

粉体粒子の球状化・造粒・複合化を可能にする装置（NSM）の開発

Development of a Device called NSM enabling Spheroidization, Agglomeration and Surface Coating for Powder Particles

江口 拓伸 Hironobu Eguchi（素材・プロセス開発部/北九州研究所/研究員）

小野 和博 Kazuhiro Ono（素材・プロセス開発部/北九州研究所/主任研究員）

要旨

本稿では、弊社が開発した粉体粒子の球形化、造粒、複合化を可能にする新しいタイプの高速攪拌型粒子球状化装置「NSM」を紹介する。NSMは、Natural Graphite Spheroidization Machineの略語であり、当初の目標は、黒鉛粉体粒子の不規則な板状形状を球状化することであった。黒鉛粉体は、粉砕で製造されるが、へき開性由来により粉砕物（粉体）の粒子形状は不規則であり、それを何らかの方法で球状化できれば、粉体粒子充填構造が密になり、導電性等が向上するなど粉体特性の改善が期待できるからである。開発グループは、装置の基本構造を縦型の粉体処理容器とし、その底面中央に高速回転できる攪拌翼を設置する構造とした。容器に黒鉛粉体を投入して装置運転した結果、黒鉛の粒子形状が球状化できることを確認した。また、黒鉛粉体に対してバインダーを添加してNSMを運転したところ、黒鉛粉体が適度な粒子径の造粒体を形成し、その粉体のタップ密度が向上することも明確にした。さらに、例としてポリエチレン樹脂（PE）粉体（粒子径：100～200 μm ）と黒鉛粉体（平均粒子径＝約8 μm ）をNSMで処理すると、PE粒子表面が黒鉛微粒子で被覆（コーティング）されることも確認している。

NSMは、前記のとおり、黒鉛の球状化のための装置であるが、その後実施した多数の実験から、その能力が、黒鉛に留まることなく他の粉体に対しても発揮できる可能性が高い。粉体加工装置NSMが粉体を取り扱う産業分野で活用されること願っている。

Keywords: 球形化、造粒、複合化、タップ密度

1. はじめに

弊社では、粒子形状制御装置として、攪拌転動コーティング・複合化・混合造粒機のニューグラマシ「SEG」を開発している。この装置は、単純な構造と簡便な操作性ながらも粉体のコーティング、複合化や混合・分散・造粒などをワンステップで達成できるもので、容量も、1Lのラボサイズから数千Lの大型機までラインアップされているため、多くの分野で利用されている。しかし、近年、地球環境保全、資源の有効利用、脱炭素化など地球規模での材料に対する変革を背景として、例えば、粉体材料が多く用いられる電子機器についても、部品の小型高性能化が一層進展し、それに伴い、粉体粒子の微小化と粒子形状の制御・加工技術に対して高い要望が寄せられるようになり、SEGより微粒子域で対応可能な装置開発が課題になった。目指す粉体粒子サイズの下限は、数nm～数 μm あり、それに合致する微粒子粉体の高度な処理を可能にする微粒子形状制御処理装置の開発である。もちろん、これまでの粉砕粒子サイズに対する処理技術も必須であり続けることは言うまでもないが、SEGの能力だけでは対処

できないような微粒子加工の要求が増えていることを十分認識した戦略を立てる必要があった。そこで弊社では、SEGの特徴を活かしつつ、よりハイパワーかつより繊細な粒子形状・加工ができる装置として、高速攪拌型粒子球状化装置「NSM」の開発に着手し、これまで、標準機とその発展形である改良機の開発を行っている。

当初の目標は、黒鉛粉体粒子の不規則な板状形状を球状化することであった。粉砕で生成した黒鉛粉体の粒子形状は、へき開性由来により不規則であり、それを何らかの方法で球状化できれば、黒鉛粉体を充填した場合、粒子充填構造が密になり、導電性等が向上するなど特性の改善が期待できるからである。本機開発によって微小な黒鉛粉体粒子が球状化されることが判明し、また、社内試験や顧客との共同研究などを通じてNSMは黒鉛粒子の球状化以外にも、異種材料の複合化、造粒、コーティング、その他、機械的応力の作用で発現する様々なメカノケミカル処理なども可能であることが判明している。粉体粒子の形状制御は、充填密度の向上の他、流動性の改善、等方性の付与・配向制御、反応性制御・改善、スラリーとした場合の粘度特性の制御などにも密接に関連する。また、微

