10年5月31日受理

*応用化学工学科

**博士前期課程 応用化学工学専攻

***生体工学科

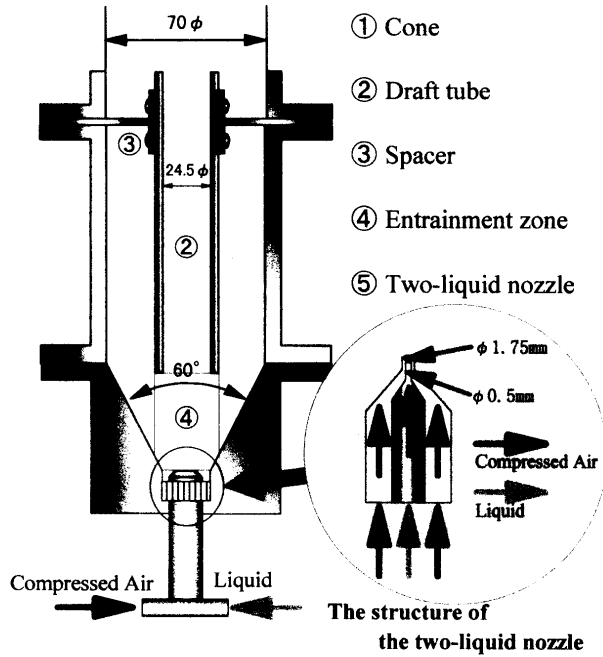


図1 塔下部拡大図

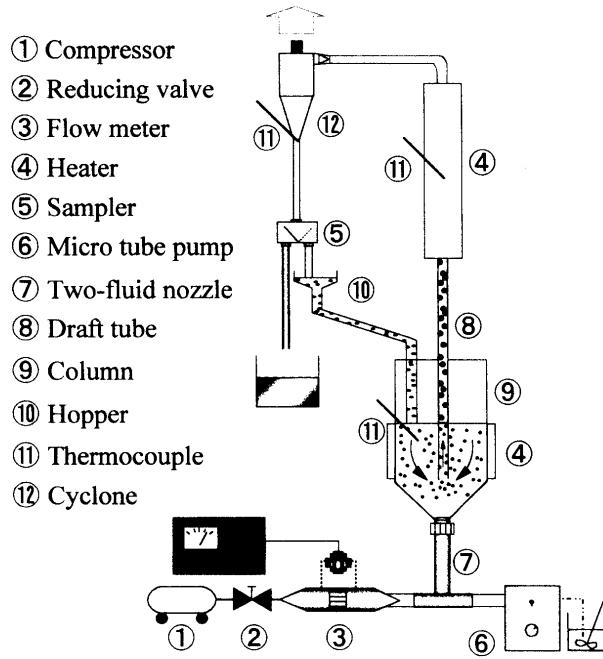


図2 実験装置概略図

実験方法は次の通りである。まず、実験の前処理として、シード粒子は目開き $88\mu\text{m}$ の篩により篩っておき、 $88\mu\text{m}$ 以上のシード粒子が含まれていないことの確認を行った。次に所定量のシード粒子を層内に充填した後、減圧弁によって流量を調整した。その後、噴流が定常になり、層内温度が設定値に達したところで、微粒子懸濁液を一定流量で供給し、実験を開始した。実験開始後、

表1 粒子物性

	Seed particle	Coating particle
Material	Glass beads	Silica
Mean diameter(μm)	53	0.55
Density(kg/m^3)	2500	2200

表2 実験条件

Content of seed particle(kg)	0.90
Bed height(mm)	200
Tube separation distance(mm) H_D	3-12
Mass fraction of binder in solution(-) C_B	0.00-0.05
Weight ratio of fine particle to suspension(-) C_P	0.0125-0.05
Inlet gas velocity(m/s) U_i	8.0-14.0
Feed rate of suspension(kg/s) Q_B	$3.5-9.5 \times 10^{-5}$
bed temperature(K) T	313-343

