

(19) 日本国特許庁(JP)

## (12) 公開特許公報(A)

(11) 特許出願公開番号

特開2004-238629

(P2004-238629A)

(43) 公開日 平成16年8月26日(2004.8.26)

(51) Int. Cl. <sup>7</sup>	F I	テーマコード (参考)
CO8B 11/00	CO8B 11/00	4CO90
CO8K 3/20	CO8K 3/20	4J002
CO8L 1/26	CO8L 1/26	
//(CO8L 1/26	CO8L 1/26	
CO8L 3:00	CO8L 3:00	
審査請求 未請求 請求項の数 2 O L (全 12 頁) 最終頁に続く		

(21) 出願番号	特願2004-31176 (P2004-31176)	(71) 出願人	503166780
(22) 出願日	平成16年2月6日 (2004.2.6)		ヴォルフ セルロシックス ゲゼルシャフト
(31) 優先権主張番号	10304816.2		ト ミット ベシュレンクテル ハフツング
(32) 優先日	平成15年2月6日 (2003.2.6)		グ ウント コンパニー コマンディート
(33) 優先権主張国	ドイツ (DE)		ゲゼルシャフト
			ドイツ連邦共和国 ヴァルスローデ (番地なし)
		(74) 代理人	100061815
			弁理士 矢野 敏雄
		(74) 代理人	100094798
			弁理士 山崎 利臣
		(74) 代理人	100099483
			弁理士 久野 琢也
最終頁に続く			

(54) 【発明の名称】セルロースエーテル配合物およびその製造法

## (57) 【要約】

【課題】高い嵩密度のセルロースエーテル配合物ならびに簡単にセルロースエーテルの嵩密度を増加させ、同時に必要に応じて、粉末度の影響をよりいっそう微細な製品に及ぼすことも可能である方法を提供する。

【解決手段】添加剤無水セルロースエーテルを基礎とする、澱粉、澱粉エーテル、グアール、グアールエーテルおよびキサントラン 0.1 ~ 10 質量% が水溶液または粉末として計量供給されており、混合しながらおよび場合によってはさらに水を添加しながら、ポリアクリルアミドが水溶液として湿潤セルロースエーテルの質量に対して 25% ~ 75% の範囲内の湿分含量を有する含水セルロースエーテルに計量供給されている。

【選択図】なし

**【特許請求の範囲】****【請求項 1】**

- a) セルロースエーテル、
- b) 無水セルロースエーテルを基礎とする、澱粉、澱粉エーテル、グアール、グアールエーテルおよびキサンタンから選択される添加剤 0.1 ~ 10 質量%、
- c) 場合によっては無水セルロースエーテルを基礎とするポリアクリルアミド 0.05 ~ 1 質量% および
- d) 場合によっては他の添加剤からなるセルロースエーテル配合物において、添加剤 b) が水溶液または粉末として計量供給されており、混合しながらおよび場合によってはさらに水を添加しながら、ポリアクリルアミド c) が水溶液として湿潤セルロースエーテルの質量に対して 25% ~ 75% の範囲内の湿分含量を有する含水セルロースエーテルに計量供給されていることを特徴とする、セルロースエーテル配合物。

10

**【請求項 2】**

増加した嵩密度のセルロースエーテル配合物の製造法において、

- a) 澱粉、澱粉エーテル、グアール、グアールエーテルまたはキサンタンから選択された添加剤 0.1 ~ 10 質量% を前記配合物の全質量に対して 25 ~ 75 質量% の範囲内の湿分含量を有する含水セルロースエーテル中に水溶液または粉末の形で計量供給し、この場合質量% は、無水セルロースエーテルに対するものであり、
- b) 必要に応じてポリアクリルアミド 0.01 ~ 1 質量% を水溶液の形で計量供給し、この場合質量% は、無水セルロースエーテルに対するものであり、
- c) 必要に応じて、混合しながら、必要に応じてさらに水を添加しながら、さらに添加剤を計量供給し、その後配合物を微粉碎し、乾燥させることを特徴とする、増加した嵩密度のセルロースエーテル配合物の製造法。

20

**【発明の詳細な説明】****【技術分野】****【0001】**

増加した嵩密度を有するセルロースエーテル配合物、建築材料系への該セルロースエーテル配合物の使用およびセルロースエーテルの嵩密度を増加させるための方法が記載されている。