粒子表面への異種粒子のコーティングも表面での溶解性や機能性付与あるいは制御などの観点で極めて重要である。

そこで、以下にはNSMをより多く知っていただくために、装置構造、ラインアップを紹介するとともに、その性能として、黒鉛粉体を用いた場合の粒子の球状化、造粒、ポリエチレン粒子表面への微粒子コーティングなどの実施例を記すこととする。これによってNSMが、粉体加工に携わる多くの技術者・研究者の皆様のご要望にお応えできるものと期待している。

2. NSM（粒子形状制御装置）

2.1 装置の基本構造

図1には、NSMの構造と攪拌機（標準型ローター）の回転による容器内粉体の動きの概要を示す。すなわち、外観はミキサー等の一般的な回転処理機器と同様で、架台の上にモーターと円筒型容器（粉体処理槽）が載っており、モーターの回転をベルトとプーリーを介して本体のローター回転軸に伝え、その軸に固定されたローターが回転して槽内部の粉体を攪拌して目的の粒子球状化処理を行う機構である。NSMの最大の特徴は、粉体処理槽が円筒型容器内の底面にローターが付いているだけ、というシンプルな構造である点であり、産物回収、その後の容器内清掃などが容易である。この点、他社の類似装置内部には、例えば、チョッパー、邪魔板、固定刃、循環機構、分級ローター等が設置されている場合が多いのと対照的である。なお、装置構造はシンプルであるという点については、弊社のSEGも同様であるが、NSMのSEGには無い特徴は、ローターの回転速度および形状である。すなわち、NSMのローター先端周速は、SEGの3~4倍大きい設計となっており、最大80m/sである。もちろん、NSMでは攪拌機（ローター）の高速回転に伴い軸構造やモーターをそれ

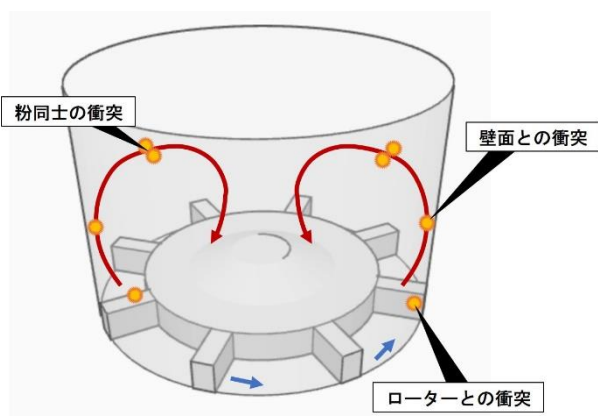


図1 標NSMの概略構造（bird-view）と攪拌機（標準型ローター）の回転による容器内粉体の動き
 に対応できる能力のものとした。また、NSMの標準型ローターの形状は、その回転時に舞い上がる粉体を、下方へ、

そして外側へ押しやるに適したように工夫されている。この工夫によって容器内粉体粒子には強いせん断力と圧縮力が作用し、そのため粉体粒子群は槽内上部外周側に巻き上がるが、ローターの回転力で粒子同士が効果的に接触を繰り返し、相互に擦りあわされる運動をしながらローター中心方向に向かって落下するという運動を繰り返す。この粉体粒子の運動は、ローターの形状と回転速度に依存し、まず、ローターの回転によって粉体は、①槽内壁とローター先端部との間隙部へ押しやられ→②その間隙部で旋回・せん断作用を受け→③遠心力の作用で容器外周を旋回しながら上昇して上部蓋の中央に向かい→④ローターの回転中心に向かって落下→⑤再び底面外周側へという循環運動を繰り返す。その循環・衝突運動過程で、粒子はせん断や圧縮などの力を受けて形状を球状化していく。

図2には、図1に示した標準型ローターに対して、より効果的な球状化性能を示すL字型形状の攪拌翼を設置したNSMの構造概略図を示す。このL字型のローターでは、開発グループの多くの経験とDEMシミュレーション結果から、前記した①~⑤までの粉体粒子の容器内移動過程での作用力をより効果的になるようにしたものである。すなわち、ローター回転運動で巻き上げられた粉体が容器内の上方に飛散してから落下するまでの滞留時間を減らし、せん断力などが効率的に粉体に作用させるようにしたものである。したがって、L字型を用いると、標準型よりも短時間で粒子の球状化が達成可能になる。

