

気流層型シラスマイクロバルーン 連続製造装置の開発

半崎 伸司* 八代 尚作** 大角 義浩***

伊地知 和也*** 根津 修美雄**** 上村 芳三*** 幡手 泰雄***

DEVELOPMENT OF ENTRAIN BED REACTOR FOR CONTINUOUS PRODUCING SHIRASU MICROBALLON

Shinji HANZAKI, Shousaku YATSUSHIRO, Yoshihiro OHZUNO,

Kazuya IJICHI, Sumio NEZU, Yoshimitsu UEMURA and Yasuo HATATE

Shirasu is a volcanic glass, and is a cheap and abundant resource. Hollow spheres can be obtained from Shirasu articles if they are heated up at high heating rates and maintained at about 1300K for a certain period (more than subseconds). The hollow spheres, so-called Shirasu balloons(SB), have some qualities as a building material, such as low density, fireproofness and thermal insulation. The size of common SB ranges from 20 to 600 μ m. We can expect that smaller SB, which should be called Shirasu microballoons (SMB), will have superior characteristics, such as higher mechanical strength, compared with SB. We have proposed an Entrain bed reactor (EBR) to produce SMB. In this study, the effects of experimental conditions on the properties of SMB were investigated.

Keywords: Shirasu, volcanic glass, hollow spheres, SMB, EBR

1. 緒言

シラスとは火山噴出物が堆積、風化することによってできた白色の土壌であり、ガラス質に富み、数%の強熱減量分を含むという特徴を有する¹⁾。

2001年8月31日受理

* 博士前期課程応用化学工学専攻

** 元応用化学工学科

*** 応用化学工学科

**** チョダウテ株式会社

鹿児島県に広がるシラス台地は県本土総面積の約50% (3427km²) にわたって分布しており、総量は推定で約90km³といわれている²⁾。このシラス台地は農地として不適であり、降雨時の土砂崩れなどの災害を引き起こす原因にもなっていることから、シラスを安価な資源として有効に活用するための技術の開発が期待されている。そこで我々はシラスバルーン製造に着目した。シラスバルーンとはシラスを約1000℃の高温下で急速加熱す

ることによって得られる発泡体である。その発泡機構は高温下でシラス粒子のガラス質の軟化と内部に包含している結晶水の蒸発が同時に起こることによるとされている³⁾。シラスバルーンは無機中空体であることから、軽量、不燃性、断熱性など様々な特徴を有し、これらの特徴を生かして無機建材、自動車部材、塗料などの軽量フィラーや土壌改良材などに用いられている⁴⁾。

現在市販されているシラスバルーンの粒子径は20~600 μm であり、これ以下のものに関しては量産、商品化に至っていない。そこで本研究では、粒子径20 μm 以下の微粒シラスバルーン（シラスマイクロバルーン）の製造を目的とし、気流層型シラスマイクロバルーン連続製造装置を考案した^{6)~11)}。シラスバルーンは微粒化によって機械的強度の増加などの効果が得られ、更なる付加価値の上昇や需要の拡大が期待できる。

2. 実験

2.1 原料シラス

原料シラスは粒子径の異なる3種類のジェットミル粉砕吉田シラス（それぞれシラスA、シラスB、シラスCとする）と入来町（鹿児島県）のシラスを用いた。吉田シラスは南九州で産出されるシラスの中では強熱減量分が比較的多く含まれており、またその粒度構成は75 μm 以下の微細粒分が大半を占めるといった特徴を有している³⁾。また、入来町シラスは、天然の入来町のシラスを乾燥機（100 $^{\circ}\text{C}$ ）で乾燥し、ジェットミルを使用せずに手で解砕した後125 μm の目開きのふるいにかけて原料として使用した。これは、吉田シラスは本来高価なシラスである上で、ジェットミル粉砕の際に更にコストがかさむ。入来シラスはそのような、