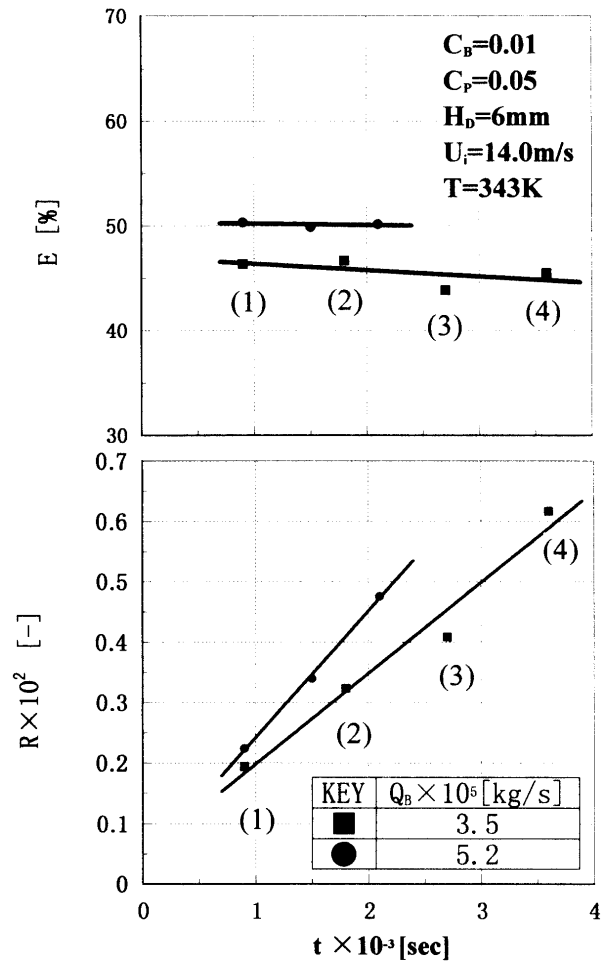


図3 操作時間に対するコーティング効率及びコーティング率の変化

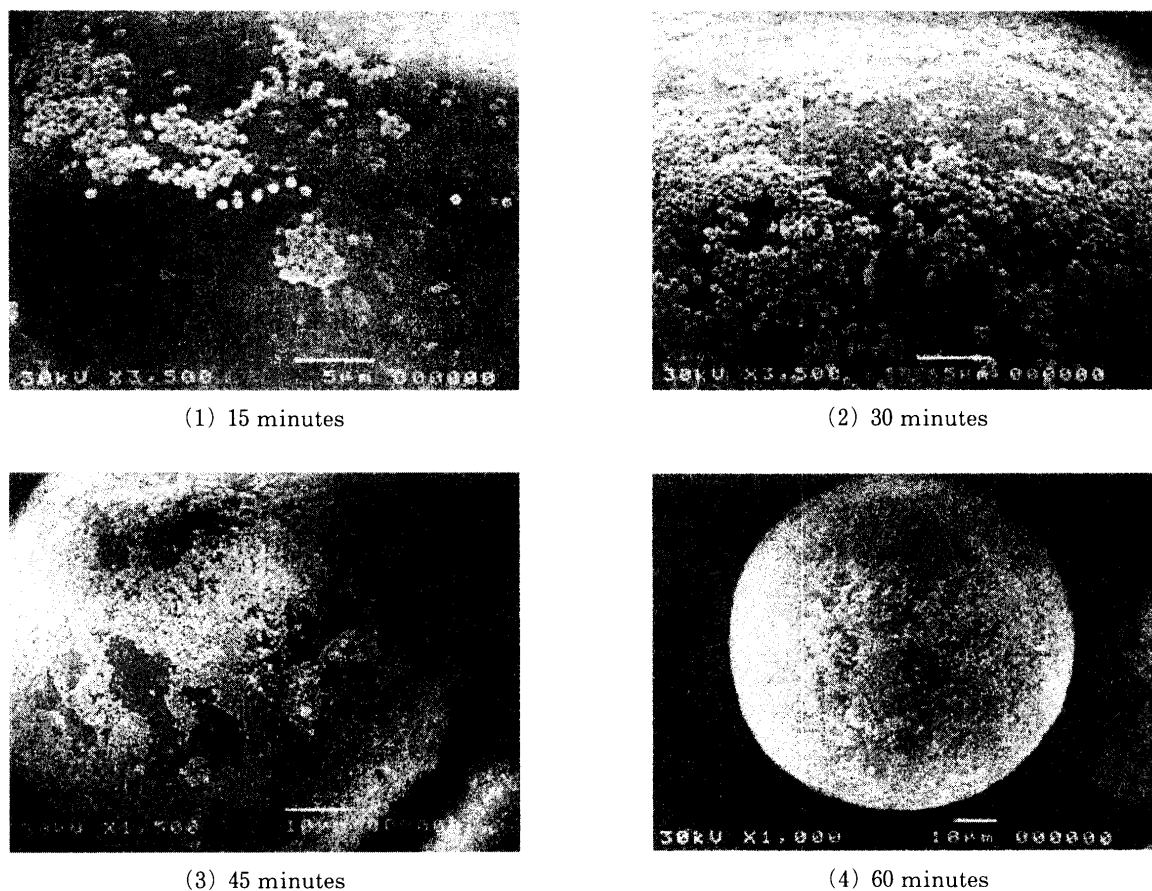


図4 SEM写真

数分毎に、粒子循環量の測定とコーティング造粒物の単粒子率を求めるため、少量の粒子のサンプリングを行った。バインダーには、ポリビニルアルコール（PVA、平均分子量22000）を使用した。ドラフトチューブ上部には電気炉、環状部外壁にはリボンヒーターが、造粒粒子の乾燥と層内温度調節のため取り付けられ、ヒーターの温度調節はスライダックにより行った。