**【背景技術】**

30

**【0002】**

セルロースエーテルの卓越した性質に関連して、セルロースエーテルは、多種多様な用途に、例えば増粘剤、接着剤、結合剤、分散剤、保水剤、保護コロイド、安定剤ならびに懸濁剤、乳化剤および被膜形成剤として使用されている。

**【0003】**

通常、セルロースエーテルは、セルロースをアルカリ温浸し、その後エーテル化剤、例えば塩化メチル、酸化エチレンおよび酸化プロピレンでエーテル化することによって製造される。しかし、工業的用途に適している製品は、反応後に得られた粗製セルロース誘導体を洗浄し、圧縮し、微粉碎し、かつ乾燥させた後に製造される。殊に、セルロース誘導体の圧縮、微粉碎および乾燥は、高いレベルの投資費用に関連した費用の多大な装置を含む。

40

**【0004】**

従って、メチルヒドロキシエチルセルロースおよびメチルヒドロキシプロピルセルロースおよびメチルセルロースならびにこれらの生成物の誘導体は、幾つかの場合には、用途に必要とされる粉末度および嵩密度をもたらすことが不可能であるかまたは極めて困難である。これは、特に当該生成物が高度なメチル化および/または低度のヒドロキシアルキル化を有する場合である。

**【0005】**

高い嵩密度は、混合によるセメント質系またはプラスタ系への簡単な配合を保証することを含むために、セルロースエーテルにおいて必要とされる。また、増加した嵩密度は

50

、包装および運搬に関連した利点を提供する。それというのも、所定の質量に対して、運搬しなければならない体積は、少ないからである。

【0006】

アルキル置換は、セルロースエーテル化学において、一般にDSによって記載されている。DSは、無水グルコース単位1つ当たりの置換されたOH基の平均的な数である。メチル置換は、例えばDS(メチル)またはDS(M)として規定されている。

【0007】

ヒドロキシアルキル置換は、通常、MSによって記載される。MSは、無水グルコース単位1モル当たりエーテル形で結合されたエーテル化剤の平均的なモル数である。エーテル化試薬酸化エチレンを用いてのエーテル化は、例えばMS(ヒドロキシエチル)またはMS(HE)として規定されている。従って、エーテル化剤酸化プロピレンを用いてのエーテル化は、MS(ヒドロキシプロピル)またはMS(HP)として規定されている。

【0008】

セルロースエーテルと他の添加剤または助剤との組合せにより、工業的用途のための配合物において特殊な性質を設定することができることは、久しく公知である。

【0009】

米国特許第4654085号明細書には、成分が澱粉エーテルおよびポリアクリルアミドを含む多重成分の添加剤が記載されている。量比は、有利に次のように規定されている：95~75：20~5：1セルロースエーテル：澱粉エーテル：ポリアクリルアミド。

【0010】

米国特許第4654085号明細書においては、添加剤は、粉末の形で、同様に粉末の形で存在するセルロースエーテル中に混合され、したがってセルロースエーテルの嵩密度および粉末度は、影響を受けない。

【0011】

ドイツ連邦共和国特許出願公開第10041311号明細書には、湿潤セルロースエーテルを添加剤または添加剤の混合物と水性懸濁液または有機懸濁液の形で混合し、その後生じる混合物を乾燥させることによって特徴付けられている、セルロースエーテルを変性させる方法が記載されている。

【0012】

ドイツ連邦共和国特許出願公開第10041311号明細書においては、添加剤は、粉末の形で配合されず、澱粉エーテルは、全く使用されていない。

【0013】

欧州特許出願公開第1127910号明細書および欧州特許出願公開第1127895号明細書には、セルロース誘導体を併用して微粉碎/乾燥する方法が記載されている。これら2つの欧州特許出願公開明細書には、微粉碎/乾燥を併用する前に微粉碎された材料への澱粉エーテル添加剤の添加の可能性が記載されている。しかし、欧州特許出願公開第1127910号明細書にも欧州特許出願公開第1127895号明細書にも、どの位の量が有利であり、どのようにして添加剤の添加を行なうことができ、どの澱粉エーテルを有利に使用することができるかについては、何も記載されていない。

【0014】

側鎖は、ツァイゼル定量法により測定される(刊行物：G. BartelmusおよびR. Ketterer, Z. Anal. Chem. 286 (1977) 161-190)。