コストが全くかからないという利点がある。表1、図-1にそれぞれ4種類の原料シラスの平均粒子径及び粒子径分布を示す。

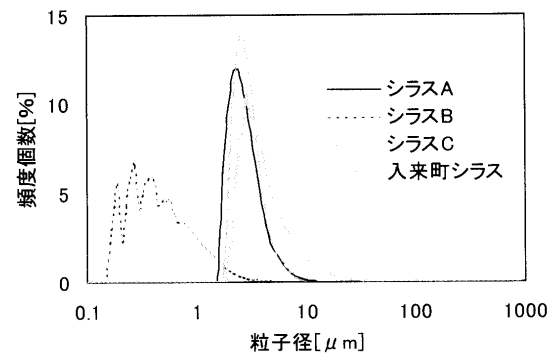


図-1 原料シラスの粒子径分布表

表-1 使用した原料シラスの平均粒子径

	体積平均径 [μm]	表面積平均径 [μm]	個数平均径 [μm]
シラスA	5.57	4.34	3.06
シラスB	5.30	2.42	0.607
シラスC	4.74	4.05	3.19
入来町シラス	22.87	11.26	5.06

図-2~5 に原料シラスの電子顕微鏡写真を示す。



図-2 シラスAの電子顕微鏡写真

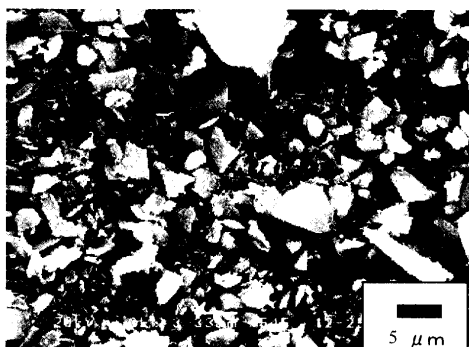


図-3 シラス B の電子顕微鏡写真



図-4 シラス C の電子顕微鏡写真

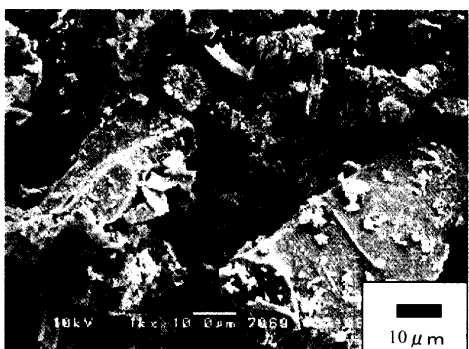


図-5 入来町シラスの電子顕微鏡写真

スの定量的、連続的な供給を可能にした。図-6 に使用したシラス供給装置図を示す。テーブルフィーダーのテーブルはモーターによって減速機を通じて1~100rpmで回転させられ、モーターの回転数を制御することによりシラスの供給量を1.1~38g/minに調節することが可能である。シラス吸引装置はシラスを空気に同伴させてシラス製造装置内に送り込むために用いた。その仕組みは内径1.2mm、長さ15mmのノズルからそのノズル上方に設置した内径6mmの吸引管に空気を高線速で送り込むことによって周囲に吸引力を生じさせ、凝集したシラスを解砕しつつ管内に吸引するというものである。吸引されたシラスは管内を空気と共に上昇し、シラス製造装置内に供給された。

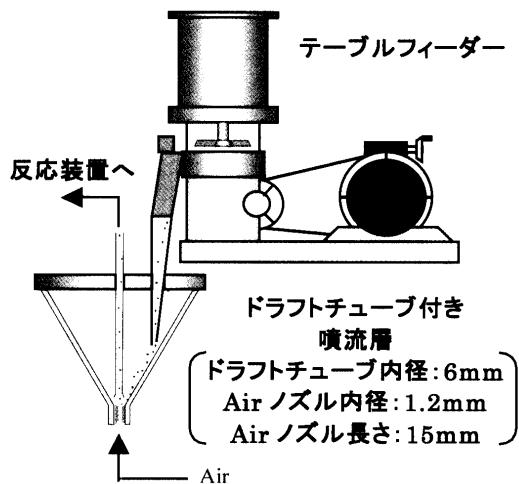


図-6 シラス供給装置

2.2.1 シラス供給装置

本研究で使用したシラスは微粒なため付着力が強く定量的な供給が困難であるという問題がある。我々はシラスの定量供給装置としてテーブルフィーダーを用い、またそれと本研究で考案したシラス吸引装置を組み合わせるによりシラ

