

# 気流と機械的振動を利用した微小粉体材料の運動制御とコーティング操作への応用

九州工業大学大学院工学研究院物質工学研究系

馬渡 佳秀

## 1. はじめに

微粉体材料は電子材料・医薬品・食品等で高機能化・付加価値化のニーズが高まっているが、材料粒子間の凝集によるハンドリング性の低下が問題である。本研究では、微粉体が有する凝集性を外力である気流と振動の併用操作により低減し、ハンドリング性を高めた状態で微粉体の表面を精密にコーティング処理できる粉体ハンドリング・粒子表面コーティング装置の開発を行う。特に本研究では医薬品製剤分野への応用を想定し、当該分野で求められる  $100\ \mu\text{m}$  以下の微小粉体表面のコーティング装置の開発を目的とする。機械的振動場により微粉材料が形成する凝集体・クラスターを解砕しながら運動状態を制御し、更に気流分散操作（流動層）を併用して粒子表面とコーティング材料の接触性を向上させコーティング効率を高める。本研究では、微小粉体材料の機能化・付加価値化プロセスと量産化を目指した装置開発を行う。

一般に粉体の粒子径が減少すると粒子間に作用する相互作用の影響が粒子自重に対して相対的に大きくなるため、粒子同士の凝集や装置壁への粒子の付着が微粉体をハンドリングする際の問題点として挙げられている。そこで粒子間に作用する相互作用による凝集力に対して分離力として機械的な外力を利用する場合がある<sup>1-4)</sup>。本研究では機械的振動を粒子間相互作用に起因する凝集力に対する分離力として活用し、微小な粒子の流動層をベースとしたハンドリングを改善する。ここで、本研究で取り組む粉体コーティング操作では、ホストとなる粉体材料の表面にゲストとなるコーティング物が均一に付着する必要がある。そのためには、個々の粒子表面が系に供給されるコーティング材料に対して効果的に露出している必要があり、本研究で採用する粉体のガス流動化現象を活用する。粉体のガス流動化状態では、個々の粒子が上向きの流れの中で浮遊状態となると同時に個々の粒子が個別に気流中に分散している。しかしながら、微小粒子では前述の粒子間の強い凝集力の影響により凝集体の形成やガス流路が偏在化することによる流動性の低下が課題である。効果的に粉体表面にコーティング操作を施すためには、連続的に供給されるコーティング物とホストの被コーティング物との効率的な接触操作が必須であり、本研究では機械的振動と装置形状であるテーパ構造およびドラフトチューブの内挿により課題の解決を目指す。

## 2. 実験装置及び実験方法

### 2-1. 実験装置（二次元型可視化装置）

図1に本研究で設計・製作したドラフトチューブ付流動層の概略図を示す。図1(a)は透明アクリル樹脂製の二次元型装置であり、ガス供給口の断面は幅25mm、奥行き10mmの矩形形状とし、装置背面からバックライトを施すことで粉体層中に発生する気泡の移動経

路やトレーサー粒子の移動状態が観察できる。装置下部はテーパ形状となっており、テーパ角は 45°、60°、75°として比較した。また、フリーボード部は幅 120mm で中央に幅 40mm のドラフトチューブを想定した部位を設置し、その両端にそれぞれ幅 40mm の粒子下降部を設けた設計とした。装置下部より供給したガスは主に中央に設置したドラフトチューブ内を透過し、その際にチューブ内の粒子上方へ輸送する。その後、ドラフトチューブ上端で粒子が半径方向に飛散、チューブ両端のアニュラス部へ堆積し自重により重力移動することで装置内の粒子循環が進行する。本研究ではガス分散板にステンレス鋼製の焼結板を用いた。流動化ガスには窒素ガスを用い、マスフローコントローラー（KOFLOCK 社製）を用いて流量を調節した。振動を付加する場合は流動層本体を振動装置（中央化工機(株)製）に固定し加振した。振動装置の両端に設置してある振動モーターの回転数により振動周波数を設定し、振動振幅は振動モーター両端のアンバランスウェイトの偏心の程度を調節しながら振動計で振動振幅を測定した。粒子の移動速度はデジタルビデオカメラでトレーサー粒子の移動状態を撮影し、その軌跡を画像解析から算出した。