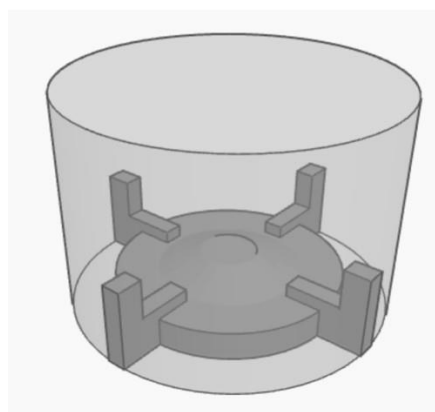


図2 L字型ローター形状を備えたNSMの構造概略図

2.2 NSMの現状のラインアップ

図3には、現在弊社で用意できる大きさの異なる3種類のNSMの外観写真を示す。また、表1には、これら3種類（200型、350型、1000型）のNSMの概略寸法、容量などと、動力やローター回転速度の最大値などを纏めて示す。



図3 3種類のNSMの外観写真

表1 NSM 型式及び仕様

型式	NSM-200	NSM-350	NSM-1000
槽内径(mm)	φ200	φ350	φ1000
全容量(L)	4	22.5	550
重量(kg)	466	600	2800
動力(kW)	11	22	90
参考仕込量(kg)*	0.5	2.5	20
回転速度(rpm)	~8000	~4500	~1700

* 投入する粉体の物性や加工内容により変動します。

3. NSM による実施例

以下には、実施例を紹介するが、用いた装置は全て NSM-350 型である。なお、試料は各項目で説明することとする。

3.1 NSM による黒鉛粉体粒子の球状化（バインダー無し）

図4は、天然黒鉛粉体を NSM-350 型で処理した場合の処理前後における粒子の SEM 写真を示す。これより処理前の黒鉛粒子の形状が鱗片状になっているが、処理後はその形状が球状化していることが明確にわかる。なお、写真の画像中の x300、x500 は倍率であるが、処理後の写真の倍率は処理前より高いのは、処理によって粒子の球状化の状態を見やすくしたためである。

ここで、NSM で粉体粒子を球状化するときの機構について考察する。もちろん、まだ不明な点は多くあるが、これまでの種々の材料に対する NSM による処理試験、装置内部の可視化、DEM シミュレーションによる

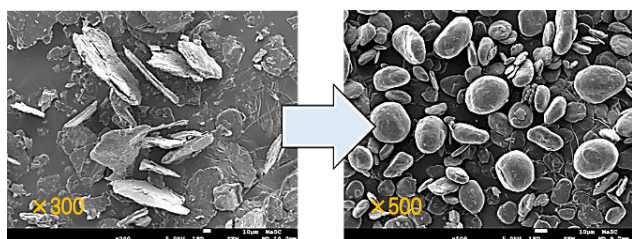


図4 黒鉛粒子の NSM-350 型による球状化前後の SEM 写真の例（左：処理前、右：処理後）

検討結果、そしてそれらを踏まえた実粉での処理の経験から推測される粒子球状化のプロセスを考察すると以下のようである。まず、装置内の粒子には、角取り、折り曲げ、圧縮などの力が加えられる。それらの力はローターから直接受けるものと、装置内壁との接触によるもの、そして粉体粒子同士が衝突することによって生じるものの総合的結果と考えられる。ただし、材料の物性や運転条件によって、どの力が優先的に作用するかは異なることは言うまでもない。たとえば、処理物が軟らかい粒子であれば、折り曲げ、貼り合わせ、圧縮などが作用して塑性変形しながら徐々に球状化が進行するであろう。一方、それとは対比的に、硬くて脆い粒子であれば、折り曲げや圧縮での変形は少なく、粒子表面でのせん断・摩擦による表面破壊と繰り返し応力の作用で粒子内部にマイクロクラックが発生し、そこに塑性変形ひずみエネルギーが蓄積されて延性破壊が進行して球状化するものと考えている。これらの考察の検証例として図5には柔らかい材料の代表としてフッ素樹脂（PTFE）の破碎粉を NSM で処理した粒子の SEM 写真を示す。また、脆い材料である黒鉛について NSM で処理した場合の結果は、既に図4に示したので、参照いただきたいが、別の条件での結果としては図6には処理過程での粒子表面でのせん断力による粉砕の進行結果と思われる球状化の状況を示す。これらの写真からも柔らかい材料の樹脂や硬い材料の黒鉛共に、NSM による処理によって粒子形状が球状化することが確認できる。