装置内のガスと流動粒子の挙動について説明すると、導入ガスは、エントレインメントゾーンと呼ばれる円錐部とチューブ下端との空間で、環状部より下降してくる粒子を伴し、ドラフトチューブ内を上昇する。その後、サイクロンで粒子を分離した後、上部より系外に排気される。分離された粒子は、循環量測定後、層内に戻される。

2-3 コーティング造粒粒子の評価法

本研究では、コーティング造粒物の単粒子率 η 、コーティング効率 E 及びコーティング率 R によって、コーティング造粒粒子の評価を行った。

コーティング造粒物の単粒子率 η は、サンプリング粒子を再び $88\mu\text{m}$ の篩いで分級して、凝集粒子を分離し、

篩を通過した粒子を凝集の起こっていない単核粒子とみなして式(1)から算出し、凝集の進行度の目安とした。

$$\eta = \frac{88\mu\text{m 篩以下粒子重量}}{\text{サンプリング粒子総重量}} \times 100 \quad \dots\dots (1)$$

コーティング効率 E 及びコーティング率 R は、実験終了後、または、閉塞後層内に残った全コーティング造粒物により、式(2)、(3)から算出した。

$$E = \frac{\text{シード粒子上の微粒子付着重量}}{\text{ノズルからの微粒子供給重量}} \times 100 \quad \dots\dots (2)$$

$$R = \frac{\text{シード粒子上の微粒子付着重量}}{\text{シード粒子重量}} \quad \dots\dots (3)$$

したがって、コーティング効率は、供給された微粒子の内、実際にコーティング層形成に使用された微粒子の重量パーセントを示すものであり、コーティング率は、シード粒子に対する、実際にコーティング層形成に使用された微粒子の割合を示すものである。

3. 粒子物性及び実験条件

使用粒子の物性を表1に、実験条件を表2に示す。

シード粒子として $53\mu\text{m}$ のガラスビーズ、コーティング粒子として $0.55\mu\text{m}$ のシリカ微粒子を使用した。実験

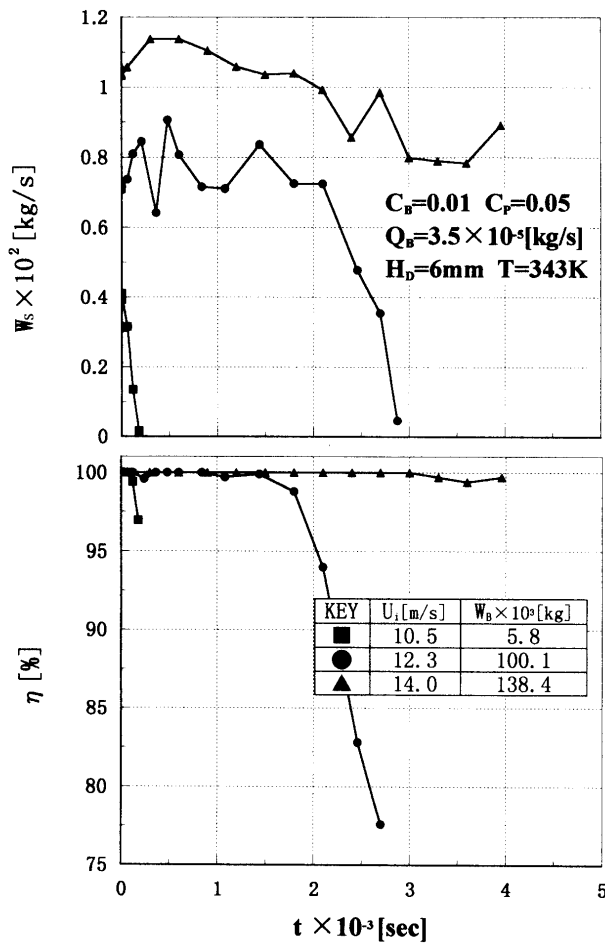


図5 操作時間と入口ガス流速が粒子循環量及び単粒子率に与える影響

は、チューブ距離、バインダー濃度、懸濁液供給量、入口ガス流速及び層内温度を表2に示すような範囲で変化させて行った。

4. 実験結果及び考察

4-1 コーティング効率及びコーティング率に与える操作時間の影響

図3に、操作時間に対するコーティング効率及びコーティング率の変化を示す。またこの図には、層内温度、含有微粒子濃度及びバインダー濃度一定の条件下で、懸濁液供給量を変化させた結果も示す。この図より、操作時間に対してコーティング効率はほぼ一定であるが、コーティング率は増加している。