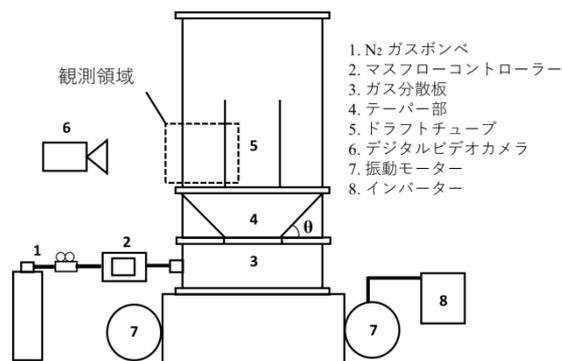


図1(a). 二次元型可視化装置

## 2-2. 三次元型振動流動層コーター

図 1 (b)には三次元型装置の概略図を示す。装置本体はステンレス鋼製で下部にテーパ部を有するテーパ型流動層と、テーパ部の角度を 60°、75°とした。流動化ガス供給口は内径 38.7mm とし、装置上部に内挿しているドラフトチューブと同一径とした。ドラフトチューブはテーパ部に挿入できるように製作し、テーパ角 60°で 20mm まで、また、75°で 70mm まで挿入できる。加振装置は振動モーターを用いて鉛直方向の振動を付加した（振動周波数および振動振幅の設定は 2-1 と同様である）。流動化ガスは空気を使用し、コンプレッサーからオイル・ミスとエリミネーターを介して冷凍式乾燥器を通した乾燥ガスをヒーターで所定温度まで加熱して装置本体へ供給した。コーティング材料は平均粒子径 1.0 $\mu\text{m}$  の青色顔料を用い、結合剤であるポリビニルアルコール (PVA) を溶解した水溶液中へ所定量添加した懸濁液をコーティング溶液とした。チューブポンプで供給液量を調整し、二流体ノズルを利用して粉体層上部からドラフトチュ

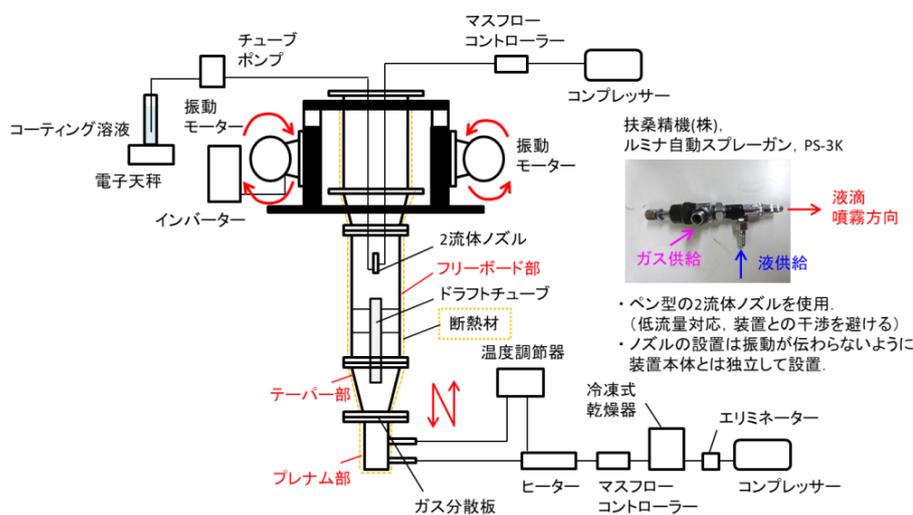


図1(b) 三次元型振動流動層コーター

ーブ上端へ向けてトップスプレーしてコーティング操作を行った。所定条件でコーティング操作後、装置内の粉体を採取し、コーティング状態の評価を行った。

### 3. 実験結果及び考察

#### 3-1. 可視化装置による粒子移動特性に及ぼす装置構造，振動付加の影響

図2に空塔ガス流速  $u = 0.83 \text{ m/s}$  時の異なるテーパ角 ( $75^\circ, 60^\circ, 45^\circ$ ) のアニュラス部における速度分布を比較した結果を示す。ここで、粒子移動速度は装置下方への移動速度成分を有する者を正に取っている。テーパ角が増加するにしたがい正負どちらの領域でも速度分布の幅が増加した。これはアニュラス部に浸入するガス（気泡）量に起因しているものと考えられる。本装置ではフリーボード部の全幅が一定であることからテーパ角が大きくなるほど流動化ガス供給口とドラフトチューブ入口までの距離が長くなるため気泡サイズの成長の程度が大きくなる。したがって、テーパ角を小さくし流動ガス入口とドラフトチューブ入口までの距離を短くするほどアニュラス部への気泡浸入が抑制される結果が得られた。

