

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 28 年 6 月 7 日現在

機関番号：17104

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2013～2015

課題番号：25420807

研究課題名(和文)凝集性微粒子を対象にした振動場を利用するバルクハンドリング装置の開発

研究課題名(英文)Development of powder bulk handling process utilized with a mechanical vibration for fine powders

研究代表者

馬渡 佳秀 (Mawatari, Yoshihide)

九州工業大学・工学(系)研究科(研究院)・助教

研究者番号：70380722

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,800,000円

研究成果の概要(和文)：本研究では、外部からの機械的振動の付加により、付着凝集性の影響が大きくハンドリング性が困難とされる微粉体層を、振動の伝播による構造的な破壊とそれに伴う層内におけるガス通気状態の改善を実験的に検証し、振動とガス通気の適切な操作条件を提案した。サブミクロンオーダーまで試験粒子の物性を変えて振動付加による流動化状態改善に対する有効性を示した。バルクハンドリング装置として造粒装置への応用を計画し、当初予定していた微粉からの造粒操作を検討までは十分に達成できなかったが、振動付加によって生じる粒子運動の規則化及び促進が造粒サイズの成長促進とサイズ分布の調整に一定の効果があることを見出した。

研究成果の概要(英文)：This study aimed to investigate the effect of a mechanical vibration on the improvement of bed fluidity for fine cohesive powders and the applicability of bed vibrating device for a bulk handling process with fine cohesive powders. The stable gas channels, which are the unfavorable gas flow structure in the bed, were frequently broken by the propagation of vibration force. In this study, various physical properties of fine powders were tested to clarify the proper conditions of gas flow rate and external bed vibration for favorable gas fluidization state. To examine the applicability of vibro-fluidized bed, we carried out the granulation experiment with fine powders. With certain vibrating conditions, the granule size was increased and its size distribution became narrower. The particle motion was enhanced by the addition of mechanical vibration, and it improves the mixing behavior between seed particles and atomized drops of binder solution effectively.

研究分野：化学工学

キーワード：流動層 微粒子 振動 造粒

1. 研究開始当初の背景

近年の各種産業におけるファイン化は、出発原料である粒子製造プロセスの多様化と製造粒子の微粒子化により製造製品の材料そのものの性質を多機能化し、大幅な機能性の向上によって高い付加価値を付与する方向に進展しており、出発原料である粉体をミクロンオーダー以下の超微粒子の状態から取り扱いたいといったニーズが増大している。例えば、精緻な機能が要求される医薬品製造では、ミクロンオーダー以下の微粒子を出発原料とし、それらの凝集状態を制御できるハンドリング装置の開発が望まれている。

粉体のバルクハンドリング装置としてガス流動層が挙げられる。しかしながら、ハンドリング対象粒子が数ミクロンオーダーになると、粒子間凝集や粒子と装置壁間の付着がプロセス操作上大きな課題となる。そこで、本研究テーマでは外部から機械的振動を付加する振動付与方式の流動層を利用し、ミクロンオーダー以下の微粒子を出発原料とした造粒プロセスの構築を実施する。振動の付加により微粉体層内のガス分散性を向上させ、流動化操作を可能とする操作条件について検討し、微粒子の有する凝集力と振動付加による分離力のバランスを制御しながら、造粒操作を可能とする装置開発を目的とする。

2. 研究の目的

本課題では、平均粒径が数ミクロン以下の粉体を出発原料とした流動層型の造粒およびコーティング装置の開発を目的とする。機械的な振動を外部より付加できる振動付加型流動層を開発し、粒子間に作用する付着・凝集力と外部から伝搬する機械的振動による分離力との平衡バランスを、振動条件(振動周波数、振動振幅)および通気条件から制御し、微粒子の流動化機構の理解と共にバルクハンドリング装置としての可能性について造粒操作を通して検証する。

3. 研究の方法

ミクロンオーダー以下の異なる粒子径、密度の粒子について振動場における流動化特性を検討すると共に振動場で発生する粒子運動の発現条件にも着目する。さらにそれらの振動場における微粉体層の流動化特性および粒子運動特性の結果を基に、モデル粒子を用いた造粒プロセスへの適用性を検討する。

(1)振動場における微粒子流動化特性の解明

試験粉体として、平均粒径が $0.5\mu\text{m}$ から $20\mu\text{m}$ までの粒子について、異なる材質(高分子系(密度がおおよそ $1,000 \sim 2000\text{kg/m}^3$), シリカ系(同 $2000 \sim 3000\text{kg/m}^3$), 及び金属系(同 4000kg/m^3 以上)) 準備した。振動条件(振動周波数、振動振幅)と通気条件を変えながら、それらの流動化特性について検証した。流動化特性はガス流速と粉体層の圧力損失およ

