

(19) 世界知的所有権機関
国際事務局



(43) 国際公開日
2005 年 12 月 8 日 (08.12.2005)

PCT

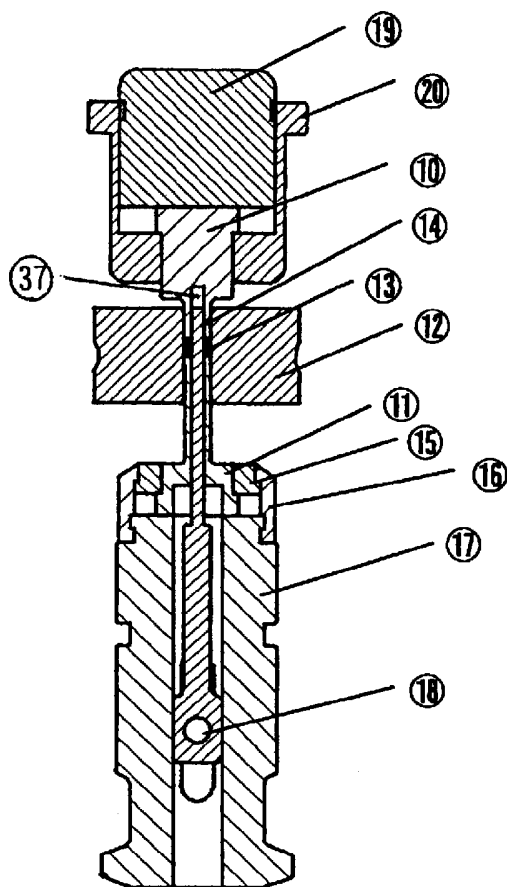
(10) 国際公開番号
WO 2005/115733 A1

- (51) 国際特許分類⁷: B30B 11/08, (71) 出願人 (米国を除く全ての指定国について): 三菱化学株式会社 (MITSUBISHI CHEMICAL CORPORATION) [JP/JP]; 〒1080014 東京都港区芝五丁目 3 3 番 8 号 Tokyo (JP).
- (21) 国際出願番号: PCT/JP2004/014392
- (22) 国際出願日: 2004 年 9 月 30 日 (30.09.2004) (72) 発明者; および (75) 発明者/出願人 (米国についてのみ): 田澤 和治 (TAZAWA, Kazuharu) [JP/JP]; 〒5100848 三重県四日市市東邦町 1 番地 三菱化学株式会社内 Mie (JP). 前田 敦央 (MAEDA, Atsuhisa) [JP/JP]; 〒5100848 三重県四日市市東邦町 1 番地 三菱化学株式会社内 Mie (JP).
- (25) 国際出願の言語: 日本語
- (26) 国際公開の言語: 日本語
- (30) 優先権データ: 特願2004-156474 2004 年 5 月 26 日 (26.05.2004) JP (74) 代理人: 泉名 謙治, 外 (SENMYO, Kenji et al.); 〒1010042 東京都千代田区神田東松下町 3 8 番地 鳥本鋼業ビル Tokyo (JP).

/ 続葉有 /

(54) Title: TABLET MAKING METHOD FOR CYLINDRICAL TABLET

(54) 発明の名称: 円筒錠の打錠方法



(57) Abstract: A tablet making method for a cylindrical tablet capable of preventing crazing from occurring in the tablet and a center lever from being broken. In the method, a rotary powder compression-molding machine is used to make the cylindrical tablet. The machine is formed in such a manner that a mill (12) and upper and lower levers (10) and (11) fitted to a rotary disk are passed through a clearance between upper and lower pressing rolls according to the rotation of the rotary disk to axially move the upper and lower levers by these pressing rolls so as to compression-mold a powder filled in the mill. The center lever passed through the tip of the lower lever and vertically installed in the sliding direction of the lower lever and a center hole drilled at the tip horizontal center of the upper lever and in which the center lever is inserted in compression molding are installed and formed at the tip horizontal center of the lower lever. The tablet is made by using the center lever in which a difference between the minimum diameter of the portion of the center lever forming the center hole of the cylindrical tablet and a reference dimensional diameter in the design of the portion is within 0.04 mm.

(57) 要約: ヒビ発生の防止と中心杵の折損を防止できる円筒錠の打錠方法を提供する。回転盤に取り付けられた臼 12 及び上下杵 10、11 を、前記回転盤の回転に伴って上下の加圧ロール間に通過させることにより、これら加圧ロールで前記上下の杵をそれぞれ軸線方向に移動させて、前記臼内に充填された粉末を圧縮成形するようにし、かつ前記下杵の杵先の水平方向の中央に下杵の杵先を貫通した下杵の摺動方向に立設される中心杵と、前記上杵の杵先の水平方向の中央に穿設されて圧縮成形時に該中心杵が挿入される中央穴を具備する回転式粉末圧縮成形機を用いて円筒錠を打錠する方法において、前記中心杵の円筒錠の中心孔

を成形する部位の最小径と該部位の設計における基準寸法径との差が 0.04 mm 以内である中心杵を使用して打錠する。



(81) 指定国 (表示のない限り、全ての種類の国内保護が可能): AE, AG, AL, AM, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DK, DM, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, HR, HU, ID, IL, IN, IS, KE, KG, KP, KR, KZ, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LV, MA, MD, MG, MK, MN, MW, MX, MZ, NA, NI, NO, NZ, OM, PG, PH, PL, PT, RO, RU, SC, SD, SE, SG, SK, SL, SY, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, YU, ZA, ZM, ZW.

(84) 指定国 (表示のない限り、全ての種類の広域保護が可能): ARIPO (BW, GH, GM, KE, LS, MW, MZ, NA, SD, SL, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), ユーラシア (AM, AZ, BY,

KG, KZ, MD, RU, TJ, TM), ヨーロッパ (AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HU, IE, IT, LU, MC, NL, PL, PT, RO, SE, SI, SK, TR), OAPI (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, ML, MR, NE, SN, TD, TG).

添付公開書類:

— 国際調査報告書

2文字コード及び他の略語については、定期発行される各PCTガゼットの巻頭に掲載されている「コードと略語のガイダンスノート」を参照。

明 細 書

円筒錠の打錠方法

技術分野

- [0001] 本発明は円筒錠の打錠方法に関し、特に円筒錠を成形する回転式成形機の中心杵の磨耗を早期に検出し、製品の不良発生と中心杵の折損を未然に防ぐ打錠方法に関する。

背景技術

- [0002] オレフィン又はターシャリーブタノールを気相接触酸化反応させて対応する不飽和アルデヒド及び／又は不飽和カルボン酸を製造する反応、又は不飽和アルデヒドを気相接触酸化反応させて対応する不飽和カルボン酸を製造する反応に使用される固定床触媒反応器は、一般的に反応ガスの流れをほぼ押し出し流れに近似できるため反応収率が高く、また逐次反応の中間生成物が高収率で得られるという長所がある。一方で、固定床の伝熱能力が低く反応熱の除去あるいは補給が十分に行われなため触媒層内の温度が不均一になり、酸化反応のように強度の発熱反応では、層内に温度ピークが生じて温度制御が困難になり、反応が暴走する危険がある。
- [0003] また、より高収率で目的生成物を得るために固体触媒粒子径をできるだけ小さくして粒子内拡散抵抗を小さくする必要がある一方、粒子径をあまり小さくすると圧力損失が大きくなり反応が暴走する危険性が高くなると共に、目的生成物が中間生成物である場合、逐次反応進行が進み、好ましくない。
- [0004] 上記のような温度ピークの発生による反応の暴走の回避や圧力損失の低減を行う目的として様々な方法が提案されている。例えば、プロピレン等を空気又は分子状酸素含有ガスにより接触気相酸化させてアクロレイン等を製造する場合、触媒の形状を円柱状ではなく円筒形状にすることにより圧力損失を抑制でき、さらに除熱効果を増大できることが開示されている(特許文献1〜3参照)。
- [0005] 従来、錠剤や電子部品等を成形するための回転式粉末圧縮成形機として、回転盤に取り付けられた臼及び上下杵を、回転盤の回転に伴って上下の加圧ロール間に通過させることにより、上下の杵をそれぞれ軸線方向に移動させて、臼内に充填され