2.2.2 シラスマイクロバルーン連続製造装置

本研究で開発した気流動層型シラスマイクロバルーン連続製造装置を図-7に示す。

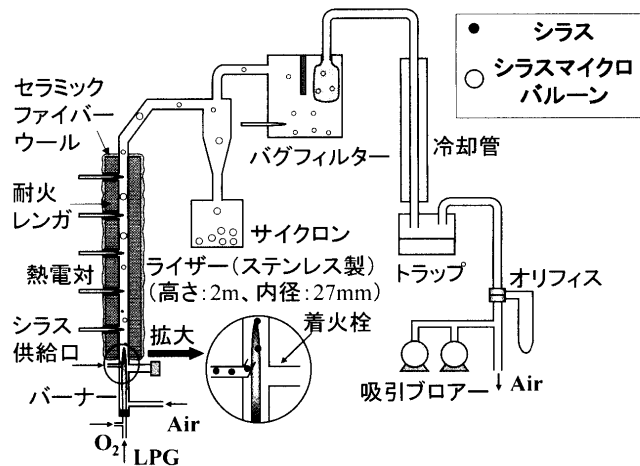


図-7 気流動層型シラスマイクロバルーン
連続製造装置

シラスのバルーン化部であるライザーは高さ 2m、内径 21mm のステンレス (SUS316) 製円管である。ライザー内部は LPG と酸素の燃焼によって加熱し、外側に耐火レンガと耐熱シリカウールを巻いて保温した。またライザーの 5 箇所にも熱電対を挿入して内部の温度を測定した。原料シラスは空気に同伴させてライザー下部に挿入された内径 6mm のステンレス管から噴出させた。ステンレス管より噴出されたシラスはライザー上昇中に急速加熱されて発泡し、サイクロン及びバグフィルターによって捕集された。燃焼ガスはオリフィス流量計によって流量を測定した後、装置外へ排出した。また、装置内は吸引ブロアーによって減圧にした。図-7 に示したステンレス製ライザーにより実験を行った場合、ステンレス管の酸化による装置の破損、管壁への大量のシラスの付着、長時間の連続運転が困難といった問題点があったため、新たに図-8 に示すような改良型ライザーを作成した。

改良型ライザーは高さ 1.3m、内径 60mm、外径 140mm の円筒型であり、材質は内壁が厚さ 30mm の耐熱レンガ (イソライト耐熱レンガ LBP-30) で、その外

側をステンレス管 (SUS316) によって密閉した。ライザー底部 4 箇所にも空気吸引口を取り付け、底部より 10cm 上方から 10cm 間隔で 3 箇所、シラス供給口を取り付けた。バーナー (MPN-2D 型ノズルミックス式パイロットバーナー) についても LPG を酸素のみによって燃焼させていたが、空気でも燃焼できるものに取り換えた。図-9 にバーナー図を示す。