び層高の関係および粉体層内の粒子挙動の観察結果から評価した。特に、粒子運動については、トレーサー粒子を追跡することで規則性と移動速度に及ぼす振動付加の影響を検証した。

(2)振動場における粒子運動発現条件の確立

振動が粒子層を伝搬して生じると考えられる粒子運動が付加する振動パラメータや通気条件によりどのような影響を受けるのかを検討した。実験は通常の円筒型と造粒装置で汎用のテーパ型の種類で行い、それぞれ振動条件、ガス通気量および粒子サイズの影響について粒子移動特性から評価した。

(3)機械的振動場が造粒過程に及ぼす影響

Fig. 1 に示したような流動層型造粒装置を作製し、流動層造粒操作時における造粒特性に及ぼす振動付加の影響について評価した。造粒試験は所定の振動条件及び通気ガスの温度、流量を固定して実施した。流動層本体はステンレス鋼製のテーパ型流動層とし、振動方向を可変できる振動装置に流動層本体を固定して加振した。本節では振動方向を鉛直方向とし、供給ガス流量を 200L/min 、ガス温度を 80°C とした。振動周波数は $20 \sim 50\text{Hz}$ 、振動振幅は $0 \sim 2.0\text{mm}$ の間でそれぞれインバーター及び振動モーターのアンバランスウェイトの偏心の程度を調節して設定した。粉体層温度が安定した時点でポリビニルアルコールをバインダーとしたモデルバインダー溶液をトップスプレー方式にて粒子層表面に向けて噴霧した。出発原料のサイズを $75, 40\mu\text{m}$ のガラスビーズをモデル粒子とし、得られた造粒物は $40\mu\text{m}$ から 1.0mm まで 20 種類の篩で篩分けし、重量基準の平均径を算出した。必要な場合は電子顕微鏡にて造粒物を構成する一次粒子間のバインダー材料による架橋状態を観察した。

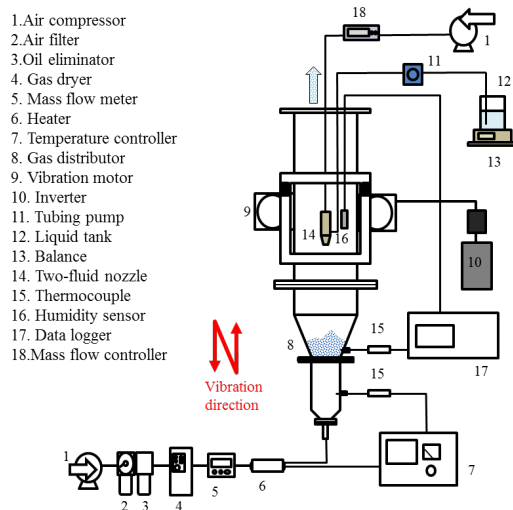


Fig. 1 Outline of experimental apparatus

4. 研究成果

(1) 振動場における微粒子流動化特性の解明

微粉体で構成される粉体層にガス通気を行った際に生じる形成されたガスチャネルの常在化は、振動の付加により抑制されることが研究代表者のこれまでの成果により知られており、本課題で用いた幅広い粒子物性における実験結果でも同様の結果が得られた。また、振動の強度、言い換えると振動振幅もしくは振動周波数を増加させることにより、ガスチャネルの破壊と再生のサイクルがより短くなること、また、ある振動条件とガス通気条件の範囲では層内に気泡が形成されることが実験的に示された。特に、気泡形成を発現するような適切な振動・ガス通気条件の範囲において、粉体層のガス通気による膨張の程度が大幅に増加した。これは振動の付与により、ガスチャネルに代表されるガス通気状態の偏流の程度が低減していることを意味している。Fig. 2 に典型例として異なる粒子径のアルミナを用いた場合の振動振幅に対する層空隙率の関係を示した。気泡形成が観察される下限の振動振幅以上の範囲で層空隙率が增大していることが示されている。

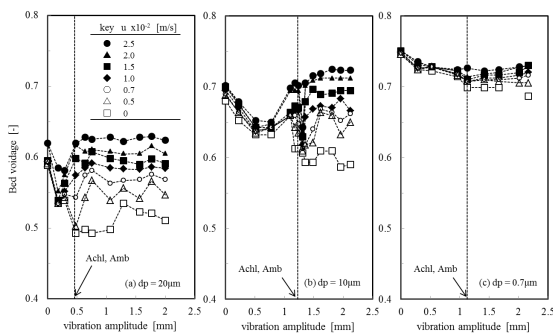


Fig. 2 Effect of vibration amplitude on bed voidage for different gas velocities ((a) 20 μm , (b) 10 μm , (c) 0.7 μm , Alumina particle)