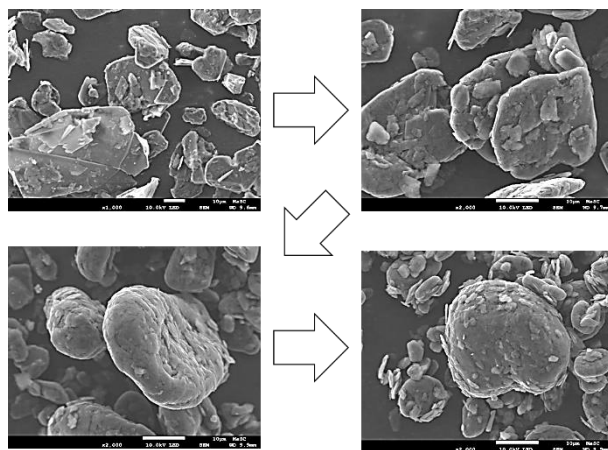


図5 フッ素樹脂（PTFE）破碎粉の NSM-350 型による処理前後の粒子形状の SEM 写真

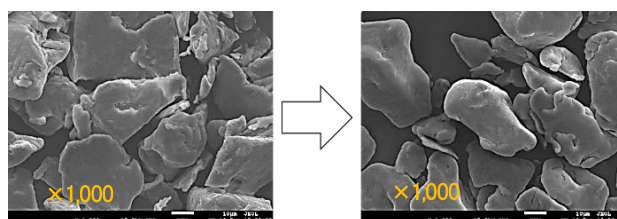


図6 黒鉛粒子の NSM-350 型による処理前後での粒子形状の SEM 写真

図7には、黒鉛粒子 (D50:20 μ m 程度) に対して、他社装置を用いた場合の粒子の SEM 写真と NSM-350 型により処理した粒子の SEM 写真の比較を示す。黒鉛粒子の球状化という視点では、NSM による処理では相対的に粒子表面が滑らかであり、球状化が効果的であるように思われる。なお、これら2つの装置による球状化粒子粉体のタップ密度の測定結果は、以下のとおりである。

他社製装置による

球状化黒鉛粒子のタップ密度 =0.97g/cc

NSMによる

球状化黒鉛粒子のタップ密度 =1.18g/cc

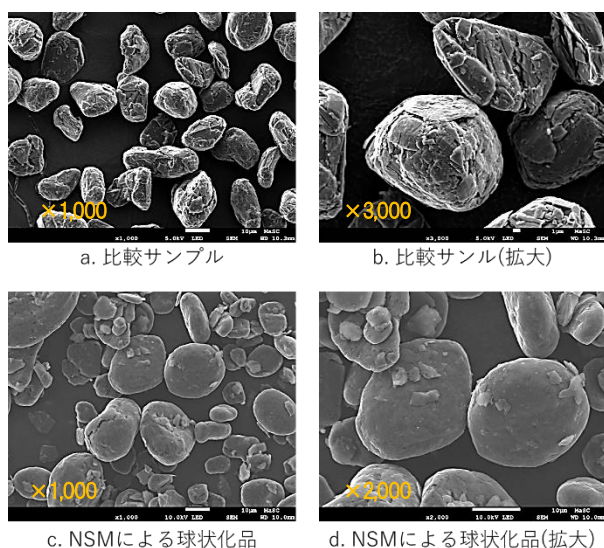


図7 黒鉛粒子を用いた比較サンプル a, b (他社製品による球状化処理) と NSM-350 型による黒鉛の球状化品 c, d の SEM 写真による比較 (出発試料の 50% 粒子径 D50=20 μ m 程度)

ここで、NSM による黒鉛の球状化処理において、タップ密度を測定したが、それは、天然黒鉛を二次電池の負極材として利用する場合の重要な基礎データになるからである。すなわち、黒鉛粉末を粉碎した粒子の形状は、鱗片状・不規則形状であり、そのまま使用されることはなく、粉碎・分級して粒子径が 10~20 μ m に整粒すること、その上で、何らかの方法で粒子形状を球状化することが望ましい。この時の粒子の球状化の目的は、タップ密度の向上、黒鉛粒子の電気伝導性への異方性の抑制 (等方性粉体特性に近づける) であり、これによって二次電池のエネルギー密度の向上や充放電に伴う膨張収縮の軽減などが図られるからである。現実的には、黒鉛の粉碎は、ピンミルやジェットミルなどが用いられ、平均粒子径を 10 μ m 前後とした後、球状化処理して分級するのが一般的であるが、全体の処理コスト低減、歩留まりを高く維持する上で、粉碎工程を取り入れるか否か判断が分かれることがある。但し、ここでは、黒鉛原料粉体を一旦粉碎し、その後に球状化処理してから分級した場合の結果を以下に紹介する。