図3にテーパ角を  $60^\circ$  に固定し、ドラフトチューブをテーパ部へ延長 ( $L = 0 \text{ mm}, 25 \text{ mm}, 35 \text{ mm}$ ) した場合の粒子移動速度分布を比較した結果を示す ( $u = 0.83 \text{ m/s}$ )。テーパ部へのドラフトチューブの延長長さを増加させるにしたがって負の速度成分の割合が減少し、その粒子移動速度分布の範囲が減少している。こ

れはドラフトチューブをアニュラス部内へ延長することで気泡サイズの成長が十分に進行する前にガスをドラフトチューブへ誘導することができたことを意味している。また、延長長さが長くなるほど停滞する粒子 ( $vp = 0 \text{ m/s}$ ) の割合が増加している。これはテーパ部へのドラフトチューブの延長が、側壁とドラフトチューブ外壁との間の領域を縮小し、アニュラス部からの粒子排出の妨げとなった可能性が考えられる。

図4にテーパ角  $60^\circ$ 、ドラフトチュ

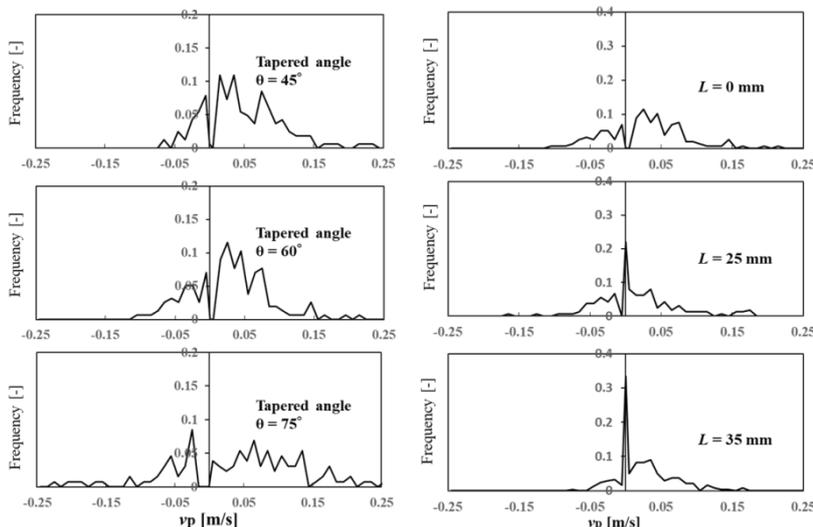


図2. 粒子移動速度分布に及ぼすテーパ角度の影響

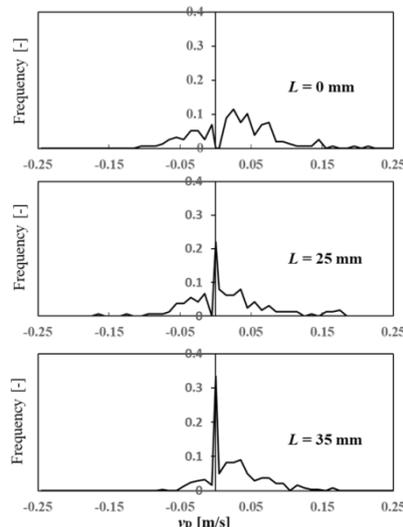


図3. 粒子移動速度分布に及ぼすドラフトチューブ延長長さの影響

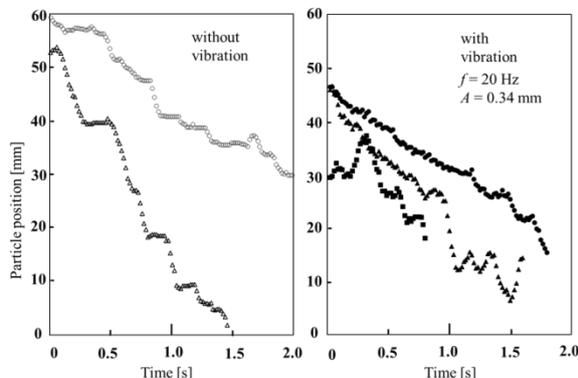


図4. 粒子移動特性に及ぼす振動付加の影響

ーブ延長長さ 35 mm の場合において、振動が粒子移動に与える影響を時間に対する粒子の鉛直方向成分の粒子移動軌跡を示した。なお、振動周波数は 20 Hz、振動振幅は 0.34 mm のケースを示している。振動を付加しない場合、粒子の移動が時間的に停滞する状態がランダムに発生するのに対し、振動を付加した場合には、粒子が装置上方へ移動する期間が見られるものの、概ね一定速度で下降している状態が確認できた。このことから振動付加がアニュラス部の粒子の下降、すなわち装置内循環を促進・制御できることが示された。