図4に、各時間に対するコーティング粒子のSEM写真を示す。図中の番号は、図3の番号に対応している。これより時間が経つにつれ、シード粒子上の微粒子量は増加していることが分かる。この傾向は、図3で示したコーティング率の傾向と良く一致している。

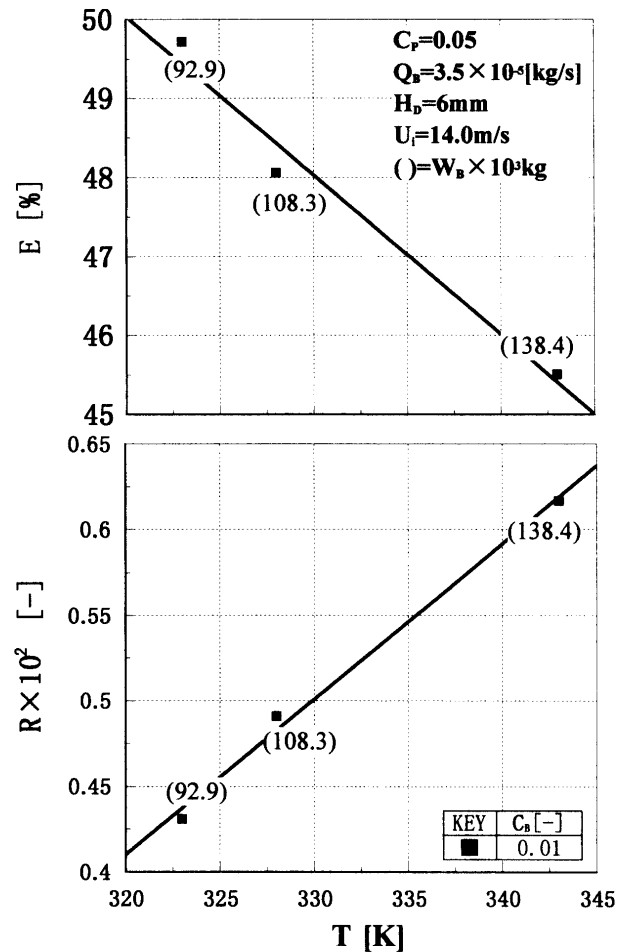


図6 層内温度がコーティング効率及びコーティング率に与える影響

4-2 粒子循環量及び単粒子率に与える操作時間と入口ガス流速の影響

4-2-1 操作時間の影響

図5に、操作時間と入口ガス流速が、粒子循環量及び単粒子率に与える影響を示す。またこの図には、それぞれの条件で、実験終了までに供給された懸濁液量もあわせて示す。この図より、時間の経過とともに粒子循環量が、減少していくことが分かる。これは、装置内が閉塞に近づいているため、粒子が循環しにくくなるためである。この傾向は、全ての実験で観察された。

4-2-2 入口ガス流速の影響

図5より、流速が遅くなるにつれて、閉塞までの時間と凝集造粒粒子形成までの時間がともに早まることが分かる。これは、流速の減少による、チューブ内粒子ホールドアップ、エントレインメントゾーン周辺の粒子層空隙間の懸濁液量の増加及び高速ガスのせん断力つまり解砕力の低下が理由として上げられる。またその他に、流