【特許文献1】米国特許第4654085号明細書

【特許文献2】米国特許第4654085号明細書

【特許文献3】ドイツ連邦共和国特許出願公開第10041311号明細書

【特許文献4】欧州特許出願公開第1127910号明細書

【特許文献5】欧州特許出願公開第1127895号明細書

【非特許文献1】G. BartelmusおよびR. Ketterer, Z. Anal. Chem. 286 (1977) 161-190

【発明の開示】

【発明が解決しようとする課題】

10

20

30

40

50

## 【0015】

従って、本発明の目的は、高い嵩密度のセルロースエーテル配合物ならびに簡単にセルロースエーテルの嵩密度を増加させ、同時に必要に応じて、粉末度の影響をよりいっそう微細な製品に及ぼすことも可能である方法を提供することであった。

## 【課題を解決するための手段】

## 【0016】

例えば、セルロースエーテルの洗浄後に、存在する含水セルロースエーテルを澱粉エーテルと混合し、水の添加下および混合下に生じる混合物を、その後の処理工程にとって理想的な含水量にもたらしことによって、前記目的を達成することができた。必要に応じて、ポリアクリルアミド添加剤を十分に添加することによって、相乗効果を生じさせることができる。使用される澱粉エーテルの量は、無水セルロースに対して0.1~10質量%であり、使用される場合には、ポリアクリルアミドの量は、無水セルロースエーテルに対して0.05~1.0質量%である。ここでは、澱粉エーテルは、水溶液の形または好ましくは粉末の形で添加され、一方で、ポリアクリルアミドは、水溶液として計量供給される。こうして、添加剤で処理されたセルロースエーテルは、乾燥されかつ微粉碎され、また、微粉碎および乾燥を1工程で行なうことも可能である。

10

## 【0017】

従って、本発明は、

- a) セルロースエーテル、
- b) 無水セルロースエーテルを基礎とする、澱粉、澱粉エーテル、グアール、グアールエーテルおよびキサンタン0.1~10質量%、
- c) 場合によっては無水セルロースエーテルを基礎とするポリアクリルアミド0.05~1質量%および
- d) 場合によっては他の添加剤からなるセルロースエーテル配合物を提供し、この場合には、添加剤b)が水溶液または有利に粉末として計量供給されており、混合しながらおよび場合によってはさらに水を添加しながら、ポリアクリルアミドc)が水溶液として湿潤セルロースエーテルの質量に対して25%~75%の範囲内の湿分含量を有する含水セルロースエーテルに計量供給されていることによって特徴付けられている。

20

## 【0018】

本発明のこのような配合物は、意外なことに、明らかに増加された嵩密度を示し、必要に応じて澱粉エーテル添加剤および場合によってはポリアクリルアミド添加剤で処理されていない生成物と比較して明らかに増加された粉末度を示す。

30

## 【0019】

本発明において、今や、意外なことに、澱粉エーテルおよび必要に応じてポリアクリルアミドを含水セルロースエーテル中に配合する場合に、製品の嵩密度および可能な場合には、粉末度にプラスに影響を及ぼすことを見出すことができた。有利な性質を達成するために、さらに粉末状の添加剤を、付加的に米国特許第4654085号明細書の記載に応じて、多成分系添加剤を形成させることに関連して、既に含水セルロースエーテル中に配合され、既に添加剤で処理されたセルロースエーテル中に配合された澱粉エーテルおよびポリアクリルアミドの量に混合することができ、この場合には、使用される量に関連して含水セルロースエーテル中に既に配合された澱粉エーテルおよびポリアクリルアミドの量を考慮することができる。

40

## 【0020】

本発明の方法によれば、例えば粗製セルロースエーテルの洗浄後に存在するような含水セルロースエーテルは、澱粉エーテルと混合され、必要に応じて水の添加下および混合下に次の処理工程にとって理想的な含水量にもたらされる。

## 【0021】

ここで使用されるセルロース誘導体は、好ましくはメチルセルロース誘導体、よりいっそう好ましくはメチルセルロースまたはメチルヒドロキシルセルロースである。使用された最も好ましいメチルヒドロキシルセルロースは、メチルヒドロキシエチル