すなわち、黒鉛原料を弊社の機械式粉碎機で粉碎し、平均径を約 12 μ m とし。それを NSM で球形化処理し、その後に分級した場合のそれぞれの粉体粒子の形状の SEM 写真を図8に、また、それら粉体の粒子径分布を図9にそれぞれ示す。さらに、黒鉛原料粉体、その粉碎物並びに球状化処理した粉体を分級機で整粒した粉体のそれぞれの平均粒子径 (D50[μ m])、タップ充填密度[g/cc]の測定結果を表2に示す。

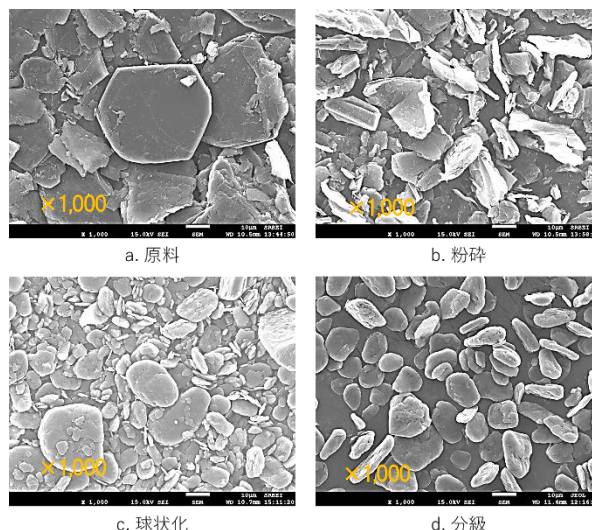


図8 黒鉛原料(a)、その粉碎産物(b)、(b)の NSM による球状化処理後の粒子群(c)、(c)を分級・整粒した産物(d)のそれぞれの SEM 画像

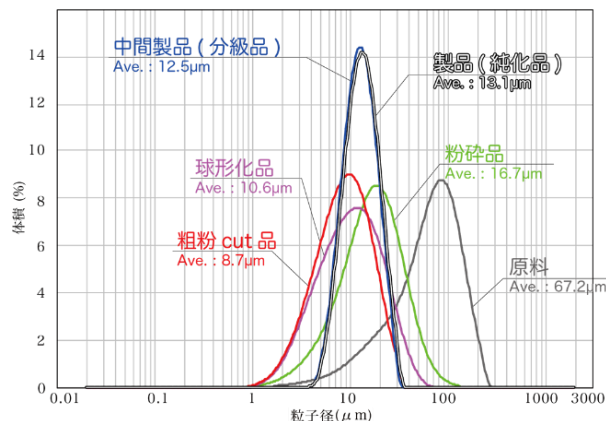


図9 黒鉛の粉碎、球状化、分級による粒度分布変化

表2 黒鉛の粉碎、球状化、分級による物性変化

工程	D50 [μm]	タップ密度 [g/cc]
原料	67.2	0.90
粉碎	16.7	0.52
球状化	10.6	0.88
分級 ①	8.7	0.78
分級 ②	12.5	1.06

これらの結果より、粉碎物のタップ密度（0.52g/cc）に比較して球状化処理では0.88g/ccと大きくなり、また、その分級操作による分級点でタップ密度の値は変化するが、微粉をカット（除去）することでタップ密度がさらに向上する結果となることが分かる。