### 3-2. 三次元型振動流動層コーターによる流動性試験

前項 3-1 で得たガラスビーズ、2D 装置を用いた可視化検討では、テーパ部へのドラフトチューブの内挿が気泡のアニュラスへの侵入を抑制する作用があり、結果的に粒子移動速度の定速化に寄与することが示唆された。その結果を踏まえ、3D 装置による粒子移動特性の検証においてもドラフトチューブのテーパ部への延長および振動付加が粒子移動・装置内循環特性に及ぼす影響について実験的に検証した。

図 5 にテーパ角 60°における装置内部の流動様式の模式図を示す。ガス通気のみの場合、通気ガス量を増加させるとドラフトチューブ出口からの粒子の吹き上げはガス通気初期に限定され、その後粒子のドラフトチューブ出口からの降下状態は観察されず、テーパ部側面に設けた観察窓からも粉体層のバルク挙動は観察されなかった。初期の粒子降下は充填時にドラフトチューブ内に存在していた粒子が噴出した結果であると考えられ、ガス供給口からドラフトチューブ入り口に至る層高さ方向にブリッジが形成され粒子移動を阻害していることが予想される。また、操作中にアニュラス部の層表面から断続的に粒子の吹き上げが発生していたことから、ガスチャネルが形成されていたことが推察される。これはドラフトチューブをテーパ部へ 20 mm 挿入した場合でも同様であった。

一方、ドラフトチューブをテーパ部へ内挿して加振を行った条件では、アニュラス部の層表面で気泡の破裂を意味する粒子のスプラッシュ現象、また、ドラフトチューブ出口から粒子が連続的に噴出する状態が観察され、これらは連続的な粒子の装置内循環を確保できたものと考えられる。ただし、側面観察窓からは不動部分（粒子の付着層）も認められた。

図 6 に操作条件である振動振幅とガス流速の関係から、それらの組み合わせにより粉体層がどのような流動様式を現したのかを示すフローパターンマップを示す。図はドラフトチューブをテーパ部へ 20 mm 内