50

セルロースまたはメチルヒドロキシプロピルセルロースである。

【0022】

メチルヒドロキシアシルセルロースの場合、DS（メチル）は、0.9～3であり、MS（ヒドロキシアシル）は、0.05～4である。好ましくは、DS（メチル）は、1.4～2.3であり、MS（ヒドロキシアシル）は、0.05～1.0である。最も好ましくは、DS（メチル）は、1.7～2.0であり、MS（ヒドロキシアシル）は、0.1～0.2である。殊に、メチルヒドロキシエチルセルロースが使用される。

【0023】

メチルセルロースの場合、DS（メチル）は、好ましくは1.4～2.3である。最も好ましくは、DS（メチル）は、1.7～2.0である。

10

【0024】

洗浄および濾過に引き続いて、含水フィルターケーキは、含水セルロースエーテルの質量に対して25～75質量%の含水量を有する。45～65質量%の含水量を有する含水フィルターケーキを使用することは、好ましい。この含水フィルターケーキは、澱粉エーテル水溶液または好ましくは無水澱粉エーテル粉末と混合され、場合によっては必要に応じて、配合物の顆粒の含水量を調節するために、この混合処理の間またはその後、再び混合しながらさらに水中に計量供給される。更に、水は、好ましくは澱粉エーテルが混合された後に添加される。

【0025】

こうして製造された配合物の含水量（顆粒の含水量）は、通常、配合物の全質量に対して45～80質量%、好ましくは60～75質量%、最も好ましくは65～75質量%である。

20

【0026】

添加剤b)として澱粉エーテルを使用することは、好ましい。

【0027】

本明細書中で使用される澱粉エーテルは、ヒドロキシアシル澱粉であるが、アルキルヒドロキシアシル澱粉またはカルボキシメチルヒドロキシアシル澱粉の使用も可能である。好ましくは、例えば0.3～0.9のMS（ヒドロキシアシル）を有するヒドロキシアシル澱粉、例えばヒドロキシメチル澱粉、ヒドロキシエチル澱粉またはヒドロキシプロピル澱粉、特に好ましくは0.4～0.6のMS（ヒドロキシアシル）を有するヒドロキシアシル澱粉が記載される。ヒドロキシアシル澱粉の中、特に好ましくは、ヒドロキシプロピル澱粉が記載される。

30

【0028】

この種の澱粉エーテルは、澱粉をエーテル化剤とアルカリ触媒の存在で反応させることによって製造される。この場合、生じる澱粉エーテルの粘度を上昇させるために、二官能価または多官能価の架橋試薬、例えばエピクロロヒドリンを使用することは、可能である。

【0029】

好ましくは、60 mPa sを上回る粘度（水中で5質量%の濃度、25℃、Brookfield）を有する澱粉エーテルを使用することが記載される。使用にとって最も好ましいのは、600 mPa sを上回る粘度を有する高粘度の澱粉エーテルである。特に架橋試薬の使用によって製造された、殊に、高粘度の澱粉エーテルが使用される。

40

【0030】

使用される澱粉エーテルの量は、無水セルロースエーテルに対して0.1～10質量%である。0.5～8質量%を使用することが好ましい。特に好ましくは、1.0～5質量%を使用することが記載される。本明細書中で、澱粉エーテルは、好ましくは粉末の形で混合しながら含水セルロースエーテルに添加される。

【0031】

澱粉エーテルの代わりに、澱粉、グアール、グアール誘導体、例えばヒドロキシプロピ

50

ルグアールまたはキサントンを添加剤として造粒工程に装入することも可能である。

【0032】

付加的にポリアクリルアミド添加剤を添加することによって、相乗効果を生じさせることも可能である。ポリアクリルアミドの量は、使用される場合には、無水セルロースエーテルに対して0.01~1.0質量%である。ポリアクリルアミドは、好ましくは0.1~0.6質量%の量で計量供給される。ポリアクリルアミドは、水溶液として澱粉エーテルの計量供給される添加の前、間または後に計量供給される。好ましくは、ポリアクリルアミドは、澱粉エーテルの計量供給された添加後に添加される。ポリアクリルアミドは、水溶液の形で水溶液の全体量に対して0.5~10質量%の濃度で、好ましくは2~7質量%の濃度を有する水溶液として計量供給される。