(2) 振動場における粒子運動発現条件の確立

本検討項目では主にテーパ型流動層を用いて振動場における粒子移動特性を中心に振動付加の影響を検討した。Fig. 3 に示したような鉛直振動を付加できる振動装置に透明アクリル樹脂製のテーパ型流動層を設置し、側面部分の粒子移動速度を解析した。テーパ型流動層では粉体層下方から供給されるガス流速により層がガス流動化するコア部および直接的にはガスと接触せずテーパ斜面を重力流動するアニユラス部に分けて粒子循環が進行することを示し、また、トレーサー粒子の追跡により粒子移動速度が振動の付加によりどの程度増加するかについて実験的に明らかにした。Fig. 4 に一例として異なる振動周波数条件におけるガス流速と粒子移動速度の関係について、それぞれ異なる振幅の条件における結果を示している。振動を付加することで無振動の場

合に比べ、より低流速で高い粒子移動速度を得ることが出来ることを明らかにした。例えば造粒操作を考慮した場合、層上部から噴霧される粒子結合剤を含む液滴が粒子層表面から層内に侵入し、粒子層内に分散することで粒子間の結合(造粒)が効果的に進行する。ここで、粒子運動を規則的に誘導することが出来れば、より効果的に造粒操作を進行させることに寄与できるものと考えられる。

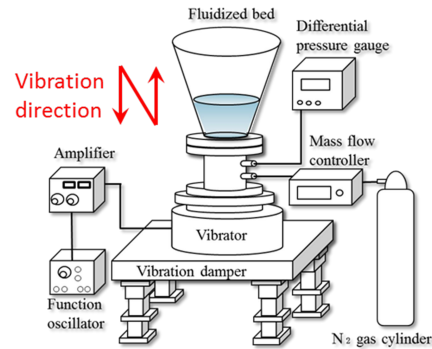


Fig. 3 Outline of experimental apparatus (Tapered bed)

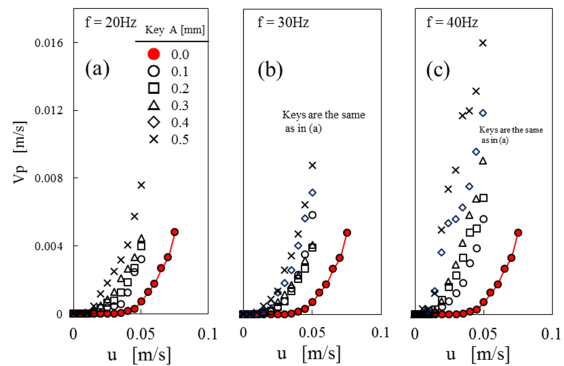


Fig. 4 Relationship between gas velocity and particle velocity for different vibration amplitudes (vibration frequency, (a) 20Hz, (b) 30Hz, (c) 40Hz)

(3) 機械的振動場が造粒過程に及ぼす影響

Fig. 1 に示したような振動付加型流動層造粒装置を製作し、振動場における造粒過程の評価、および造粒物特性に及ぼす振動付加の影響を検討した。Fig. 5 にバインダー供給速度、供給量をそれぞれ 1.0 ml/min, 40 ml, ガス流量を 200 L/min として最終的に得られた造粒物の平均サイズ d_g 及びその変動係数 CV の値を振動振幅に対して示した(振動周波数は 40Hz 一定)。振動振幅の増大に伴って造粒サイズは増加し、ある程度の振動振幅以上の条件ではわずかに減少する傾向が得られた。一方で、得られた造粒物のサイズ分布の変動係数は振動を付加した場合の方が小さくなった。これらの結果から、振動の付加により前項で示したような粒子運動の活性化が生じ、バインダー材料含有液滴と粒子との接触効率が向上し、効率的にサイズ増大が生じたものと考えられる。Fig. 6 は装置側壁観察窓

から観察・測定した粒子移動速度と操作時間の関係を示している。造粒操作では操作時間と共に流動単位である粒子サイズ(ここでは造粒サイズ)が増大するため、ガス流量一定の条件では層は徐々に流動性を失い、粒子移動速度が減少する傾向は容易に予想される。振動を付加した条件では、無振動の条件に比べより長い操作時間で高い粒子移動速度が得られており、前述の振動付加による粒子移動状態の活性化を示すと共に造粒サイズ増大の要因になっていることが示唆される結果が得られた。