た粉末を圧縮成形するようにしたものが知られている。このような回転式粉末圧縮成形機にあって、いわゆる円筒錠と呼ばれる中央に貫通孔を有するリング状の成形品を成形するために、下杵の杵先の中央から中心杵を突出させ、上杵の杵先の中央にその中心杵が挿入される中央穴を設けた構成のものがある。(特許文献4参照)

特許文献1:特開昭59-46132号公報

特許文献2:特公昭62-36739号公報

特許文献3:特公昭62-36740号公報

特許文献4:特開平10-29097号公報

発明の開示

発明が解決しようとする課題

[0006] しかし、図6に示すように、このような打錠成形機においては、打錠を繰り返すことで、中心杵の円筒錠が圧縮成形される部位が摩耗して緩やかな凹面を生じるため、圧縮成形時の円筒錠の孔内面は緩やかな凸面状になり、下杵を上方向に押し出すことで円筒錠を中心杵から拔出す時に、成形体にヒビが入ったり割れたりする外観不良が生じやすかった。また、中心杵の摩耗が生じると中心杵と下杵先端中央部の貫通孔との隙間が広がり、この隙間に成形粉末が詰まることにより、成形体拔出時に押し出されていた下杵を臼内に成形粉末を充填するために所定位置まで押し下げる時に、中心杵に無理な力が働いて中心杵が折損したり、下杵が所定の位置まで下がらないことで製品の重量がばらつくことがあった。そして、何回打錠を行うと摩耗が限界に達するのかが明確でないため、現状では、製品外観に不良が発生した時点で初めて摩耗と判断し、中心杵の交換を行っている。そのため中心杵交換が後手に回り、歩留まりの低下や製品品質の低下を生ずると共に、中心杵の折損で回転盤表面や臼表面を傷つけるという問題があった。

[0007] 本発明は、このような問題を解決するためになされたもので、円筒錠の成形体を得る回転式粉末成形機において、中心杵の摩耗の度合いを早期に検知し、製品の不良発生および中心杵の折損を未然に防ぐことを目的とする。

課題を解決するための手段

[0008] 本発明者らは、円筒錠の打錠成形で成形体のヒビや割れ等の外観不良および中

中心杵の折損の発生状況について鋭意検討した結果、中心杵の摩耗の進行度合いが成形体の外観不良発生状況に大きく影響することを見出した。すなわち、中心杵の円筒錠の中心孔を成形する部位が摩耗によって、当該部位の設計における基準寸法径と当該部位の最小径との差が0.04mmより大きくなった中心杵を使用すると、成形体の外観不良が発生するとともに中心杵の折損発生が増加することを見出した。

[0009] 本発明は、このような知見に基づいて得られたもので、摩耗した中心杵を当該部位の設計における基準寸法径と中心杵の円筒錠の中心孔を成形する部位の最小径との差が0.04mm以内である中心杵と交換して打錠することで、製品の不良発生および中心杵の折損を未然に防ぐことができる、次の円筒錠の打錠方法を提供する。

(1) 回転盤に取り付けられた臼及び上下杵を、前記回転盤の回転に伴って上下の加圧ロール間に通過させることにより、これら加圧ロールで前記上下の杵をそれぞれ軸線方向に移動させて、前記臼内に充填された粉末を圧縮成形するようにし、かつ前記下杵の杵先の水平方向の中央に下杵の杵先を貫通した下杵の摺動方向に立設される中心杵と、前記上杵の杵先の水平方向の中央に穿設されて圧縮成形時に該中心杵が挿入される中央穴とを具備する回転式粉末圧縮成形機を用いて円筒錠を打錠する方法において、前記中心杵の円筒錠の中心孔を成形する部位の最小径と該部位の設計における基準寸法径との差が0.04mm以内である中心杵を使用して打錠することを特徴とする円筒錠の打錠方法。

(2) 前記中心杵の円筒錠の中心孔を成形する部位の使用前の径と打錠を行った後の該部位の最小径との差と打錠数とを基準とする検量線を作成し、前記部位の設計における基準寸法径と前記最小径との差が、該部位の摩耗により0.04mmより大きくなる打錠数を前記検量線より打錠前に予測し、打錠を開始してからの打錠数が前記予測された打錠数に達する前に、中心杵の円筒錠の中心孔を成形する部位の最小径を測定して、前記基準寸法径と該最小径との差が0.04mm以内になるよう中心杵を交換管理することを特徴とする上記(1)に記載の円筒錠の打錠方法。

(3) 前記上下の加圧ロールのいずれか一方からの打錠圧力を検出するセンサにより検出された打錠圧力が、前記回転盤一周分の杵毎の打錠圧力から打錠圧力の平均

値および標準偏差を算出し、該標準偏差に2〜5である係数を乗じた値を上記平均値から差し引いた値より小さい場合において、前記中心杵の円筒錠の中心孔を成形する部位の最小径を測定して、前記基準寸法径と該最小径との差が0.04mm以内になるよう中心杵を交換することを特徴とする上記(1)又は(2)に記載の円筒錠の打錠方法。

(4) 中心杵の円筒錠の中心孔を成形する部位の最小径を、最小読み取り値0.01mm以下である非接触型測定機器で精密に測定することを特徴とする上記(1)〜(3)のいずれかに記載の円筒錠の打錠方法。

(5) オレフィン又はターシャリーブタノールを気相接触酸化反応させて対応する不飽和アルデヒド及び／又は不飽和カルボン酸を製造する反応に用いられる、モリブデンを主体とする下記の式(1)を有する複合酸化物触媒を円筒形状に打錠する上記(1)〜(4)のいずれかの円筒錠の打錠方法。



(式中、Xは、Na、K、Rb、Cs及びTlからなる群から選ばれる少なくとも1種の元素を示し、Yは、B、P、As及びWからなる群から選ばれる少なくとも1種の元素を示し、Zは、Mg、Ca、Zn、Ce及びSmからなる群から選ばれる少なくとも1種の元素を示し、Qは、ハロゲン原子を示し、aからkはそれぞれの元素の原子比を示し、 $a=12$ のとき、 $0.5 \leq b \leq 7$ 、 $0 \leq c \leq 10$ 、 $0 \leq d \leq 10$ 、 $1 \leq c+d \leq 10$ 、 $0.05 \leq e \leq 3$ 、 $0.0005 \leq f \leq 3$ 、 $0 \leq g \leq 3$ 、 $0 \leq h \leq 1$ 、 $0 \leq i \leq 0.5$ 、 $0 \leq j \leq 40$ 、であり、また、kは他の元素の酸化状態を満足させる数値である。)