10

【0033】

ポリアクリルアミドとして、陰イオンポリアクリルアミド、非イオンポリアクリルアミドまたは陽イオンポリアクリルアミドを使用することは可能である。好ましくは、20質量%未満のアクリル酸ナトリウム含量および1000mPas未満の粘度(塩化ナトリウム溶液10質量%の濃度中で1質量%の濃度、25のBrookfield)を有する陰イオンポリアクリルアミドを使用することが記載されている。

【0034】

澱粉エーテルの添加は、本発明によらないセルロースエーテルと比較して生じる生成物の嵩密度を20g/lを上廻り、好ましくは40g/lを上廻り、よりいっそう好ましくは60g/lを上廻るかまたは殊に80g/lを上廻って上昇させる。嵩密度の増加は、無水セルロースエーテルに対してまさに澱粉エーテル0.5質量%の少量で達成され、粉末度の付加的な増加は、澱粉エーテル1.0~5.0質量%の好ましい量で達成される。この場合、0.063mmの篩を通過する画分は、澱粉エーテルの使用なしに対照に対して25%を上廻り、好ましくは50%を上廻って増加する。

20

【0035】

澱粉エーテル添加剤とポリアクリルアミド添加剤の双方が添加された場合には、生じる生成物の嵩密度は、本発明によらないセルロースエーテルと比較して、20g/l、好ましくは40g/lを上廻り、よりいっそう好ましくは60g/lを上廻るかまたは殊に80g/lを上廻って上昇される。また、何れにせよ一定の処理条件下で生成物の粉末度は、明らかに増加する。この増加は、0.063mmの篩を通過する材料の画分が増加する点で明らかである。0.063mmの篩を通過する材料の画分は、澱粉エーテルの使用およびポリアクリルアミドの使用なしに対照と比較して50%を上廻り、好ましくは100%を上廻って増加する(例9対2または例10対1)。0.063mmの篩を通過する材料の画分は、澱粉エーテルの使用およびポリアクリルアミドの使用なしに対照と比較して20%を上廻り、好ましくは40%を上廻って増加する(例9対5または例10対3)。

30

【0036】

必要に応じて、さらに添加剤、例えばグリオキサーおよび/または緩衝液混合物を例えば水溶液の形で含水セルロースエーテルに添加することが可能である。更に、溶解が遅延された生成物は、この方法によって得られる。溶解が遅延されたセルロース誘導体の製造は、久しく当業界で公知であった。

40

【0037】

更に、本発明は、

- a) 澱粉、澱粉エーテル、グアール、グアールエーテルまたはキサントンから選択された添加剤0.1~10質量%を前記配合物の全質量に対して25~75質量%の範囲内の湿分含量を有する含水セルロースエーテル中に水溶液または好ましくは粉末の形で計量供給し、この場合質量%は、無水セルロースエーテルに対するものであり、
- b) 必要に応じてポリアクリルアミド0.01~1質量%を水溶液の形で計量供給し、この場合質量%は、無水セルロースエーテルに対するものであり、
- c) 必要に応じて、混合しながら、必要に応じてさらに水を添加しながら、さらに添加剤を計量供給し、その後配合物を微粉碎し、乾燥させることによって特徴付けられる、増

50

加した嵩密度のセルロースエーテル配合物の製造法を提供する。

【0038】

水は、配合物の顆粒がそのつど配合物の全質量に対して45～80質量%、好ましくは60～75質量%、特に好ましくは65～75質量%の湿分含量を有するまで添加される。

【0039】

セルロースエーテル配合物は、乾燥され、微粉碎され、この場合微粉碎および乾燥は、1工程で行なってもよい。本明細書中では、乾燥および微粉碎または併せた微粉碎/乾燥は、公知技術水準からの方法により行なわれる。微粉碎および乾燥は、好ましくは併せて1工程で実施される。必要に応じて、これには、生成物の寸法のさらなる減少を達成させるために、公知技術水準によりさらに微粉碎工程を続けることができる。

10

【0040】

また、微粉碎および乾燥または併せた微粉碎/乾燥に影響を及ぼす処理条件は、生成物の粉末度が不変のままであるが、しかし、生成物の寸法を減少させるのに必要とされるエネルギー量が減少される程度に変更させることができる。

【0041】

更に、本発明は、建築材料系への本発明による配合物の使用を提供する。

【0042】

本発明による配合物は、好ましくは添加剤として、タイル用添加剤、プラスター、例えばセメントプラスターまたは石膏プラスター、充填化合物、押し出されるセメント質系および他の建築材料に使用される。