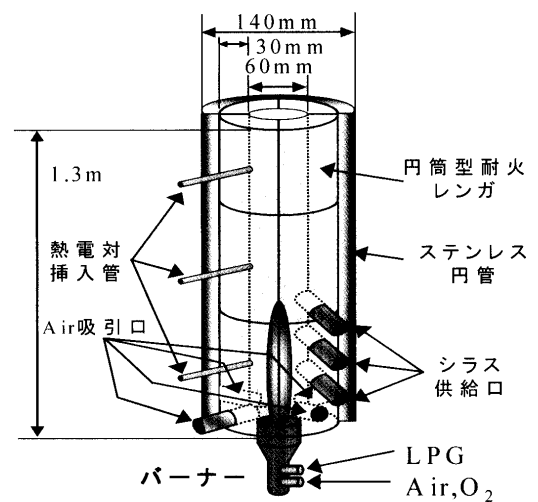


図-8 改良型ライザー

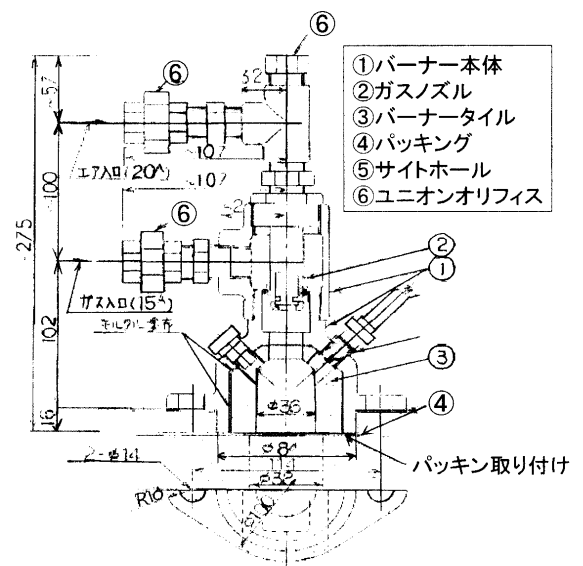


図-9 バーナー図

改良を加えたレンガ炉型ライザーのシラスマイクロバルーン連続製造装置図を図-10 に示す。実験手順は以下のように実施した。最初にサイクロンからバグフィルターにかけてリボンヒーターによって予熱し、冷却水を流し、コンプレッサーによりシラス供給装置内（改良型ライザーの場合はバーナーにも）空気を流した。その後、吸引ブローアーにより反応装置内を減圧にし、LPG と酸素を流して着火した。

そしてLPGの燃焼によってライザー一部が所定の温度に達したら、テーブルフィーダー内に原料シラスを投入し、モーターの電源を入れてシラスの供給を開始した。シラス供給終了後、消火して装置を自然冷却し、冷却後、装置を解体してサイクロン及びバグフィルター内の捕集物を回収した。

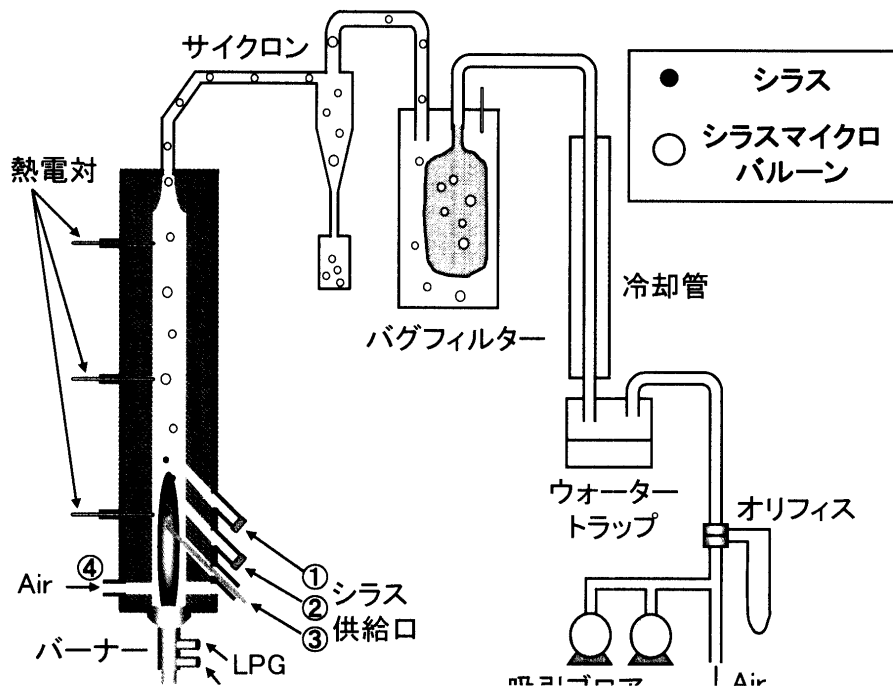


図-10 レンガ炉型シラスマイクロバルーン連続製造装置図

表2及び3にステンレス製ライザーとレンガ炉型ライザーによる実験条件を示す。表2及び3の原料シラス供給速度はテーブルフィーダーの検量線より算出した。シラス供給口のバーナーからの距離はシラスを噴出させるステンレス管をライザー管端まで挿入した位置のバーナー上端からの距離であり、角度はステンレス管出口の上向きの角度を示す。そして気体流量はシラス供給中の平均値である。

表-2 ステンレス製ライザーによる実験条件

Run No.	ライザー下段温度 [°C]	ライザー下段線速度*1 [°C]	シラス供給量 [g]	シラス供給時間 [min]	シラス供給速度 [g/min]	サイクロン			バグフィルター			合計	
						捕集量 [g]	捕集率 [%]	発泡状態	捕集量 [g]	捕集率 [%]	発泡状態	捕集量 [g]	捕集率 [%]
10	1056	2.81	170	100	1.70	68.5	40.1	C	42.7	25.0	C	111	65.1
11	887	2.88	118	194	0.608	86.1	73.2	C	19.1	16.2	C	105	89.4
12	1004	2.71	24.0	50.0	0.480	13.8	57.4	B	7.04	29.3	B	20.8	86.7
13	1132	3.56	71.3	67.0	1.06	31.4	44.1	B	12.1	17.0	B	43.5	61.1
14	1049	3.24	141	120	1.18	38.5	27.3	B	29.4	20.9	A	67.9	48.2
15	1246	4.06	140	120	1.17	54.8	39.2	A	26.4	18.9	A	81.2	58.1
16	1005	2.84	142	120	1.18	51.7	36.4	A	44.6	31.3	A	96.3	67.7
17	1171	2.86	100	90.0	1.11	29.1	29.1	A	20.9	20.9	A	50.0	50.0
18	1054	3.25	60.0	60.0	1.00	24.6	40.9	A	2.70	4.50	A	44.8	74.4