(6) 不飽和アルデヒドを気相接触酸化反応させて対応する不飽和カルボン酸を製造する反応に用いられる、モリブデンを主体とする下記の式(2)を有する複合酸化物触媒を円筒形状に打錠する上記(1)〜(4)のいずれかに記載の円筒錠の打錠方法。



(式中、Xは、W及びNbからなる群から選ばれる少なくとも1種の元素を示し、Yは、Fe、Co、Ni、及びBiからなる群から選ばれる少なくとも1種の元素を示し、ZはTi、Zr、Ce、Cr、Mn及びSbからなる群より選ばれた少なくとも1種の元素を示す。a、b、c、d、e、f及びgは各元素の原子比を表わし、 $a=12$ のとき、 $1 \leq b \leq 12$ 、 $0 \leq c \leq 6$ 、 $0 \leq d \leq 12$ 、 $0 \leq e \leq 100$ 、 $0 \leq f \leq 100$ であり、また、gは前記各成分の原子価を満足するのに必要な酸素原子数である。)

(7)前記複合酸化物触媒が、外径が3〜10mm、長さが外径の0.5〜2倍、かつ内径が外径の0.1〜0.7倍となるように長さ方向に開口を有する上記(5)又は(6)に記載の円筒錠の打錠方法。

発明の効果

- [0010] 本発明によれば、円筒錠の成形体を得る回転式粉末成形機において、中心杵の円筒錠の中心孔を成形する部位の摩耗の度合いを早期に検知し、中心杵を交換管理できるので、製品の不良発生および中心杵の折損を未然に防ぐことができる。

図面の簡単な説明

- [0011] [図1]本発明の実施例1における、中心杵摩耗度合いと円筒錠のヒビ発生率の関係を示す。
- [図2]本発明の実施例2における、1杵あたりの打錠数を基準とした中心杵の摩耗度合いの検量線を示す。
- [図3]本発明の好ましい実施形態の回転式打錠成形機の平面概略図を示す。
- [図4]図3の回転式打錠成形機の側面概略展開図を示す。
- [図5]本発明の好ましい実施形態の円筒錠を成形する部位の一例を示す。
- [図6]図5における摩耗した中心杵で打錠した時の成形体の状況を示した模式図である。
- [図7]本発明の好ましい実施形態の非接触型測定器の構成を示すブロック図である。

符号の説明

- [0012] 1:攪拌充填装置、2:予圧ロール、3:本圧ロール、4:スクレーパ、5:回転盤、6:下杵低下器、7:重量調節軌道、8:突上軌道、9:原料ホッパ、10:上杵、11:下杵、12:臼、13:成形体、

14: 中心杵、15: 下杵固定リング、16: 下杵ホルダーキャップ、
17: 下杵ホルダー、18: 中心杵固定ピン、19: 上杵固定キャップ、
20: 上杵ホルダー、21: 発光ダイオード、22: 拡散板、23: 絞り、
24: 投光レンズ、25: 第1レンズ、26: 絞り、27: 第2レンズ、
28: 撮像素子、29: A/D変換器、30: 画像メモリ、31: 微分器、
32: エッジ検出部、33: エッジメモリ、34: 距離計算部、
35: 画像モニタ、36: 触媒粉末、37: 中央穴、

発明を実施するための最良の形態

- [0013] 本発明の実施例について図面を参照して更に詳細に説明する。しかし、図面およびその説明は本発明を理解するためのものであって、本発明はこれら図面に限定されない。
- [0014] 本発明で使用する回転式打錠成形機は、図3および図4に示すように回転する水平円板状の回転盤5を有している。該回転盤5には、回転方向にそれぞれ等しい間隔をあけて上下方向に貫通する臼孔を有す臼12が多数設けられている。該回転盤5の各臼孔の上方向および下方向には、回転盤と共に周回移動しつつ昇降する一対の上杵10および下杵11が各臼孔に対応してそれぞれ設けられている。このような回転式打錠成形機による成形体の製造は、以下のようにして行われる。
- [0015] 充填ステージAで各臼孔内には下方から下杵11が嵌入されていて、各臼孔の下端部が下杵部により常時閉塞されている。次いで、回転盤5の回転に従動し前記下杵11が下杵下降器6上を移動することにより臼孔内を下降し、各臼孔には触媒粉末36が充填される。下杵下降器6の上面は下杵11の移動方向に下り傾斜のカム面になっていて、下杵11がこのカム面を移動すると、下杵11は臼孔内を下降する。重量調節ステージBで重量調節軌道7の上下方向の移動により臼孔内の下杵位置が調節され、回転盤上の粉末を擦切ることによって粉末の充填量が調節される。臼孔に粉末が充填されると、その粉末を圧縮成形するべく、圧縮成形ステージCで下杵11及び上杵10がそれぞれ予圧ロール2および本圧ロール3により加圧される。これにより、臼孔内にて、粉末が圧縮成形されて成形体13とされる。そして、臼孔内で成形された成形体13は、成形体拔出しステージDで下杵11が突上軌道8により上昇されて該下杵により

該臼孔外へ押し出されて、次いでスクレーパ4に衝突して回転式成形機外へ製品として取り出される。このようにして、回転盤が回転する間に、各臼孔内にて成形体が製造される。

[0016] また、本発明に係わる回転式圧縮成形機は図5に示すように、成形体13の中央に貫通孔を形成するために、下杵11の杵先の中央から中心杵14を突出させ、上杵10の杵先の中央に、突出された中心杵14の先部が挿入される中央穴37を具備している。中心杵14は下杵11の摺動方向に立設しており、中心杵固定ピン18により回転盤に固定しても良いし、図示しない中心杵軌道レール上に接している回転ころに接続されても良い。

[0017] 中心杵14の円筒錠の中心孔を成形する部位は打錠を続けると、図6に示すように、摩耗して緩やかな凹面を生じるため、圧縮成形時の円筒錠の孔内面は緩やかな凸面状になる。同図から明らかなように磨耗によって生じる前記凹面は、最も大きな圧力を受けて磨耗しやすい、中心杵の先端部から少し下がった部位に生じる。中心杵14の先端部は該摩耗部位より径が大きいので、該部位の摩耗が進行すると、下杵11を上方向に押し出して円筒錠を拔出す時に成形体13にヒビが入ったり割れたりする外観不良が生じる。

[0018] また、摩耗により中心杵14の摩耗部位と下杵先端中央部の貫通孔との隙間が広がることにより、この隙間に成形粉末が詰まり、打錠を続ける内に成形粉末が固着して下杵11の動きが悪くなる。その結果、下杵11を臼内に成形粉末を充填するために所定位置まで押し下げる時に、中心杵14に無理な力が働いて中心杵が折損したり、下杵が所定の位置まで下らないことで製品の重量がばらつくようになる。したがって、中心杵14の当該部位の摩耗の度合いを早期に検知することは円筒錠を製造する上で重要である。しかしながら、中心杵14の当該部位の摩耗度合いを検知するために、頻繁に装置を止めて中心杵の当該部位の径を測定することは、円筒錠の生産性を落とすことになり、好ましくない。

[0019] そこで、中心杵14の円筒錠の中心孔を成形する部位の使用前の径と打錠を行った後の当該部位の最小径との差と打錠数とを基準とする検量線を作成し、当該部位が摩耗により、該部位の設計における基準寸法径と前記最小径との差が0.04mmより