3.2 NSM による黒鉛粉体にバインダー添加した場合の粒子の球状化

次に、黒鉛原料粉体に対して、機械的粉碎操作をせず、そのまま NSM-350 型で処理する場合、この球状化処理においてバインダーを添加した場合の結果を紹介する。原料の粉碎工程では、粉体の生成という点ではメリットはあるが、微粉の生成により製品収率が低くなるという課題がある。そこで、粉碎工程を省略することで、全体のコスト低減を図れること、また、球状化装置では原料の粉碎も行われることから、ここでは、原料粉体（平均径=150 μm 程度）をそのまま NSM に投入して球状化処理することとし、この処理後にバインダーを混合して以下の球状化処理を行った。その時の原料、NSM による球状化、その後、水系並びに高分子系のバインダーを添加して NSM による追加の球状化処理を行った場合のそれぞれの段階での粉体の 50% 粒子径（D50）とタップ密度の測定値を表 3 に示す。特筆すべきは、NSM による球状化処理では、黒鉛原料の粉碎と粒子の球状化が同時に進んだ証拠として、粒子径が小さくなったにも関わらずタップ密度が粉碎前より大きくなっていることである。このことは、先に示した表 2 の結果からもわかるように、黒鉛の粉碎では、粒子径が小さくなるとタップ密度は小さくなることからご理解いただけるものと思う。したがって、NSM は原料の粉碎と粒子の球状化の二つが同時進行し、あるいはその過程で生成する微粉が凝集して目的とした粒子径範囲の量が増加するという可能性も秘めているのである。このときの原料および各処理品の SEM 画像を図 10 に示す。この図の b より、NSM 処理においては粒子には丸みと厚みが生じていることがわかり、この処理過程で微粒子の造粒効果が発揮されているといえる。さらに、図 10 の c は水系のバインダーを用いて球状化した場合、d は高分子系のバインダーを用いて球状化処理した場合のそれぞれ

の粒子画像であり、バインダーの種類によっても球状化粒子の外観や物性が異なることがわかる。

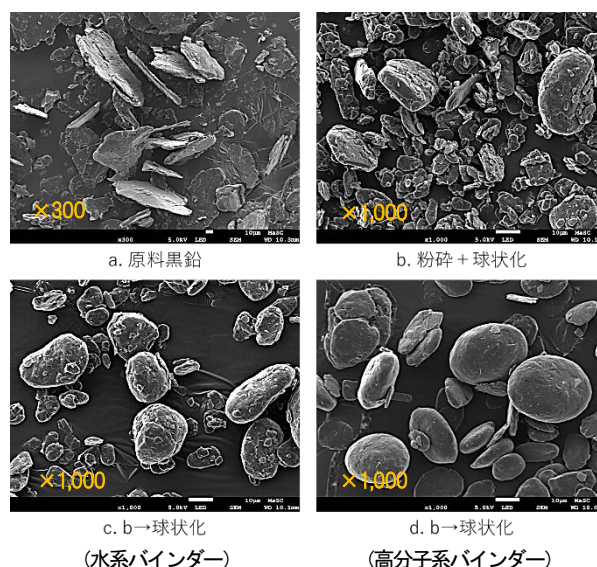


図 10 天然黒鉛原料粉体 a、それを NSM で球状化処理後の試料 b、さらに b の試料に水系バインダー添加して球状化処理 c、b に高分子系バインダー添加して球状化処理 d の各試料の SEM 画像

3.3 NSM による黒鉛粉体の造粒

天然黒鉛を造粒する目的は、流動性の向上、ハンドリング性の改善、異方性黒鉛に等方性を付与する等である。ここでは、薄片状の黒鉛粉体粒子を NSM で処理すると造粒できる例を示す。

黒鉛原料粉体の平均粒子径は 17 μm であるが、薄片化処理されているためタップ密度は 0.14g/cc と低い。この原料粉体に対して、NSM-350 型を用いて、種々のバインダーおよびローター回転条件によって造粒した結果を表 4 に示す。加工条件を変更することで、約 50~200 μm で造粒品の粒子径を調整することができる。

図 11 には黒鉛造粒品の SEM 画像を示すが、この粒子形状は、3.1~3.2 項で紹介した黒鉛の球状化品と異なり、特に、造粒品は球状化品に比較して粒子の厚みが増しているようであり、より球体に近づいているように見える。その一方で、球状品に比較して表面の平滑性が無い。

表 3 黒鉛原料粉体とそれを NSM による球状化処理、更にバインダー添加で球状化処理したそれぞれの場合の D50 とタップ密度

工程	D50 [μm]	タップ密度 [g/cc]
100 mesh 原料	59.5	0.80
粉碎+球状化	9.7	1.05
再球状化 (水系)	12.4	1.12
再球状化 (高分子系)	23.2	1.21