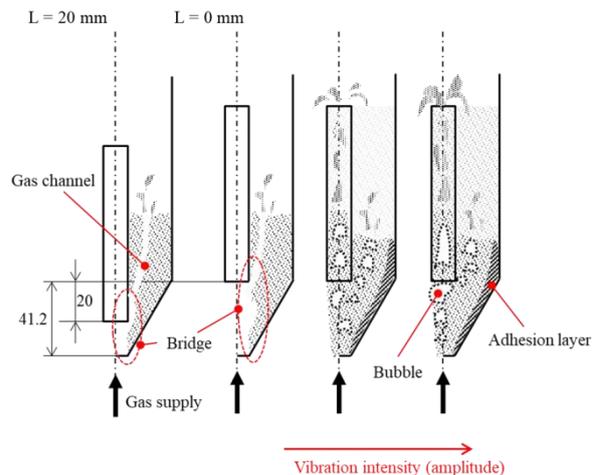


図 5. 装置内流動様式の模式図

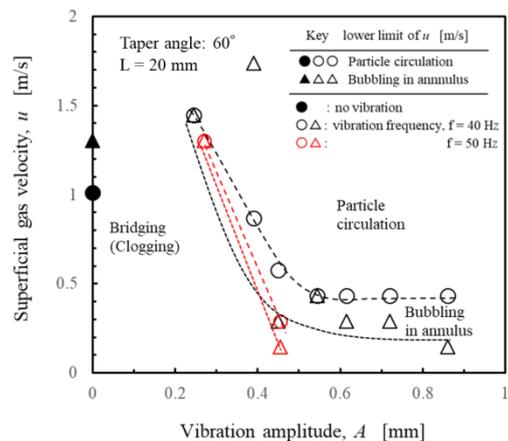


図 6. フローパターンマップ

挿した場合のフローパターンマップを示している。無振動では粒子循環は通気初期のみであったが、振動振幅 0.25 mm の条件では微量の粒子下降パターンが観察された。振動振幅を増加させるに従い、図中右上領域の粒子循環パターンが確保できる操作範囲が拡大しているが、振動振幅が 0.5 mm を越えるとそのような操作範囲の拡大は発生しないことがわかった。さらに、図中の赤色プロットは振動周波数を増加させた (40 Hz→50 Hz) 場合の結果を示している。振動周波数の増加により粒子循環を確保できる操作範囲が低ガス流速側に拡大していることから、系外への粒子飛散を低減できる可能性が示唆される。

### 3-3. 三次元型振動流動層コーターによるコーティング試験

表 1 にコーティング操作条件の一覧を示す。ホスト粒子の流動化操作に関する流動化ガス流量とその温度および加振条件、また、コーティング操作に関するスプレーガス流量、コーティング液流量および噴霧時間について検討した。

表1. 実験操作条件

No.	流動化ガス流量 $Q_g$ [L/min]	流動化ガス温度 $T_{sv}$ [°C]	スプレーガス流量 $Q_s$ [L/min]	コーティング液流量 $Q_L$ [ml/min]	噴霧時間 $t$ [min]	振動周波数 $f$ [Hz]	振動振幅 $A$ [mm]
1	50	70	10	2.0	20	40	0.365
2	50	70	15	1.5	10	40	0.365
3	60	80	15	1.0	15	40	0.365
4	60	80	15	0.5	15	40	0.365
5	60	80	15	1.0	30	40	0.365
6	60	80	15	1.5	40	40	0.365
7	60	80	15	1.5	40	50	0.360
8	60	80	15	1.5	40	40	0.365

実験8はドラフトチューブ無し

実験 No.1 のスプレー条件でコーティング試験を実施後、スプレー噴霧口にホスト粉体が大量に付着していることが確認された。スプレー圧(スプレーガス流量)の不足により、スプレー出口における液滴の微細化が十分ではなかったため、ノズル先端に液膜が常時生成し、そこへ飛散したホスト粉体が付着して塊化したものと考えられる。実験終了後、装置テーパ部(ドラフトチューブ下)に数十ミリオーダーの凝集体を確認した(図 7a)。凝集体内部はコーティング剤の青色顔料の塊であり、乾燥も不十分であることが確認された。このことから、ノズル近傍のホスト粉体の付着により液滴噴霧が実行されず、比較的大きな液滴が粉体層に落下して凝集体を形成したものと考えられる。スプレーからの微細液滴の噴霧を円滑にするために、スプレー圧を増加してコーティング溶液の流量を減少させた(実験 No. 2)。実験後のスプレーノズルを観察すると、ノズル先端の付着物を大幅に減らすことができた。サンプルに大きな凝集体塊は無く、僅かに青色に変色した粉体が散見された(図 7b)。着色粒子量が少ないことから、ホスト粉体とコーティング溶液の液滴の接触頻度の増加させるため、(1)流動化ガス流量を増加(ドラフトチューブからの粒子噴出量の増加)と(2)ホスト粒子と接触したコーティング材の定着を促進するために操作温度を増加させて実験を行った(実験 No. 3)。ここで、操作温度の増加は液滴内の液成分の蒸発を促進するため、ホスト粒子同士の凝集体形成を抑制する狙いもある(これに合わせて溶液流量も減少させた)。噴霧量(液流量×噴霧時間)が実験 No.2 と同一であったが、得られたサンプルに含まれる青色粉体の量が大幅に増加した(図 7c)。実験 No.4-6 では、コーティング処理粒子量(ここでは着色粒子量)を増加させるため、噴霧時間とコーティング液流量を同時に変化させて噴霧条件の影響を検証した(スプレーガス流量は一定)。実験 No.4 の場合、装置下部に青色粒子の凝集体が多数存在しており、回収全サンプルはほ

ば白色粉体であった。このことから、スプレーガス流速に対する液流量が小さいため液滴の微粒化が進行し、噴霧液滴の大部分が系外へ気流搬送された可能性がある。徐々に液流量を増加させると（実験 No.5, 6）、特に実験 No.6 では、回収サンプル全体に広く青色に着色された粉体が得られ、異常成長した凝集体の存在も皆無であることから、表面観察は現状で未実施であるが、適切なコーティング処理が実施された可能性がある（図 7d）。