大きくなる打錠数を検量線から打錠前に予測し、打錠を開始してからの打錠数が前記予測された打錠数に達する前に、中心杵の円筒錠の中心孔を成形する部位の最小径を測定して、次の測定時点までに中心杵の設計における基準寸法径と当該部位の最小径との差が0.04mmより大きくなると予測される中心杵を交換することで、生産性を落とすことなく安定して円筒錠の製造を続けることができる。

[0020] また、摩耗により中心杵の摩耗部位と下杵先端中央部の貫通孔との隙間が広くなり、その隙間に成形粉末が詰まると、下杵の動きが悪くなり下杵が所定の位置まで下がらなくなるために、期待した量の粉末が臼孔に充填されなくなる。このように臼孔に所定量の粉末が充填されないと、正常なときに比べて打錠圧力が低くなる。本発明の好ましい実施形態の一つはこのことに着目し、加圧ロールのいずれか一方からの打錠圧力をセンサ(図示せず)により検出し、検出された打錠圧力が異常に低い場合に装置を停止して、下杵に挿入されている中心杵の円筒錠の中心孔を成形する部位の最小径を測定し、中心杵の設計における基準寸法径と該部位の最小径との差が0.04mmより大きい中心杵を交換することにより、早期に中心杵の摩耗の度合いを検知し、製品の不良発生および中心杵の折損を未然に防ぐことができる。

[0021] 前記の装置を停止する打錠圧力は、回転盤一周分の杵毎打錠圧力から算出した平均打錠圧力および標準偏差を元にして、平均打錠圧力から標準偏差に2〜5である係数を乗じた値を差し引いた値であり、生産性および中心杵摩耗の早期検知の面から前記係数は3〜4がより好ましい。前記係数が2より小さい場合は、装置が停止する頻度が多くなるため生産性が低下するので好ましくなく、また前記係数が5より大きい場合は中心杵の摩耗を検知するのが遅くなるため、製品の外観不良や中心杵の折損等が生じ易くなるため好ましくない。

[0022] 本発明における中心杵の円筒錠の中心孔を成形する部位の径を測定する測定機器は、最小読み取り値が0.01mm以下である測定機器であれば限定されない。前記部位の設計における基準寸法径と該部位が磨耗したときの最小径との差が0.04mm以内であることを検知するには、前記測定機器の最小読み取り値が0.01mm以下であれば良いが、摩耗状況を経時的に把握するにはより精度良く測定する必要があるため、最小読み取り値が0.005mm以下である測定装置で測定するのがより好ましい。

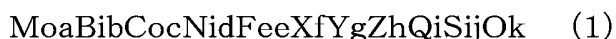
。

- [0023] また、接触型測定器であるJIS B 7507で規格化されているノギスは最小読み取り値が0.01mmであるが、「測られるものと標準尺とは測定方向において、一直線上に配置しなければならない。」というアップの原理に反する測定器であるため、測定力のかけ過ぎによる誤差が生じ易いので好ましくない。
- [0024] また、JIS B 7502で規格化されているマイクロメータは、前記アップの原理に基づいた測定器であり、最小読み取り値が0.001mmであるが、フックの法則による弾性限界内の測定力における測定物および測定機器の変位に伴う誤差や、測定面が平坦でかつその径が6mm以上である場合に適合しており、本例のように緩やかな凹面状になっている摩耗部の最小径を測定する場合には、測定点と測定器の間に隙間が生じて多少大きな値を示すことから測定器として好ましくない。
- [0025] 一方、非接触型の測定機器は、接触型測定機器に見られるフックの法則による弾性限界内の測定力における測定物および測定機器の変位に伴う誤差が生じず、また、近年の画像処理技術あるいは画像計測技術の進歩により物体の各部の長さ、角度、距離、形状等を精度よく測定できるようになっているため好ましい。
- [0026] 図7に非接触型測定機器の一例を示す。光源として発光ダイオード21を有し、発光ダイオード21から出射された光は拡散板22により拡散され、拡散板22による拡散光は、絞り23の円形の開口部を通過することにより円形に成形される。絞り23の円形の開口部を通過した光は、投光レンズ24により水平方向に進行する平行光に変換される。その平行光は、測定対象物である中心杵14に照射される。測定対象物を通過した光は第1レンズ25により集光され、絞り26の円形の開口部を通過し、第2レンズ27によりCCD28の受光領域に結像される。CCD28は受光量に対応するアナログの出力信号を導出する。A/D変換器(アナログ/デジタル変換器)29は、CCD28の出力信号をデジタル信号に変換し、そのデジタル信号を画像データとして画像メモリ30に書き込むとともに、画像モニタ35に与える。微分器31は、画像メモリ30から読み出された画像データを微分する。エッジ検出部32は、微分器31の出力信号の画素レベルのピーク位置を検出し、そのピーク位置を画素レベルのエッジ座標としてエッジメモリ33に書き込む。距離計算部34は、エッジメモリ33に記憶されたエッジ座標に基

づいて測定対象部物の任意の2点間の距離を計算し、計算結果をエッジメモリ33に格納する。画像モニタ35は、A/D変換器29から与えられる画像データを測定対象物の画像として表示するとともに、エッジメモリ33に記憶される計算結果を表示する。

[0027] このような非接触型測定器は、単一の発光ダイオード21から出射された光が拡散板22で拡散されるとともに、絞り23により円形に成形された後、平行光にされるので、均一な光量分布となり光量むらが発生しないため、高い測定精度が得られ好ましい。また、消費電力の少ない単一の発光ダイオードを用いることで、発熱による光学系の機械的な歪みや測定対象物である中心杵の熱膨張による測定誤差が生じないためさらに好ましい。

[0028] 本発明は、触媒用、錠剤用などの種々の打錠粉末を円筒錠に成形するのに適用できる。打錠粉末は摩耗性のない粉末であってもよいが、摩耗性のある粉末、特に金属成分を含む触媒粉末を打錠する上で有用である。なかでも、本発明は、オレフィン又はターシャリーブタノールを気相接触酸化反応させて対応する不飽和アルデヒド及び／又は不飽和カルボン酸を製造する反応に用いられる、モリブデンを主体とする下記の式(1)を有する複合酸化物触媒の触媒粉末が好適である。



(式中、Moはモリブデン、Biはビスマス、Coはコバルト、Niはニッケル、Feは鉄、Siはケイ素、Oは酸素を示し、Xは、Na、K、Rb、Cs及びTlからなる群から選ばれる少なくとも1種の元素を示し、Yは、B、P、As及びWからなる群から選ばれる少なくとも1種の元素を示し、Zは、Mg、Ca、Zn、Ce及びSmからなる群から選ばれる少なくとも1種の元素を示し、Qは、ハロゲン原子を示し、aからkはそれぞれの元素の原子比を示し、 $a=12$ のとき、 $0.5 \leq b \leq 7$ 、 $0 \leq c \leq 10$ 、 $0 \leq d \leq 10$ 、 $1 \leq c+d \leq 10$ 、 $0.05 \leq e \leq 3$ 、 $0.0005 \leq f \leq 3$ 、 $0 \leq g \leq 3$ 、 $0 \leq h \leq 1$ 、 $0 \leq i \leq 0.5$ 、 $0 \leq j \leq 40$ 、であり、また、kは他の元素の酸化状態を満足させる数値である。)

[0029] また、本発明は、不飽和アルデヒドを気相接触酸化反応させて対応する不飽和カルボン酸を製造する反応に用いられる、モリブデンを主体とする下記の式(2)を有す