表 4 薄片状黒鉛の造粒による物性変化

工程	D50 [μm]	タップ密度 [g/cc]
原料	17	0.14
造粒 条件 1	46	0.58
造粒 条件 2	157	0.63
造粒 条件 3	201	0.78
造粒 条件 4	133	0.62

さらに、正確には粒子密度を測定する必要があるが、SEM画像から粒子の密度が低くなっているようにも見える。なお、ここに示した結果は、最適条件でのデータではないことを付記する。いずれにしても、NSMは、運転条件はローター回転速度が主であり、その他は、容器に対する原料投入量で球状化や造粒条件が決定でき、このような加工処理条件によって様々な粒子形状の製品を製造できる。

後は、力の掛かり難い窪み部分には少し残ってはいるものの、黒鉛粒子が見えなくなっており、PE粒子表面に埋め込まれたものと考えられる。

図13に示した複合化前後の粒子径分布を見ると、複合化後は黒鉛由来のピークが消滅している。このことから、黒鉛微粒子はPE粒子表面に固定化されたことが確認できる。

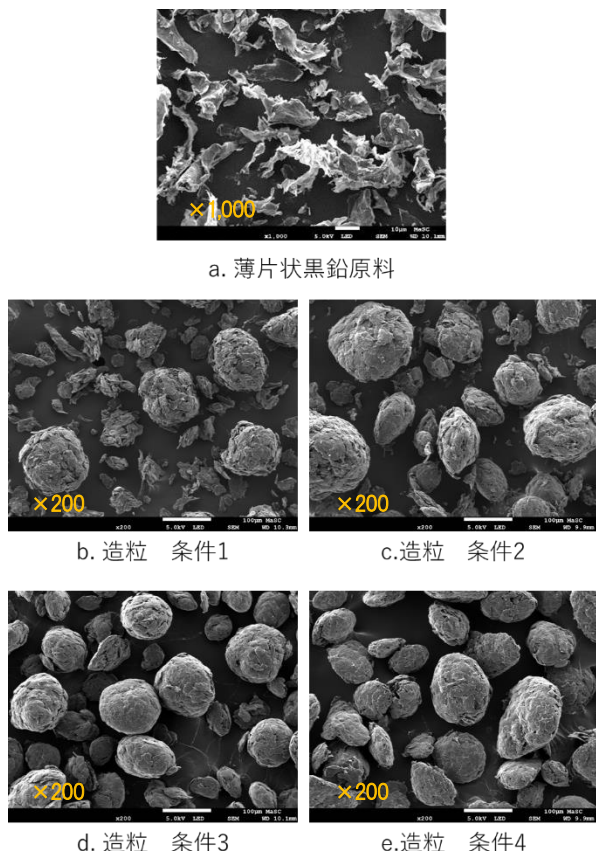


図11 黒鉛粉体（薄片状粒子）原料a、そのNSM-350型による造粒処理品（処理条件1～4）b～eのSEM画像

3.4 樹脂粉体の黒鉛微粒子によるコーティング（粒子設計）

「黒鉛のコーティング」では、黒鉛粒子表面を他の物質の微粒子で被覆（コーティング）する場合と、その逆の被覆の場合の二種類がある。後者の場合、黒鉛が他粒子表面をコーティングする目的は、コーティング後の粒子は導電性や熱伝導性、滑り性が付与されることになる。ここでは、ポリエチレン（PE）樹脂粉末を天然黒鉛微粒子でコーティングした例を紹介する。

図12に平均粒子径100~200 μm のPE粉体粒子の表面を、平均粒子径約8 μm の黒鉛粒子で被覆・複合化したときのSEM画像を示す。複合化処理装置はNSM-350型である。この図より、複合化前はPE粒子表面に黒鉛の鱗片状粒子が多く付着している様子が確認できるが、複合化