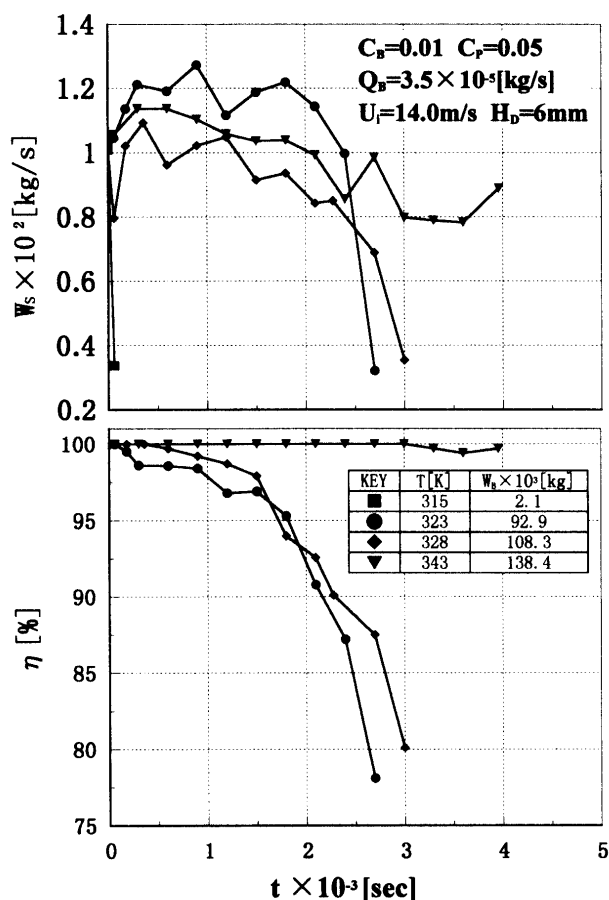


図7 層内温度が粒子循環量及び単粒子率に与える影響

速の減少による懸濁液滴径の増大や、ホールドアップの増加による分子間力の増大も、要因の一つと思われる。またこの図には、単粒子率の低下、つまり凝集造粒粒子の占める割合が多くなると、すぐ閉塞してしまうことも示されている。これより凝集造粒粒子の増加が、閉塞を促進すると考えられる。

4-3 層内温度の影響

図6に、層内温度がコーティング効率及びコーティング率に与える影響を、図7に層内温度が粒子循環量及び単粒子率に与える影響をそれぞれ示す。図6より層内温度の低下が高いコーティング効率を与えることが分かる。これは、層内温度が下がることによって、エントレインメントゾーン周辺の粒子層空隙間の懸濁液量が増加し、可塑限界点 (PL点)⁵⁾に近いところで造粒操作が行われているためと思われるが、凝集造粒粒子も形成されやすくなり、単粒子率の低下を招いてしまう。(図7参照)

コーティング率については、層内温度の増加によって増えているのが分かる。これは、コーティング効率は、

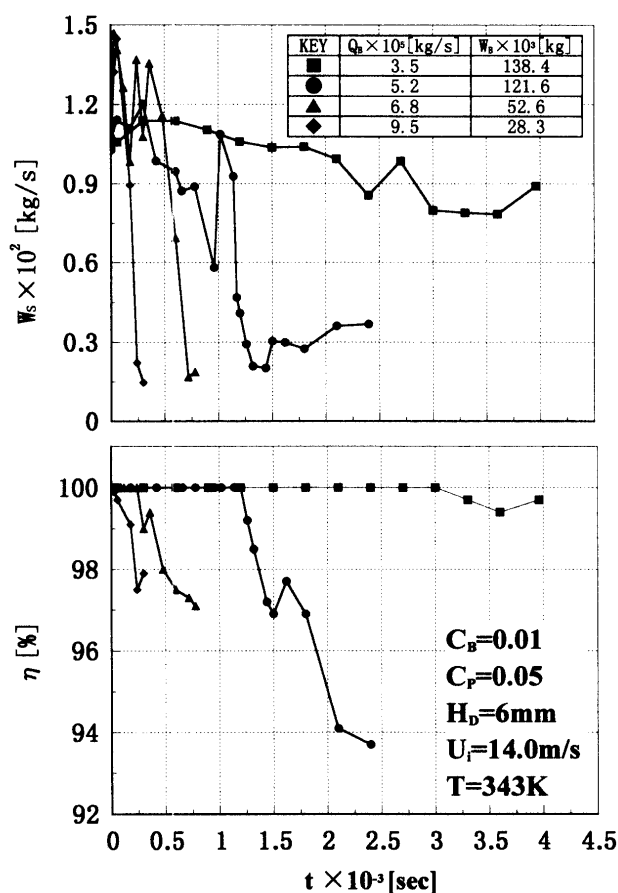


図8 懸濁液供給量が粒子循環量及び単粒子率に与える影響

層内温度の増加によって低下するが、閉塞までの時間が長くなるためである。また、層内温度315 Kの場合、すぐにエントレインメントゾーンが閉塞したため、コーティング効率及びコーティング率を求めることができなかった。

4-3の実験結果より、装置内が閉塞してしまう現段階では、層内温度は高い方が適している。

4-4 懸濁液供給量の影響

4-4-1 粒子循環量及び単粒子率への影響

図8に、懸濁液供給量が粒子循環量及び単粒子率に与える影響を示す。懸濁液供給量の増加とともに、閉塞及び凝集粒子形成までの時間は、早まることが示めされている。これは、循環粒子に対する懸濁液の接触効率の増加、またこれに伴う凝集粒子の形成、粒子層空隙間とチューブ内壁に付着する懸濁液量の増加が原因と思われる。