る複合酸化物触媒の触媒粉末が好適である。



(式中、Moはモリブデン、Vはバナジウム、Cuは銅、Oは酸素を示し、Xは、W及びNbからなる群から選ばれる少なくとも1種の元素を示し、Yは、Fe、Co、Ni、及びBiからなる群から選ばれる少なくとも1種の元素を示し、ZはTi、Zr、Ce、Cr、Mn及びSbからなる群より選ばれた少なくとも1種の元素を示す。a、b、c、d、e、f及びgは各元素の原子比を表わし、 $a=12$ のとき、 $1 \leq b \leq 12$ 、 $0 \leq c \leq 6$ 、 $0 \leq d \leq 12$ 、 $0 \leq e \leq 100$ 、 $0 \leq f \leq 100$ であり、また、gは前記各成分の原子価を満足するのに必要な酸素原子数である。)

- [0030] 本発明で打錠される複合酸化物触媒は長さ方向に開口を有する円筒形状である。円筒形状としては、反応熱の除去性、反応ガスの圧損失、触媒強度、などからして、外径が3〜10mm、長さが外径の0.5〜2倍、かつ内径が外径の0.1〜0.7倍であるのが好ましい。この範囲内の数値を有する円筒形状の触媒は、触媒に要求される上記の特性をいずれも満足することができる。なかでも、外径が4〜8mm、長さが外径の0.6〜1.5倍、かつ内径が外径の0.3〜0.5倍であるのが特に好ましい。

実施例

- [0031] 以下に、実施例および比較例に基づいて本発明をより詳細に説明するが、本発明はこれらの実施例により限定されるものではない。

[0032] 実施例1

塩基性炭酸ニッケル($\text{NiCO}_3 \cdot 2\text{Ni}(\text{OH})_2 \cdot 4\text{H}_2\text{O}$) 3.65部(重量部を意味し、以下同じ)を純水3.75部に分散させた。これに二酸化ケイ素(塩野義製薬(株)製:カープレックス#67) 1.22部および三酸化アンチモン2.4部を加えて十分に攪拌した。このスラリーを加熱濃縮乾燥し、得られた固体を800℃で3時間焼成した。これを粉砕して60メッシュ以下とする。回転攪拌翼付溶解槽中の純水3.8部を80℃に加熱し、パラモリブデン酸アンモニウム1.0部、メタバナジン酸アンモニウム0.135部、パラタングステン酸アンモニウム0.130部、及び硫酸銅0.08部及び上記で得た粉体の

全量を順次攪拌しながら加えた。この触媒成分を含むスラリーを加熱乾燥し、組成(原子比)がSb:Ni:Si:Mo:V:W:Cu=100:43:80:35:7:3:3である触媒粉末を得た。

[0033] 次に、基準寸法径6mmでプラス公差0〜0.02mmである臼孔を有する臼、基準寸法径6mmでマイナス公差0.02〜0.04mmである杵先および基準寸法径3mmでプラス公差0.01〜0.03mmの貫通孔を杵先水平面中央に有する下杵、基準寸法径6mmでマイナス公差0.02〜0.04mmである杵先および基準寸法径3mmでプラス公差0.01〜0.03mmの穿孔を杵先水平面中央に有する上杵、及び基準寸法3mmでマイナス公差0.01〜0.03mmである中心杵が装着されたロータリー式打錠機で、上記触媒粉末を回転数20rpm、打錠圧1トン/杵で、1錠あたり200mg、厚み4mmの円筒錠を1杵あたり約1000000錠打錠した。このとき、打錠途中で折損した中心杵を未使用の中心杵と交換して打錠を続けた。打錠終了後、打錠機に備わっている回転盤手廻しハンドルを使って回転盤を手動で回し、成形体拔出ステージで拔出された円筒錠をピンセットを用いて慎重に取り出した。これを4周分行った。

[0034] 次に中心杵を打錠機から取り外して、中心杵の円筒錠の孔を成形する部位の最小径Dを非接触型測定器((株)キーエンス製:高精度2次元寸法測定器VM-8000)で測定した。次いで、取り外した中心杵に対応する上記取り出された4周分の円筒錠の表面を観察してヒビの有無を検査し、回転盤4周分におけるヒビ(割れも含む)の発生率を全中心杵について調べた。中心杵の設計における基準寸法径3mmと上記最小径Dの差を中心杵摩耗度とし、中心杵摩耗度と円筒錠のヒビ発生率の関係を図示した結果、図1の関係を得た。

[0035] 実施例2

未使用の中心杵の円筒錠の孔を成形する部位の径D0を上記高精度2次元寸法測定器で測定した後、上記ロータリー打錠機に装着した。次に実施例1で得られた触媒粉末を実施例1と同じ条件で打錠し、1杵あたりの打錠数が夫々84000錠、265000錠、420000錠、720000錠に達した時に、中心杵を取り外して中心杵の円筒錠の孔を成形する部位の最小径Dを実施例1と同様に測定した。上記使用前の径D0と最小径Dの差を摩耗度とし、1杵あたりの打錠数を基準とした摩耗度の経時変化を図

示した結果、図2に示す検量線を得た。

- [0036] 実施例1は、中心杵の設計における基準寸法径と中心杵摩耗による当該部位の最小径との差が0.04mm以上大きい場合に、円筒錠にヒビが発生することを示し、中心杵の当該部位の径を管理することで円筒錠のヒビ発生を防止できることを示している。実施例2では、中心杵摩耗が打錠数に比例して進んでいることを示し、中心杵の当該部位の最小径を測定する時期を打錠数で管理することで効率よく中心杵摩耗の管理を行うことが出来ることを示している。

比較例1

実施例1の打錠終了直前に採取した円筒錠を実施例1と同様にヒビの有無を検査した結果、48%の円筒錠にヒビが確認された。

- [0037] 実施例3

中心杵の円筒錠の孔を成形する部位の平均径が2.98mmである未使用の中心杵を上記ロータリー打錠機に装着し、実施例1で得られた触媒粉末を実施例1と同じ条件で打錠した。図2より求めた中心杵加工時の基準寸法径3mmより0.04mm小さい径である2.96mmと上記平均径2.98mmとの中間径である2.97mmまで達すると予測される1杵あたり150000錠毎に中心杵の当該部位の最小径を実施例1と同様に測定して、2.97mmより小さい中心杵を2.97mm以上の中心杵と交換しながら1杵あたり約1000000錠打錠した。打錠終了直前に採取した円筒錠を実施例1と同様にヒビの有無を検査した結果、ヒビは確認されなかった。

- [0038] 実施例4

上記ロータリー打錠機の停止設定を、回転盤一周分の杵毎打錠圧力から算出した平均打錠圧力および標準偏差を元にして、平均打錠圧力から標準偏差に4である係数を乗じた値を差し引いた値より小さくなる打錠圧力が検出された場合に停止するように設定して、実施例1で得られた触媒粉末を実施例1と同じ条件で1杵あたり約1000000錠成形した。このとき、上記停止設定の条件で停止した杵の中心杵の円筒錠の孔を成形する部位の最小径を実施例1と同様に測定し、当該部位の最小径が2.96mmより小さい中心杵を2.96mm以上の中心杵と交換して打錠を続けた。打錠終了直前に採取した円筒錠を実施例1と同様にヒビの有無を検査した結果、ヒビは確認さ