表-3 レンガ炉型ライザーによる実験条件

Run No.	原料シラス	シラス供給速度 [g/min]	シラス供給口		吸引ブローアーク気体流量 [cc/s]	バーナー気体流量 [cc/s]			シラスフィーダー送込 Air 流量 [cc/s]
			位置	角度		LPG	酸素	Air	
10	B	1.70	③	90°	1652	40.0	0	1015	351
11	B	0.550	①	90°	1969	40.0	0	1015	188
12	A	0.550	③	90°	1660	40.0	0	1015	351
13	C	1.10	③	90°	1995	52.5	0	1261	334
14	C	1.10	④	60°	1927	52.0	0	1255	351
15	C	1.10	④	60°	2048	70.0	102	1250	399
16	C	1.10	④	60°	1729	52.0	71	955	410
17	C	1.10	④	60°	1515	52.0	101	810	410
18	入来町	1.10	④	60°	1925	52.0	0	1250	410

3. 結果と考察

3.1 ライザー内温度、気体線速度及び捕集物の収率

表4及び5にステンレス製ライザーとレンガ炉型ライザーを用いた実験の結果をそれぞれ示す。

表-4 実験結果(ステンレス製ライザー)

Run No.	ライザー下段温度 [°C]	ライザー下段線速度 [°C]	シラス供給量 [g]	シラス供給時間 [min]	シラス供給速度 [g/min]	サイクロン捕集物			バグフィルター捕集物			合計	
						捕集量 [g]	捕集率 [%]	発泡状態	捕集量 [g]	捕集率 [%]	発泡状態	捕集量 [g]	捕集率 [%]
1	1183	9.13	41.8	38.0	1.10	7.87	18.9	A	5.64	13.5	A	13.5	32.4
2	1162	9.10	7.70	7.00	1.10	1.75	22.7	A	1.59	20.6	A	3.34	43.3
3	1211	10.4	99.0	90.0	1.10	25.1	25.3	A	20.2	20.4	A	45.3	45.7
4	1183	10.0	99.0	90.0	1.10	27.0	27.6	A	19.3	19.7	A	46.3	47.3
5	1073	10.6	99.0	90.0	1.10	16.8	17.0	A	18.6	18.8	A	35.4	35.8
6	1183	6.01	42.3	64.0	0.661	9.28	21.9	A	5.78	13.7	B	15.1	35.6
7	1200	12.3	95.4	90.0	1.06	21.7	22.8	A	17.1	18.0	A	38.8	40.8
8	1299	10.2	112	100	1.12	15.1	13.6	A	24.3	21.8	A	39.4	35.4
9	942	7.90	50.3	120	0.419	11.2	22.3	B	0.419	0.833	B	11.6	23.1

ステンレス製ライザーを用いた実験における捕集率は 35~50%程度であり、供給シラスの残りの大半はバーナー付近の管壁に融着していた。レンガ炉型ライザーを用いた実験では、レンガ炉にすることにより以前より長時間の運転が可能となり、シラス供給量、シラスマイクロバルーン製造量と

表-5 実験結果(レンガ炉型ライザー)