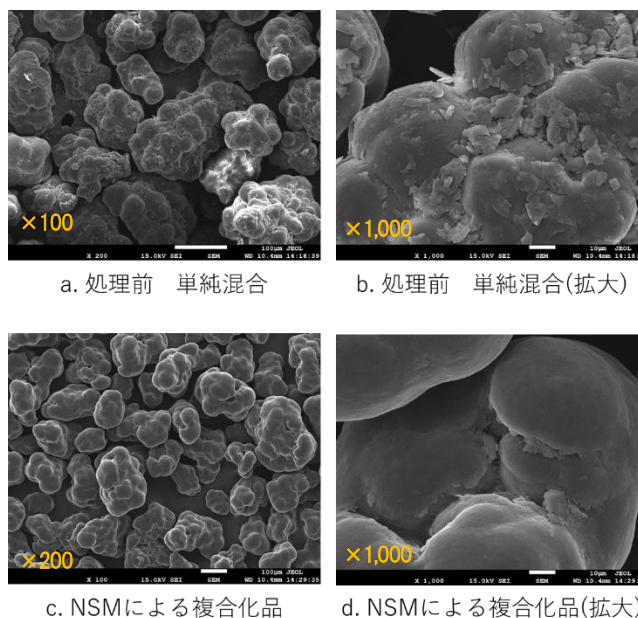


図12 PE粒子と黒鉛微粒子の単純混合品a、bとNSM-350型による複合化処理品c、dのSEM画像

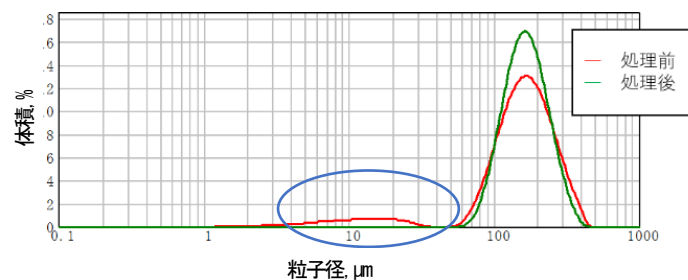


図13 PE粒子と黒鉛微粒子の複合化前後の粒子径分布

ここでは粒子径が比較的大きいPE粒子（母粒子）と、微粒子黒鉛粒子（子粒子）との複合化の例を紹介したが、母粒子と子粒子の粒径がさらに小さい場合、例えば、粒子径数 μm の母材粒子にサブミクロン～ナノサイズの子粒子を複合化させる場合、NSMを用いると達成可能である。その証として、平均粒子径3 μm のポリプロピレン（PP）粒子と一次粒子径20nmのカーボンブラックをNSMで複合化した結果の処理物のSEM画像を図14に示す。図より、複合化後の粒子表面はカーボンブラック微粒子が均一に近い状態でPP粒子表面を被覆している様子が分かる。

4. むすび

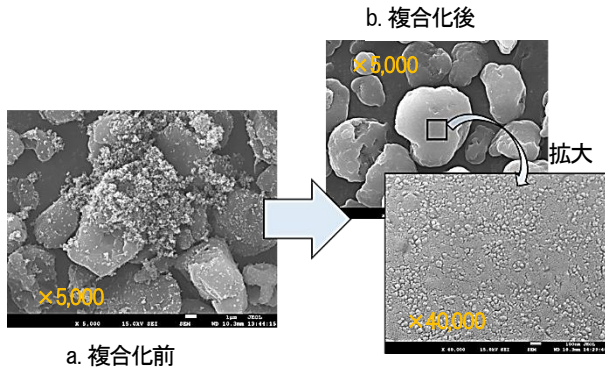


図 14 平均粒子径 $3\mu\text{m}$ の PP 粒子と粒子径 20nm のカーボンブラックとの NSM による複合化処理物の SEM 画像

NSM は様々な材料を処理することができる装置である。ここでは黒鉛という材料に着目し、それを NSM で処理すると、黒鉛粒子が球状化し、あるいは造粒現象を起こすことなどを紹介した。天然黒鉛は、鉛筆の芯としての利用はもちろん、近年は、特に二次電池の負極、導電助剤、電子機器の放熱材としての利用が増大しているし、さらに、グラフェンの原料等として活用も期待されている。

その他の材料の NSM 処理についても、機密保持や紙面の関係で全て紹介できないが、当社のリストによると NSM シリーズを用いたテストは 50 社以上、60 種以上の材料で実績があり、テスト点数は 1000 回を超える。我々はこの技術をもっと広く社会で役立てたいと考えており、現行の 3 機種の高性能化や商品改良はもちろんのこと、研究機関向けのラボ機的设计や中～大型生産機の開発も検討している。今後の産業界がどのように変遷していても即座に対応でき、末永く愛される NSM であり続けるよう努めていきたいと考えている。

NSM に関しましては、下記もご参照ください。

<https://www.betterseishin.co.jp/product/plant/nsm/>

内容の一部あるいは全部をいかなる方法によっても無断で複写・複製することをご遠慮ください。