れなかった。

- [0039] 比較例では中心杵摩耗の管理を行わないためヒビが発生したが、実施例3は図2に示した検量線を元に打錠数で中心杵摩耗の管理を行うことによって円筒錠のヒビ発生を防止できることを示している。また、実施例4は中心杵の摩耗が進行することで打錠圧力が低下することに着目し、打錠圧力で中心杵の摩耗の管理を行うことでも円筒錠のヒビ発生を防止できることを示している。

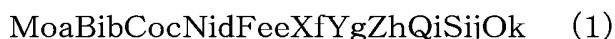
産業上の利用可能性

- [0040] 本発明は、上記したように打錠成形機の中心杵の円筒錠の中心孔を成形する部位の磨耗度を定量的に把握し、これに基づいて中心杵を交換管理することにより円筒錠のヒビ発生を防止できるので、種々の円筒錠の打錠に利用できる。

請求の範囲

- [1] 回転盤に取り付けられた臼及び上下杵を、前記回転盤の回転に伴って上下の加圧ロール間に通過させることにより、これら加圧ロールで前記上下の杵をそれぞれ軸線方向に移動させて、前記臼内に充填された粉末を圧縮成形するようにし、かつ前記下杵の杵先の水平方向の中央に下杵の杵先を貫通して下杵の摺動方向に立設される中心杵と、前記上杵の杵先の水平方向の中央に穿設されて圧縮成形時に該中心杵が挿入される中央穴とを具備する回転式粉末圧縮成形機を用いて円筒錠を打錠する方法において、前記中心杵の円筒錠の中心孔を成形する部位の最小径と該部位の設計における基準寸法径との差が0.04mm以内である中心杵を使用して打錠することを特徴とする円筒錠の打錠方法。
- [2] 前記中心杵の円筒錠の中心孔を成形する部位の打錠前の径と打錠を行った後の該部位の最小径との差と打錠数とを基準とする検量線を作成し、前記部位の設計における基準寸法径と前記最小径との差が、該部位の摩耗により0.04mmより大きくなる打錠数を前記検量線より打錠前に予測し、打錠を開始してからの打錠数が前記予測された打錠数に達する前に、中心杵の円筒錠の中心孔を成形する部位の最小径を測定して、前記基準寸法径と該最小径との差が0.04mm以内になるよう中心杵を交換管理することを特徴とする請求項1に記載の円筒錠の打錠方法。
- [3] 前記上下の加圧ロールのいずれか一方からの打錠圧力を検出するセンサにより検出された打錠圧力が、前記回転盤一周分の杵毎の打錠圧力から打錠圧力の平均値および標準偏差を算出し、該標準偏差に2～5である係数を乗じた値を上記平均値から差し引いた値より小さい場合において、前記中心杵の円筒錠の中心孔を成形する部位の最小径を測定して、前記基準寸法径と該最小径との差が0.04mm以内になるよう中心杵を交換することを特徴とする請求項1又は2に記載の円筒錠の打錠方法。
- [4] 中心杵の円筒錠の中心孔を成形する部位の最小径を、最小読み取り値0.01mm以下である非接触型測定機器で精密に測定することを特徴とする請求項1～3のいずれかに記載の円筒錠の打錠方法。
- [5] オレフィン又はターシャリーブタノールを気相接触酸化反応させて対応する不飽和

アルデヒド及び／又は不飽和カルボン酸を製造する反応に用いられる、モリブデンを主体とする下記の式(1)を有する複合酸化物触媒を円筒形状に打錠する請求項1〜4のいずれかに記載の円筒錠の打錠方法。



(式中、Xは、Na、K、Rb、Cs及びTlからなる群から選ばれる少なくとも1種の元素を示し、Yは、B、P、As及びWからなる群から選ばれる少なくとも1種の元素を示し、Zは、Mg、Ca、Zn、Ce及びSmからなる群から選ばれる少なくとも1種の元素を示し、Qは、ハロゲン原子を示し、aからkはそれぞれの元素の原子比を示し、 $a=12$ のとき、 $0.5 \leq b \leq 7$ 、 $0 \leq c \leq 10$ 、 $0 \leq d \leq 10$ 、 $1 \leq c+d \leq 10$ 、 $0.05 \leq e \leq 3$ 、 $0.0005 \leq f \leq 3$ 、 $0 \leq g \leq 3$ 、 $0 \leq h \leq 1$ 、 $0 \leq i \leq 0.5$ 、 $0 \leq j \leq 40$ 、であり、また、kは他の元素の酸化状態を満足させる数値である。)

- [6] 不飽和アルデヒドを気相接触酸化反応させて対応する不飽和カルボン酸を製造する反応に用いられる、モリブデンを主体とする下記の式(2)を有する複合酸化物触媒を円筒形状に打錠する請求項1〜4のいずれかに記載の円筒錠の打錠方法。

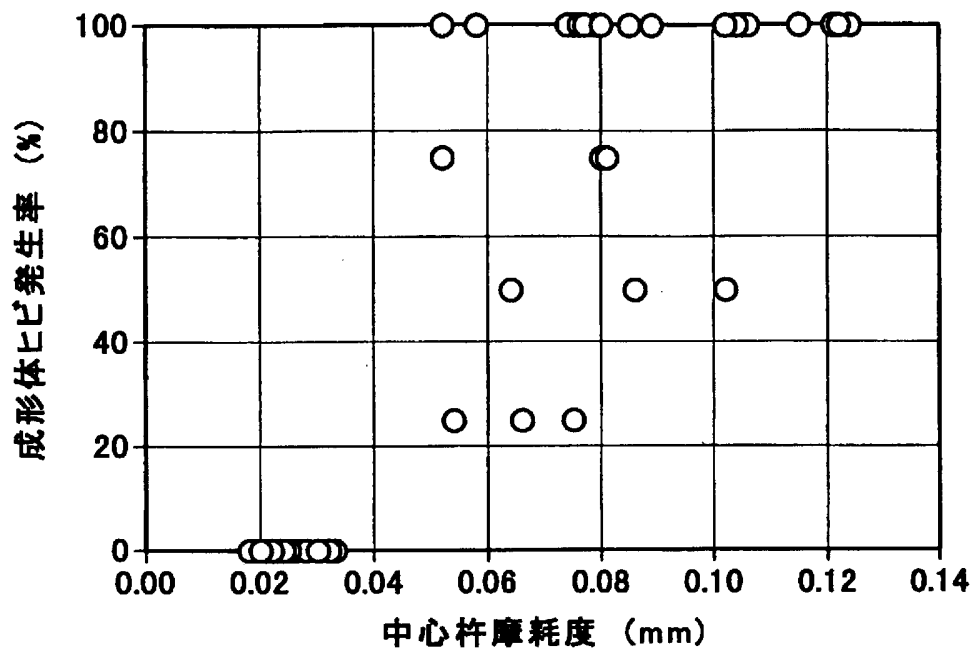


(式中、Xは、W及びNbからなる群から選ばれる少なくとも1種の元素を示し、Yは、Fe、Co、Ni、及びBiからなる群から選ばれる少なくとも1種の元素を示し、ZはTi、Zr、Ce、Cr、Mn及びSbからなる群より選ばれた少なくとも1種の元素を示す。a、b、c、d、e、f及びgは各元素の原子比を表わし、 $a=12$ のとき、 $1 \leq b \leq 12$ 、 $0 \leq c \leq 6$ 、 $0 \leq d \leq 12$ 、 $0 \leq e \leq 100$ 、 $0 \leq f \leq 100$ であり、また、gは前記各成分の原子価を満足するのに必要な酸素原子数である。)