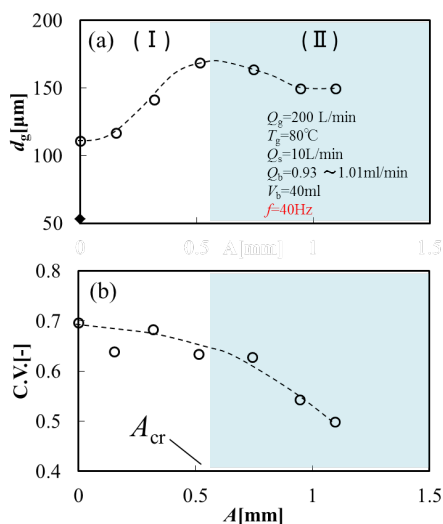


Fig. 5 Effect of vibration amplitude on (a) averaged granule size and (b) coefficient of variation for agglomerate size

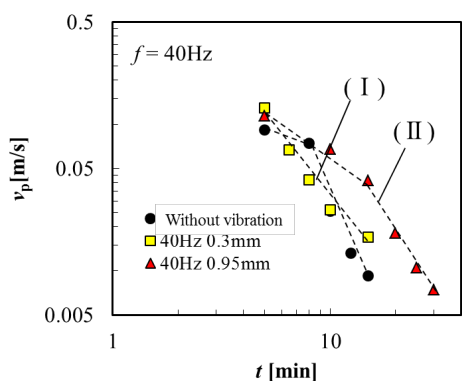


Fig. 6 Time variation of particle velocity for different vibrating conditions

5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

〔雑誌論文〕(計 1 件)

1. 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**, 945 ~ 951 (2015) (査読有), doi:10.1016/j.proeng.2015.01.216

〔学会発表〕(計 23 件)

1. 片宗光, 馬渡佳秀, 山村方人, 鹿毛浩之, "振動流動層を用いた造粒操作における操作条件が造粒特性に及ぼす影響", 第21回流動化・粒子プロセッシングシンポジウム, 北九州, Oral-16, 2015年12月11日
2. 清水良貴, 馬渡佳秀, 山村方人, 鹿毛浩之, "固気流動層内の外部振動付加による装置変位に伴う気泡サイズおよび上昇速度の変動特性", 第21回流動化・粒子プロセッシングシンポジウム, 北九州, Oral-7, 2015年12月10日
3. Yoshiki Shimizu, Yoshihide Mawatari, Masato Yamamura, Hiroyuki Kage, "Fluctuation behavior of bubble ascending velocity under vertical bed vibrating condition in a gas-solid fluidized bed", The 28th International Symposium on Chemical Engineering (ISChE 2015), Jeju, PE-12, December 4-6, 2015
4. Hikaru Katamune, Yoshihide Mawatari, Masato Yamamura, Hiroyuki Kage, "Effect of mechanical bed vibrating on granule characteristics with a fluidized bed granulator", The 28th International Symposium on Chemical Engineering (ISChE 2015), Jeju, OE-11, December 4-6, 2015
5. 清水良貴, 馬渡佳秀, 山村方人, 鹿毛浩之, "鉛直振動場における固気流動層内の気泡上昇速度の変動特性", 粉体工学会秋期研究発表会, 大阪, BP-26, 2015年10月13日
6. 片宗光, 馬渡佳秀, 山村方人, 鹿毛浩之, "流動層造粒操作への機械的振動付与の効果と造粒物の特性評価", 粉体工学会秋期研究発表会, 大阪, BP-25, 2015年10月13日
7. Yoshihide Mawatari, Satoshi Kamiuto, Masato Yamamura and Hiroyuki Kage, "Flow Pattern Transition of Bubbling Behavior in a Gas-Solid Fluidized Bed under Vertical Bed Vibrating Condition", The 6th Asian Particle Technology Symposium (APT-2014), Seoul, PO1-23, September 15-18, 2015
8. 馬渡佳秀, 小森義郎, 山村方人, 鹿毛浩之, "固気流動層における気泡流動化への状態遷移に及ぼす機械的振動付加の影響", 化学工学会 第47回秋季大会, 札幌, S116, 2015年9月9日
9. 清水良貴, 馬渡佳秀, 山村方人, 鹿毛浩之, "鉛直振動場における固気流動層内の気泡通過特性", 第52回化学関連支部合同九州大会, 北九州, CE-1-0041, 2015年6月27日
10. 馬渡佳秀, 中村領佑, 山村方人, 鹿毛浩之, "鉛直振動場において発現する微粉体