20

【0043】

特殊な建築材料系への使用のために生成物を適合させるために、必要に応じて、例えば米国特許第4654085号明細書の記載と同様に、さらに粉末状添加剤を添加することができる。

【実施例】

【0044】

例

併せた微粉碎/乾燥単位装置：

例1～12で使用される併せた微粉碎/乾燥単位装置および併せた微粉碎/乾燥処理は、次のように記載することができる：

30

微粉碎単位装置は、篩のない高速ガス流回転微粉碎装置（直径450mm、5つの微粉碎トラック、3650rpm）から構成されている。微粉碎装置の下流は、サイクロン型分離装置およびバグフィルターである。ダスト不含のガス流を熱交換器中に輸送するファンは、清浄なガス側に配置されており、この場合輸送ガスは、必要とされる乾燥温度に過熱されている。

【0045】

計量供給スクリューは、第1の微粉碎トラックおよび第2の微粉碎トラックのレベルで顆粒を微粉碎装置中に計量供給する。計量供給スクリューの上流の多孔板は、供給された材料を約10mmの直径を有する個々のストランドに分ける。

40

【0046】

過剰の輸送ガスは、除去される。

【0047】

入ってくる輸送ガスは、大気圧下で200～240の温度を有する。微粉碎装置の後、輸送ガスの温度は、120～130である。循環されるガスの体積は、1時間当たり1000～1200cm<sup>3</sup>（運転条件下で測定した）である（微粉碎装置の下流）。

【0048】

顆粒の処理量は、無水生成物約18kg/hの処理量を生じる程度に設定された。

【0049】

測定法：別記しない限り、メチルヒドロキシエチルセルロースおよびメチルヒドロキシ

50

プロピルセルロースの前記粘度を水中の無水セルロースエーテルの2質量%の濃度の溶液について20および2.55 s<sup>-1</sup>の剪断速度(機器: Haake Rotovisko VT550)で測定した。

【0050】

例1~4:

レーディッヒ(Loedige)社製の300 lの鋤刃型ミキサー中で、湿潤メチルヒドロキシエチルセルロース29kgのバッチ量(固体含量45質量%、22000 mPa s、DS(M)1.8およびMS(HE)0.1)を、50~30 で澱粉エーテル粉末(ヒドロキシプロピル澱粉、MS(HP)0.5、ブルックフィールド粘度水中で5質量%の濃度: 25 で1200 mPa s、100 rpmでスピンドル4、無水MHECに対して使用される量: 第1表参照)と強力に混合し、生じる顆粒が第1表中に記載された湿分含量(全質量に対して)を有する(顆粒の湿分含量)程度に水を噴霧する。その後、顆粒を微粉碎し、同時に上記の併せた微粉碎/乾燥装置中で乾燥させる。

10

【0051】

【表1】

第1表

例	HPS 質量%	顆粒の湿分 含量 質量%	嵩密度 g/l	0.063mm未満 の篩を通過する 画分 質量%	0.063mmの篩を 通過する画分の 変化	
1	0	71.5	170	32	-	C
2	0	74.5	165	29	-	C
3	2	72	256	52	+62.5% 例1に対して	I
4	2	73.5	262	57	+96.5% 例2に対して	I

20

【0052】

その他の点で比較可能な条件下で本発明による方法(例3および4)により、例C1およびC2(ヒドロキシプロピル澱粉の添加なし)と比較して篩系列中で明らかに高い嵩密度および明らかに高い微細画分を有する生成物が生じる。

30

【0053】

例5~7:

レーディッヒ(Loedige)社製の300 lの鋤刃型ミキサー中で、湿潤メチルヒドロキシエチルセルロース29kg(固体含量45質量%、22000 mPa s、DS(M)1.8およびMS(HE)0.1)を、50~30 で澱粉エーテル粉末(ヒドロキシプロピル澱粉、MS(HP)0.5、ブルックフィールド粘度水中で5質量%の濃度: 25 で1200 mPa s、100 rpmでスピンドル4、無水MHECに対して使用される量: 第2表参照)と強力に混合し、生じる顆粒が第2表中に記載された湿分含量(全質量に対して)を有する(顆粒の湿分含量)程度に水を噴霧する。顆粒を微粉碎し、同時に乾燥させる(上記参照)。