- [7] 前記複合酸化物触媒が、外径が3〜10mm、長さが外径の0.5〜2倍、かつ内径が外径の0.1〜0.7倍となるように長さ方向に開口を有する請求項5又は6に記載の円筒錠の打錠方法。

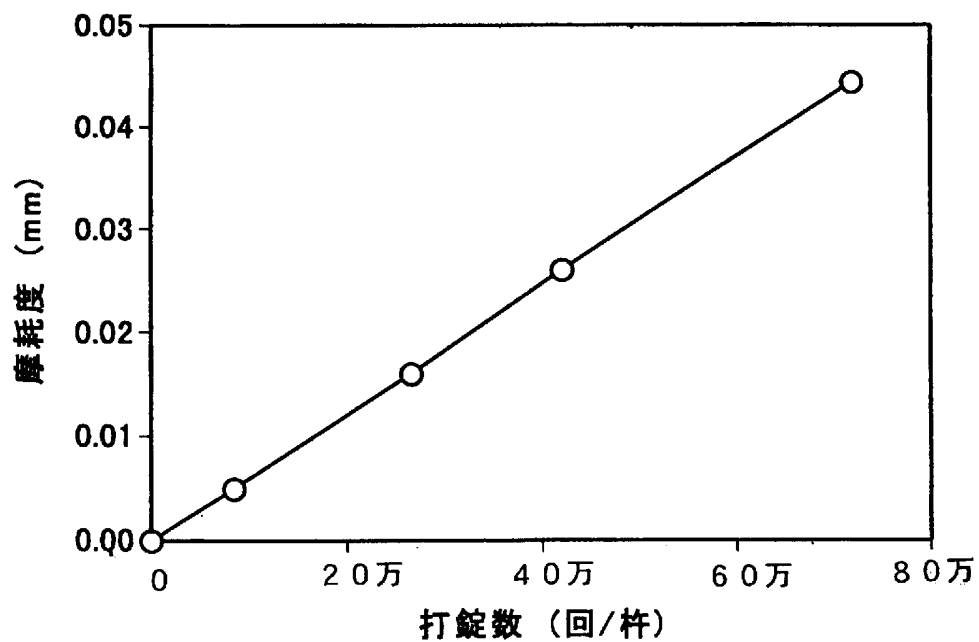
[図1]

中心杵摩耗度と成形体ヒビ発生率の関係

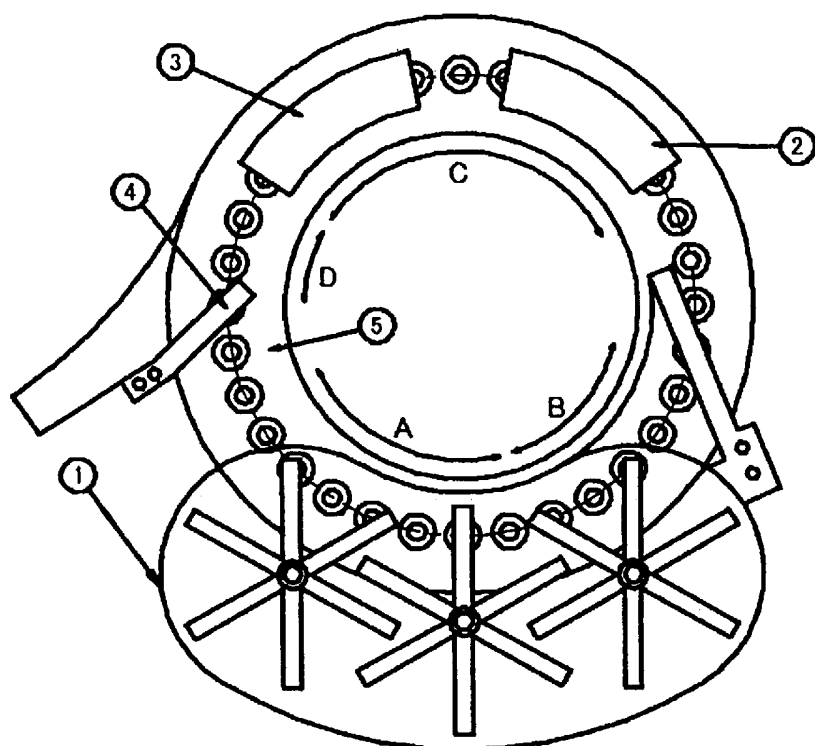


[図2]

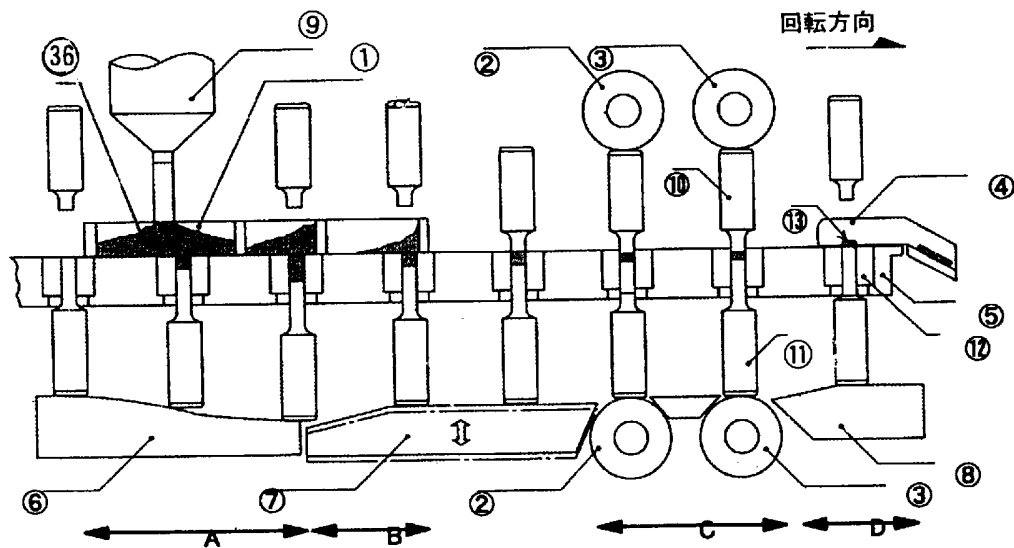
中心杵摩耗の経時変化



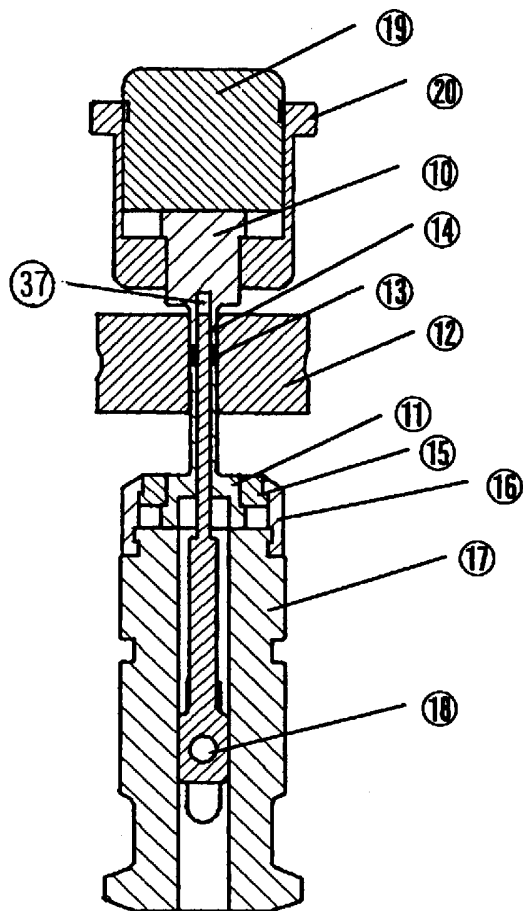
[図3]