4-4-2 コーティング効率及びコーティング率への影響

図9に、懸濁液供給量がコーティング効率及びコーティ

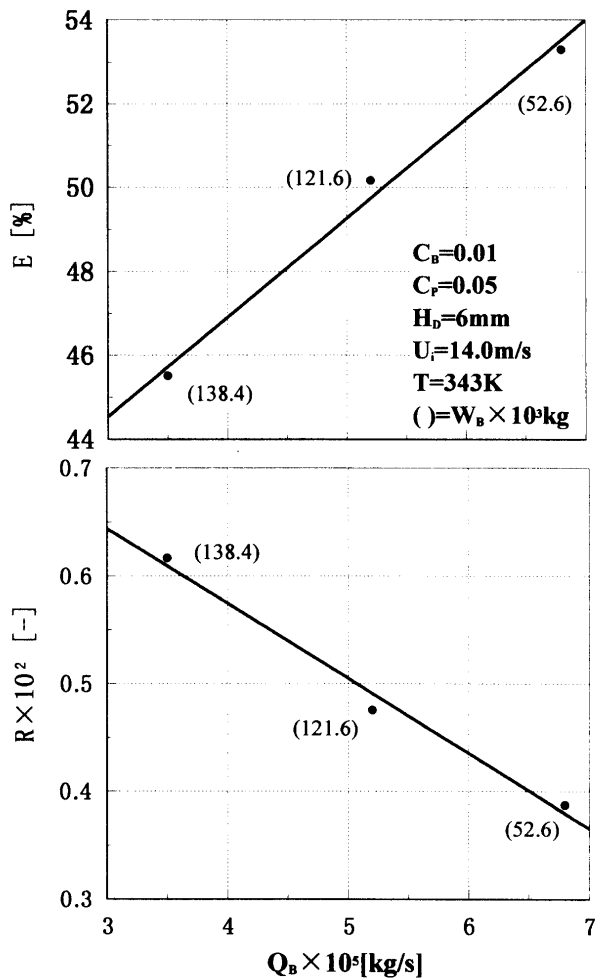


図9 懸濁液供給量がコーティング効率及びコーティング率に与える影響

ング率に与える影響を示す。この図より、供給量の増加が、高いコーティング効率を示すことが分かる。これらは、循環粒子に対する懸濁液の接触効率と結合力が増加するためであるが、高いコーティング効率は、単粒子率の低下を招いてしまう。コーティング率については、コーティング効率とは逆に、供給量の減少によって増加している。これは、コーティング効率は低い、閉塞までの時間が延びるためである。

4-5 チューブ距離がコーティング効率及びコーティング率に与える影響

図10に、チューブ距離がコーティング効率及びコーティング率に与える影響を示す。図中の斜体文字は、閉塞前に実験を終了したことを意味している。これよりチューブ距離の増加が、高いコーティング効率及びコーティング率の増加を示すことが分かる。この傾向の最も大きな要因は、チューブ距離の増加に伴い、粒子と懸濁液の接