40

【0054】

【表 2】

第2表

例	HPS 質量%	顆粒の湿分 含量 質量%	嵩密度 g/l	0.063mm未満 の篩を通過する 画分 質量%	比較/本発明
5	0.5	75	191	29	I
6	5	73.5	296	74	I
7	10	72.5	278	36	I

10

## 【0055】

本発明による方法により、比較例1および2（ヒドロキシプロピル澱粉の添加なし）と比較して明らかに高い嵩密度を有する生成物が生じ、付加的に例6において、粉末度は、比較例2（ヒドロキシプロピル澱粉の添加なし）と比較して明らかに増加されている（+155%）。

## 【0056】

例8～10：

レーディッヒ（Loedige）社製の300 lの鋤刃型ミキサー中で、湿潤メチルヒドロキシエチルセルロース33kg（固体含量43質量%、32000mPas、DS（M）1.8およびMS（HE）0.1）を、50～30で澱粉エーテル粉末（ヒドロキシプロピル澱粉、MS（HP）0.5、ブルックフィールド粘度水中で5質量%の濃度：25で1200mPas、100rpmでスピンドル4、無水MHECに対する量：第3表参照）と強力に混合し、水を噴霧し、付加的にポリアクリルアミドの5質量%の濃度の水溶液（ブルックフィールド粘度10質量%の濃度の塩化ナトリウム溶液中での1質量%：25で500mPas、10rpmでスピンドル1、PAAm中のアクリル酸ナトリウム約10質量%、使用される量（無水MHECに対する活性物質の含量）：第3表参照）を、生じる顆粒中の第3表中に記載された湿分含量（全質量に対して）（顆粒の湿分含量）が生じる程度に混合しながら計量供給する。顆粒を微粉碎し、同時に乾燥させる（上記参照）。

20

30

## 【0057】

【表 3】

第3表

例	HPS 質量%	PAAm 質量%	顆粒の湿分 含量 質量%	嵩密度 g/l	0.063mm未満 の篩を通過す る画分 質量%	0.063mmの篩 を通過する画分 の変化	比較/本発明
8	0	0.3	73	174	51	-	C
9	0.5	0.3	74	253	65	+124% 例2に対する	I
10	2.0	0.3	72	275	71	+122% 例1に対する	I

40

## 【0058】

その他の点で比較可能な条件下で例9および10（本発明による方法）により、篩系列中で顕著に高い嵩密度および顕著に高い微細画分を有する生成物が生じる。比較例C8は、ポリアクリルアミド添加剤の添加の結果として、例1（ポリアクリルアミドの使用なし）と比較して著しい粉末度を有する生成物を生じるが、しかし、嵩密度の実質的な増加は

50

ない。これとは異なり、ヒドロキシプロピル澱粉およびポリアクリルアミド添加剤を有する例（例 9 および 10）は、比較可能な顆粒の湿分含量を留めているが、しかし、唯一の添加剤がヒドロキシプロピル澱粉であるような例（例 5 および 3）と比較して嵩密度および粉末度の点でさらなる増加を示す。

【0059】

例 11 ~ 12 :

例 8 ~ 10 の方法を繰り返すが、しかし、今度は澱粉エーテルを 5 質量% の濃度の水溶液として湿潤メチルヒドロキシエチルセルロースに添加し、強力に混合する。水およびポリアクリルアミドの 5 質量% の濃度の溶液を、混合しながら第 4 表に示された顆粒の湿分含量を生じる程度に計量供給する。顆粒を微粉碎し、同時に乾燥する。

10

【0060】

【表 4】

第 4 表

例	HPS 質量%	PAAm 質量%	顆粒の湿分 含量	嵩密度	0.063mm未満 の篩を通過する 画分 質量%	比較/本発明
11	1	0.3	72	254	64	I
12	2	0.3	73	303	73	I

20

【0061】

例 13 ~ 14 :