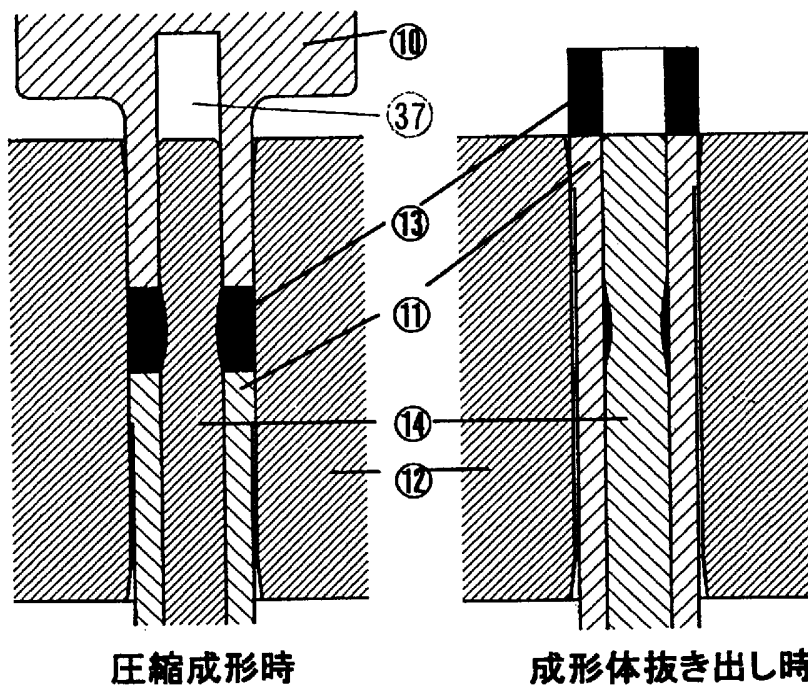
[図4]



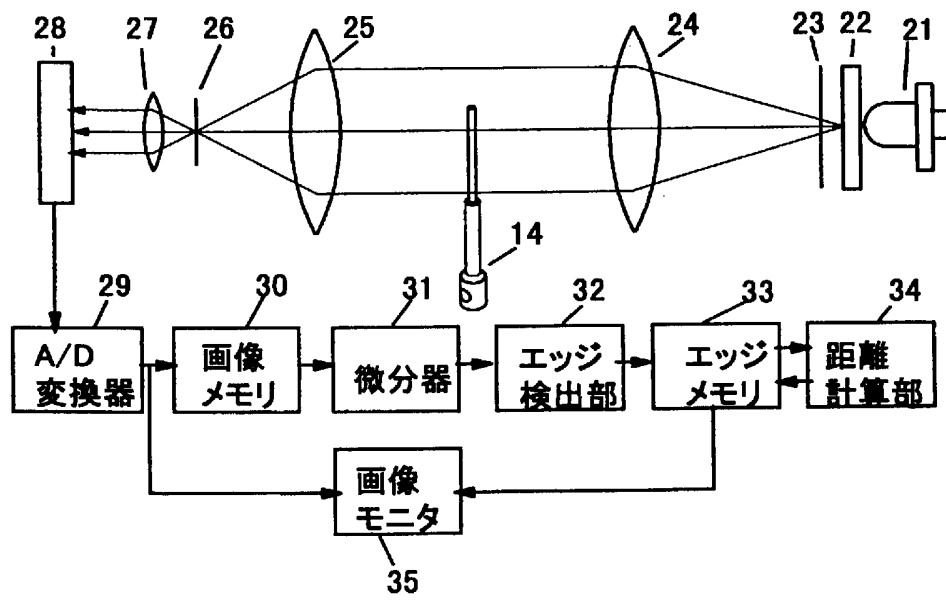
[図5]



[図6]



[図7]



INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2004/014392

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

Int.Cl⁷ B30B11/08, B30B11/00, B01J27/228, B01J37/00

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

Int.Cl⁷ B30B11/08, B30B11/00, B01J27/228, B01J37/00

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Jitsuyo Shinan Koho	1922-1996	Toroku Jitsuyo Shinan Koho	1994-2005
Kokai Jitsuyo Shinan Koho	1971-2005	Jitsuyo Shinan Toroku Koho	1996-2005

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	JP 10-029097 A (Kabushiki Kaisha Kikusui Seisakusho), 03 February, 1998 (03.02.98), Full text; all drawings (Family: none)	1-7
A	JP 8-206892 A (Kabushiki Kaisha Kikusui Seisakusho), 13 August, 1996 (13.08.96), Full text; all drawings (Family: none)	1-7
A	JP 59-046132 A (Nippon Shokubai Kagaku Kogyo Co., Ltd.), 15 March, 1984 (15.03.84), Full text; all drawings & US 4511671 A	5, 6

☐ Further documents are listed in the continuation of Box C.

☐ See patent family annex.

* Special categories of cited documents:

"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance

"E" earlier application or patent but published on or after the international filing date

"L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)

"O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means

"P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed

"T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention

"X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone

"Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art

"&" document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search
06 January, 2005 (06.01.05)

Date of mailing of the international search report
25 January, 2005 (25.01.05)

Name and mailing address of the ISA/
Japanese Patent Office

Authorized officer

Facsimile No.

Telephone No.

A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (IPC))

Int. Cl⁷ B30B11/08、B30B11/00、
B01J27/228、B01J37/00

B. 調査を行った分野

調査を行った最小限資料 (国際特許分類 (IPC))

Int. Cl⁷ B30B11/08、B30B11/00、
B01J27/228、B01J37/00

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

日本国実用新案公報	1922-1996年
日本国公開実用新案公報	1971-2005年
日本国登録実用新案公報	1994-2005年
日本国実用新案登録公報	1996-2005年

国際調査で使用した電子データベース (データベースの名称、調査に使用した用語)

C. 関連すると認められる文献

引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
A	JP 10-029097 A (株式会社菊水製作所) 1998. 02. 03, 全文, 全図 (ファミリーなし)	1-7
A	JP 8-206892 A (株式会社菊水製作所) 1996. 0 8. 13, 全文, 全図 (ファミリーなし)	1-7
A	JP 59-046132 A (日本触媒化学工業株式会社) 19 84. 03. 15, 全文, 全図 & US 4511671 A	5, 6

☐ C欄の続きにも文献が列举されている。☐ パテントファミリーに関する別紙を参照。

* 引用文献のカテゴリー

「A」特に関連のある文献ではなく、一般的な技術水準を示すもの
「E」国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの
「L」優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献 (理由を付す)
「O」口頭による開示、使用、展示等に言及する文献
「P」国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願

の日の後に公表された文献
「T」国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの
「X」特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの
「Y」特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの
「&」同一パテントファミリー文献

国際調査を完了した日

06. 01. 2005

国際調査報告の発送日

25. 1. 2005

国際調査機関の名称及びあて先

日本国特許庁 (ISA/JP)
郵便番号100-8915
東京都千代田区霞が関三丁目4番3号

特許庁審査官 (権限のある職員)

原 泰造

3P

9721

電話番号 03-3581-1101 内線 3364