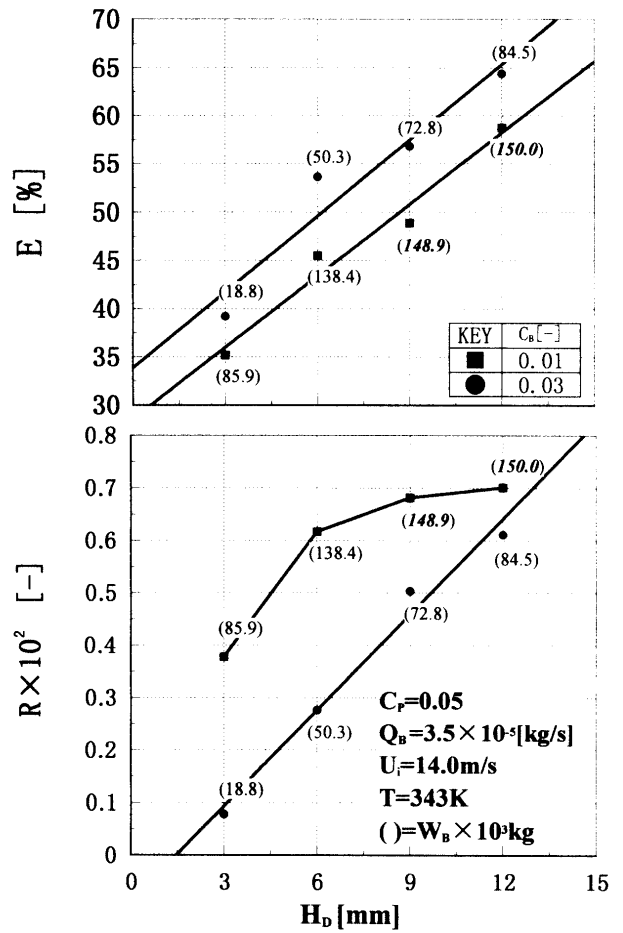


図10 チューブ距離がコーティング効率及びコーティング率に与える影響

触する機会が増えるためである。

4-6 懸濁液間欠供給に関する実験結果及び考察

図11, 12に、懸濁液間欠供給実験の結果を示す。懸濁液間欠供給実験は、閉塞までの時間を延ばすために行った。図11より、懸濁液を間欠に供給することで、通常の懸濁液供給よりも、閉塞までの時間を大幅に延長できることが分かる。また、懸濁液の供給を間欠にすることで、形成された凝集造粒粒子が、この装置の利点である高速ガスのせん断力によって、解砕され単粒子率が、再び向上することが分かる。これらの実験のコーティング効率及びコーティング率については、図12より、いずれの実験も、コーティング効率は通常実験より低下するが、コーティング率は増加することが分かる。

この結果から、現段階で図13に示すようなコーティング微粒子層の形成が可能である。

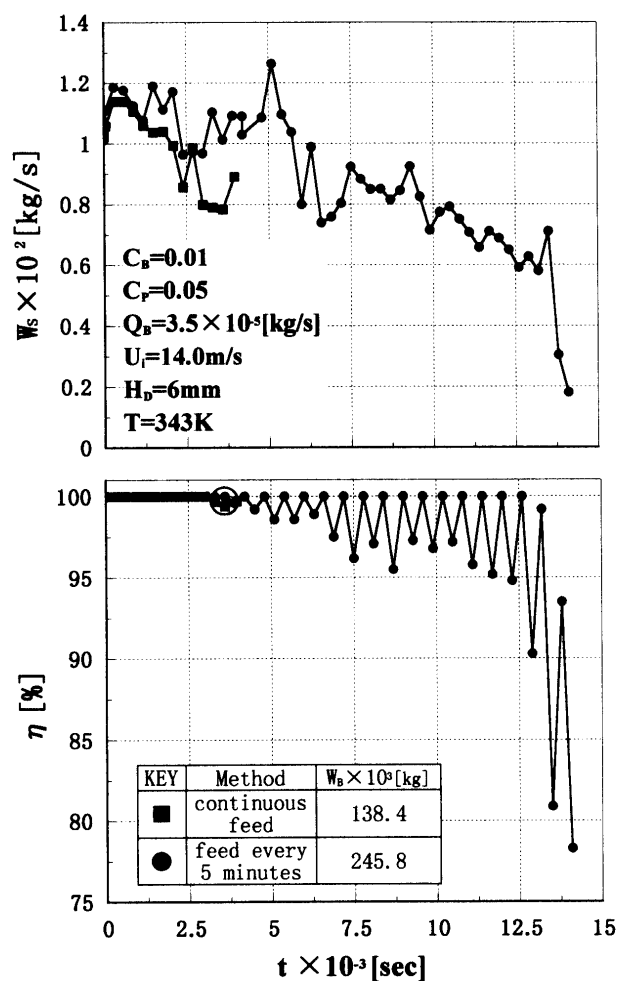


図11 懸濁液間欠供給と連続供給実験の比較
(粒子循環量と単粒子率に及ぼす影響)