- 層内の粒子運動状態に関する研究”,粉体工学会 2015 年度春期研究発表会, 東京, S-28, 2015 年 5 月 19-20 日
11. 片宗光, 馬渡佳秀, 山村方人, 鹿毛浩之, “テーパ型流動層内の粒子移動特性に及ぼす機械的振動付加の影響”, 第 20 回流動層・粒子プロセッシングシンポジウム, 岡山, P2-2, 2014 年 12 月 11 日
 12. 清水良貴, 馬渡佳秀, 山村方人, 鹿毛浩之, “二次元流動層を用いた振動場における気泡サイズ変化”, 第 20 回流動層・粒子プロセッシングシンポジウム, 岡山, P1-2, 2014 年 12 月 11 日
 13. Satoshi Kamiuto, Yoshihide Mawatari, Masato Yamamura, Hiroyuki Kage, “Transition of flow pattern in a gas-solid fluidized bed under mechanical bed vibrating conditions”, The 27th International Symposium on Chemical Engineering (ISChE 2014), Malaysia, PE-04, December 5-7, 2014
 14. 馬渡佳秀, 山村方人, 鹿毛浩之, “機械的振動付加による微粒子の流動状態の遷移と粒子運動の効果”, 粉体工学会 2014 年度秋期研究発表会, 東京, S-8, 2014 年 11 月 26 日
 15. Yoshihide Mawatari, Ryusei Tanaka, Masato Yamamura, Hiroyuki Kage, “Effect of Mechanical Vibration on Granulation Behaviors in a Fluidized Bed”, The 4th Asian Conference on Innovative Energy & Environmental Chemical Engineering, FLD-P6, Yoesu, November 9-12, 2014
 16. 清水良貴, 馬渡佳秀, 山村方人, 鹿毛浩之, “二次元流動層を用いた振動場における気泡サイズ変化”, 化学工学会第 46 回秋季大会, 福岡, B107, 2014 年 9 月 14 日
 17. 片宗光, 馬渡佳秀, 山村方人, 鹿毛浩之, “テーパ型流動層内の粒子移動特性に及ぼす振動付加の影響”, 化学工学会第 46 回秋季大会, 福岡, A116, 2014 年 9 月 14 日
 18. Yoshihide Mawatari, Yasumasa Hamada, Masato Yamamura and Hiroyuki Kage, “Flow Pattern Transition of Fine Cohesive Powders in a Gas-Solid Fluidized Bed under Mechanical Vibrating Conditions”, The 7th World Congress on Particle Technology (WCPT7), Beijing, 904, May 19 - 22, 2014
 19. Satoshi Kamiuto, Yoshihide Mawatari, Masato Yamamura, Hiroyuki Kage, “Effect of mechanical vibration on fluidization behavior for fine particles”, The 26th International Symposium on Chemical Engineering (ISChE 2013), Pusan, PD-20, December 6-8, 2013
 20. 田中竜成, 馬渡佳秀, 本多健也, 山村方人, 鹿毛浩之, “テーパ型流動層内における粒子運動に及ぼす振動付加の影響”,

- 第 19 回流動層・粒子プロセッシングシンポジウム, 桐生, P3, 2013 年 11 月 28 日
21. Ryusei Tanaka, Yoshihide Mawatari, Masato Yamamura, Hiroyuki Kage, “Effect of mechanical bed vibration on granulation process with a tapered fluidized bed”, 2013 Joint of Japan/Taiwan/Korea Chemical Engineering Conference & Kyushu Seminar, Kumamoto, P-62, November 8-10, 2013
 22. Yoshihide Mawatari, Masato Yamamura, Hiroyuki Kage, “Agglomeration Characteristics of Fine Cohesive Particles under Mechanical Vibration in a Gas-Solid Fluidized Bed”, The 10th International Symposium on Agglomeration (Agglos10), Kobe, P1, September 2-4, 2013
 23. 上宇都智志, 馬渡佳秀, 山村方人, 鹿毛浩之, “振動付加条件下における凝集性微粒子層のガス透過特性”, 第 50 回化学関連支部合同九州大会, 北九州, 1_8.044, 2013 年 7 月 6 日

〔図書〕(計 0 件)

〔産業財産権〕
出願状況(計 0 件)

取得状況(計 0 件)

〔その他〕
ホームページ等
<http://www.ccr.kyutech.ac.jp/professors/tobata/t4/t4-3/entry-515.html>

<http://www.che.kyutech.ac.jp/chem21/data04.html>

6. 研究組織

(1) 研究代表者

馬渡 佳秀 (MAWATARI, Yoshihide)
九州工業大学
大学院工学研究院物質工学研究系・助教
研究者番号: 70380722