実験 No.6-8 は振動周波数およびドラフトチューブ設置有無がコーティング操作に及ぼす影響について検討している。実験 No.6 と 7 では振動振幅がほぼ同一で振動周波数が実験 No.7 の方を高く設定している。振動周波数を増加させた場合、層膨張性が大きく減少した。また、テーパ部に厚みのある付着層が形成されていた。これは振動周波数の増加により層壁面への粉体層の圧密の影響が増大したためと考えられる。振動周波数の増加により粉体層の圧縮が促進し、ドラフトチューブへの粉体流入も促進されることが考えられるが、圧密層の形成によって循環する粒子量が限定され、結果的に着色粒子量が減少したものと考えられる（図 7e）。回収サンプルからは濃い着色粒子が得られたが、循環粒子が限定されていることを加味すると、コーティング材の付着量が相対的に増加するため、濃い着色粒子が得られたものと考えられる。最後にドラフトチューブ設置の効果を確認するために、実験 No.8 ではドラフトチューブの設置なしの条件で実験 No.6 との結果を比較した。ドラフトチューブ無しで実施した結果は、着色粒子が少なく、層底部に凝集体が多数存在した。また、壁面は白色粒子のみであった。これらのことから、ガスが通過する層中央部のみがコーティング材料と接触して過剰な接触が生じ、凝集体形成を導いたものと考えられる。

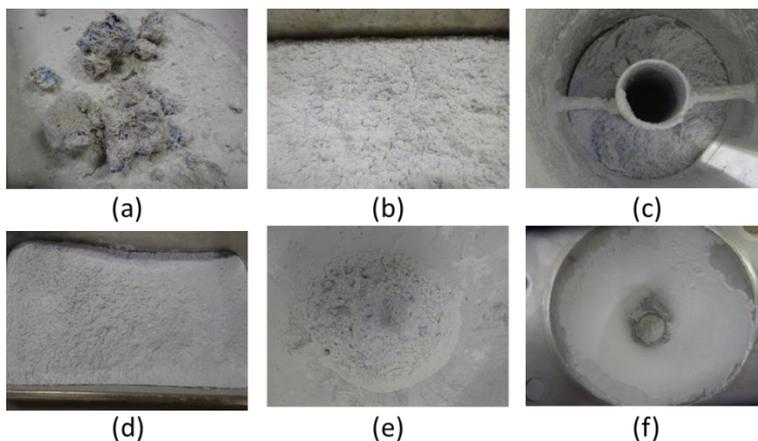


図 7. コーティング操作後のサンプル粒子

#### 4. まとめ

本研究では、微笑粉体のハンドリング性を向上し更に粉体表面への精密なコーティング操作を行うことのできる装置開発を目的として、ドラフトチューブ付きテーパ型振動流動層を設計・開発した。装置内の粒子循環移動状態を最適化するため、可視化装置によりテーパ角度およびドラフトチューブの設置条件について明らかにし、三次元型コーターを製作し、微小粉体のコーティング操作においては気流と機械的振動の併用操作による粒子運動制御が重要であることを示した。

#### 謝辞

本研究を遂行するにあたり、天野工業技術研究所から多大なご支援を頂きました。ここに記して謝意を示します。

## 参考文献

- 1) 馬渡佳秀, 振動場における付着, 凝集性微粒子の流動化特性に関する研究, 粉体工学会誌, **42**, No. 9, pp. 648-651, (2005)
- 2) 馬渡佳秀, "付着, 凝集性微粒子の流動層ハンドリング", PHARM TECH JAPAN, **24**, No. 12 pp.163~168, (2008)
- 3) H. Wang, T. Zhou, J.-S. Yang, J.-J. Wang, H. Kage and Y. Mawatari, "Model for Calculation of Agglomerate Sizes of Nanoparticles in a Vibro-fluidized Bed", *Chemical Engineering & Technology*, **33** No.3 pp.388~394, (2010)
- 4) Yoshihide Mawatari, Yasumasa Hamada, Masato Yamamura, Hiroyuki Kage, "Flow Pattern Transition of Fine Cohesive Powders in a Gas-Solid Fluidized Bed under Mechanical Vibrating Conditions", *Procedia Engineering*, **102**, pp. 945~951, (2015)