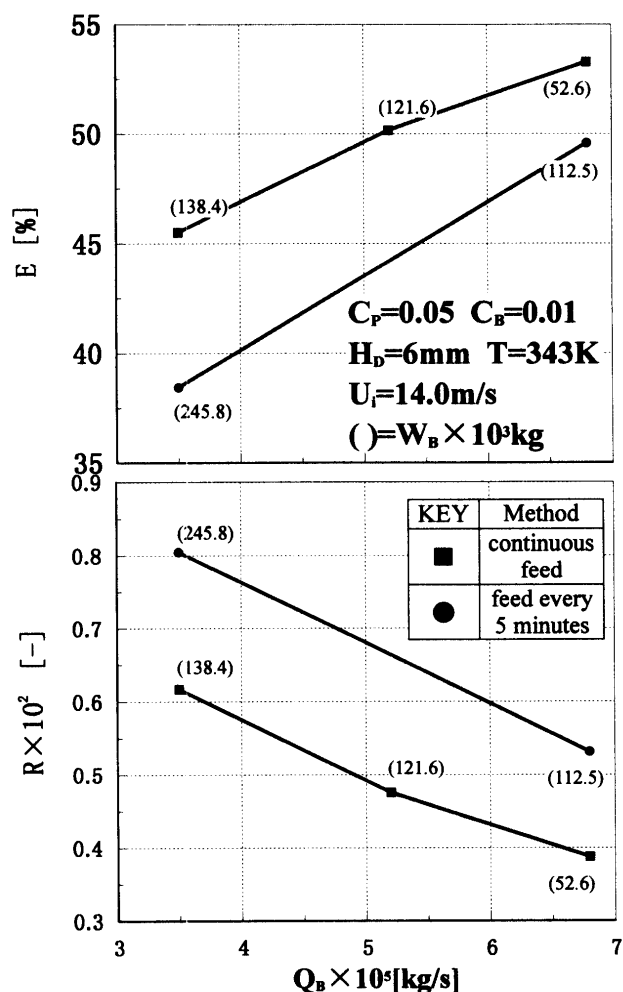


図12 懸濁液間欠供給と連続供給実験の比較
(コーティング効率及びコーティング率に与える影響)

5. 結言

実験結果及び考察より、以下のような結言が得られた。

- (1) 閉塞に至るまでの時間は、層内温度、入口ガス流速の増加及び懸濁液供給量の減少によって延長できる。また、懸濁液を間欠供給することでも延長できる。
- (2) 単粒子率は、操作時間によって低下するが、懸濁液の供給を間欠にすることで、再び向上する。
- (3) コーティング効率は、操作時間に対してほぼ一定であり、懸濁液間欠供給及び高い層内温度によって低下するが、懸濁液供給量、チューブ距離の増加によっては、逆に上昇する。
- (4) コーティング率は、層内温度、チューブ距離の増加及び懸濁液供給量の減少によって増加する。操作時間、懸濁液間欠供給によっても増加する。

Notation

- C_B : バインダー濃度 [-]
 C_P : 含有微粒子濃度 [-]
 D_P : 平均粒子径 [μ m]
 E : コーティング効率 [%]
 H_D : チューブ距離 [mm]
 Q_B : 懸濁液供給量 [kg/s]
 R : コーティング率 [-]
 t : 操作時間 [sec]
 T : 層内温度 [K]
 U_i : 入口ガス流速 [m/s]
 W_B : 実験終了までに供給された懸濁液重量 [kg]
 ρ_p : 粒子密度 [kg/m³]
 η : コーティング造粒物の単粒子率 [%]

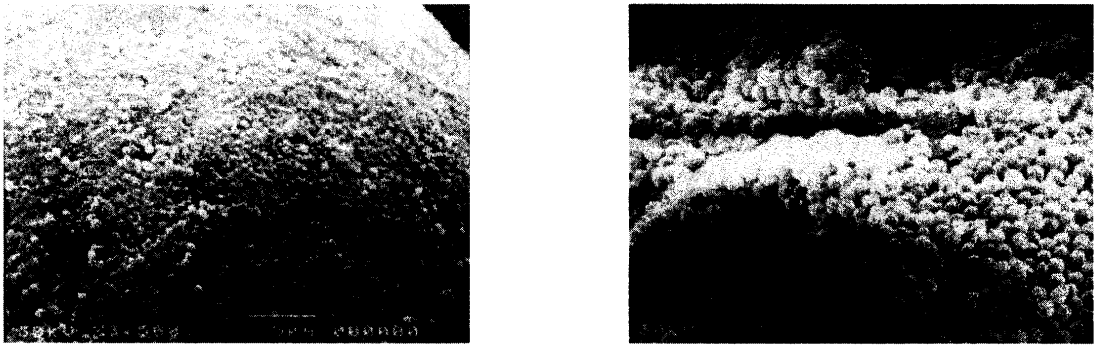


図13 実験で得られたコーティング造粒粒子
($C_p=0.05$, $C_b=0.01$, $H_D=6\text{mm}$, $T=343\text{K}$, $U_i=14.0\text{m/s}$, $Q_b=3.5\times 10^{-5} [\text{kg/s}]$)

参考文献

- (1) Kage, H., M. Oba, H. Ishimatsu, H. Ogura and Y. Matsuno: *J. Soc. Pow. Tec., Japan*, 33, 711-716 (1996)
- (2) Kage, H., T. Yoshida, H. Matsui and Y. Matsuno: *J. Soc. Pow. Tec., Japan*, 29, 422-427 (1992)
- (3) Wurster, D. E. : *J. Am. Pharm. Assoc.*, 48, 451 (1959)
- (4) 福森義信 : 粉体と工業, VOL. 25, NO.9, 27-32 (1989)
- (5) 古谷伊之助 : 粉体と工業, VOL. 21, NO.10, 36-44 (1989)