レーディッヒ (Loedige) 社製の 300 l の鋤刃型ミキサー中で、湿潤メチルヒドロキシプロピルセルロース 37 kg (固体含量 40 質量%、13000 mPas、DS (M) 1.9 および MS (HP) 0.1) を、50 ~ 30 で澱粉エーテル粉末 (ヒドロキシプロピル澱粉、MS (HP) 0.5、ブルックフィールド粘度水中で 5 質量% の濃度: 25 で 1200 mPas、100 rpm でスピンドル 4、無水 MHP C に対して使用される量: 第 4 表参照) と強力に混合し、生じる顆粒が第 4 表中に記載された湿分含量 (全質量に対して) を生じる (顆粒の湿分含量) 程度に水を噴霧する。顆粒を上記の併せた微粉碎/乾燥単位装置中で微粉碎し、同時に乾燥させるが、しかし、今度は、2000 rpm の回転速度で付加的に、バグフィルターと熱交換器との間で、水蒸気が輸送されたガス中で析出される程度に洗浄装置がガス流に接続される。今度は、窒素 20 m<sup>3</sup> / h は、循環路内に計量供給される。更に、この場合に使用される輸送ガスは、窒素であり、これは、熱交換器中で 155 ~ 175 に加熱される。循環されたガスの体積および微粉碎装置の下流の温度は、上記の値に相当する。無水 MHP C の処理量は、約 15 kg / h であった。

30

【0062】

【表 5】

第 5 表

例	HPS 質量%	顆粒の湿分 含量 質量%	嵩密度 g/l	0.063mm未満の 篩を通過する画分 質量%	比較/本発明
13	0	65.4	257	12	C
14	2.0	65.3	353	33	I

40

50

## 【0063】

その他の点で比較可能な条件下で本発明による方法により（例14）、MHPCを使用しかつ窒素流中で乾燥する場合であっても、比較例C13（ヒドロキシプロピル澱粉添加剤なし）と比較して篩系列中で顕著に高い嵩密度および顕著に高い微細画分を有する生成物が生じる。

## 【0064】

例15～18：

粉末形のメチルヒドロキシエチルセルロース（湿分含量：2.3質量%、22000 mPas、DS(M)1.8およびMS(HE)0.1）を無水澱粉エーテル粉末と無水粉末の形で強力に混合した。使用された澱粉エーテルは、例3および4の場合と同様のもの

10

## 【0065】

## 【表6】

第6表

例	HPS 質量%	嵩密度 g/l	比較/本発明
15	0	200	C
16	2.0	208	C
17	5.0	215	C
18	10.0	223	C

20

## 【0066】

粉末状のメチルヒドロキシエチルセルロースと澱粉エーテル粉末との乾式配合は、嵩密度のわずかな増加を示すにすぎない。従って、本明細書中では、添加剤としての澱粉エーテル2質量%の添加は、8g/lの嵩密度の増加を生じるにすぎない。他面、本発明の方法において、例3または4により、添加剤としての澱粉エーテル2質量%の添加は、80g/lを上回る嵩密度を生じる。

30

## フロントページの続き

- | (51) Int.Cl. <sup>7</sup>  | F I           | テーマコード(参考) |
|--|---------------|------------|
| C 0 8 L 33:26 )  | C 0 8 L 33:26 |            |
| (74)代理人 100114890<br>弁理士 アインゼル・フェリックス＝ラインハルト                                   |               |            |
| (74)代理人 230100044<br>弁護士 ラインハルト・アインゼル  |               |            |
| (72)発明者 ハルトヴィヒ シュレージガー<br>ドイツ連邦共和国 パート ファリングポステル フォクタイシュトラッセ 2 0               |               |            |
| (72)発明者 エーリク・アンドレーアス クローア<br>ドイツ連邦共和国 ヴァルスローデ キルヒボイツェン 1 8 2                   |               |            |
| (72)発明者 ヴォルフガング ダンホルン<br>ドイツ連邦共和国 ゾルタウ ヴィルヘルム・ブッシュ・シュトラッセ 4                    |               |            |
| (72)発明者 ハンス・ユルゲン ユール<br>ドイツ連邦共和国 パート ファリングポステル ブルーメンラーゲ 4 7                    |               |            |
| (72)発明者 アルネ・ヘニング クル<br>ドイツ連邦共和国 ボムリッツ フィヒテンリング 1 6                             |               |            |
| (72)発明者 グンター ヴェーバー<br>ドイツ連邦共和国 クレーフェルト ケマーホ・フシュトラッセ 2 9 5                      |               |            |
| (72)発明者 ペーター ヴォルバース<br>ドイツ連邦共和国 ヴァルスローデ アルター ポストヴェーク 2 2                       |               |            |
| F ターム(参考) 4C090 AA07 BA28 BA30 DA10 DA40<br>4J002 AB031 AB042 BG133 DE026 GL00 |               |            |