Run No.	ライザー下段温度 [°C]	ライザー下段線速度 ^{※1} [°C]	シラス供給量 [g]	シラス供給時間 [min]	シラス供給速度 [g/min]	サイクロン			バグフィルター			合計	
						捕集量 [g]	捕集率 [%]	発泡状態	捕集量 [g]	捕集率 [%]	発泡状態	捕集量 [g]	捕集率 [%]
10	1056	2.81	170	100	1.70	68.5	40.1	C	42.7	25.0	C	111	65.1
11	887	2.88	118	194	0.608	86.1	73.2	C	19.1	16.2	C	105	89.4
12	1004	2.71	24.0	50.0	0.480	13.8	57.4	B	7.04	29.3	B	20.8	86.7
13	1132	3.56	71.3	67.0	1.06	31.4	44.1	B	12.1	17.0	B	43.5	61.1
14	1049	3.24	141	120	1.18	38.5	27.3	B	29.4	20.9	A	67.9	48.2
15	1246	4.06	140	120	1.17	54.8	39.2	A	26.4	18.9	A	81.2	58.1
16	1005	2.84	142	120	1.18	51.7	36.4	A	44.6	31.3	A	96.3	67.7
17	1171	2.86	100	90.0	1.11	29.1	29.1	A	20.9	20.9	A	50.0	50.0
18	1054	3.25	60.0	60.0	1.00	24.6	40.9	A	2.70	4.50	A	44.8	74.4

ここで、ライザー下段温度、線速度はそれぞれバーナー上部 20cm (Run No. 10 は 40cm) における管中心の熱電対温度、気体線速度であり、シラス供給中の平均値である。生成物の状態は A: 8割以上がシラスマイクロバルーン、B: シラスマイクロバルーン (1~7割) と未発泡シラスが混在、C: ほぼ全て未発泡シラスであり、電子顕微鏡観察により判断した。

共に増加した。バーナー付近の管壁へのシラス付着量は減少し、収率も増加した。しかし、シラスの供給をバーナーから 10cm、30cm 上部 (図-10 中の①と③) から行った場合は捕集物中に未発泡のシラスが多く含まれていた。また原料にシラス B 粒子を用いた実験では捕集物は全く発泡していない状態だった。原料シラスの供給をバーナーの真横 (図-10 中の④) から行った場合はシラスの

発泡状態は改善され、バグフィルター捕集物、サイクロン捕集物共に発泡したシラスマイクロバルーンが得られた。表-5 中の Run18 の結果からわかるように、原料に入来町シラスを用いた実験においてもシラスを発泡させることができた。

3.2 捕集物の電子顕微鏡写真

図-11 及び 12 にステンレス製ライザーによる実験で得られた Run4、7 のサイクロン捕集物の電子顕微鏡写真を示す。また、図-13、14 及び 15 にレンガ炉型ライザーによる実験で得られた Run14、17、18 のサイクロン及びバグフィルター捕集物の電子顕微鏡写真を示す。

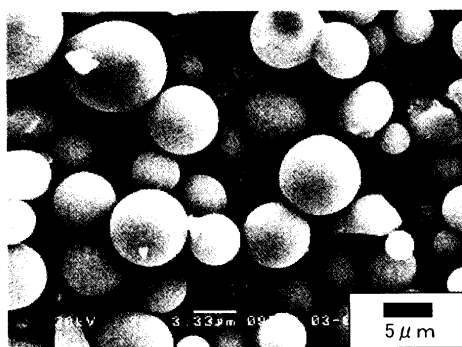


図-11 Run4におけるサイクロン捕集物の電子顕微鏡写真

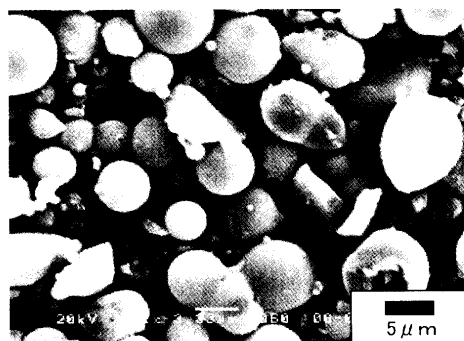


図-12 Run7におけるサイクロン捕集物の電子顕微鏡写真

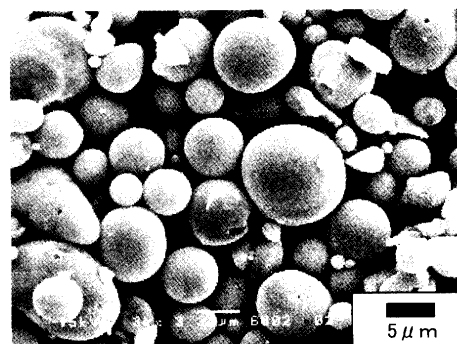


図-13 Run14におけるサイクロン捕集物の電子顕微鏡写真

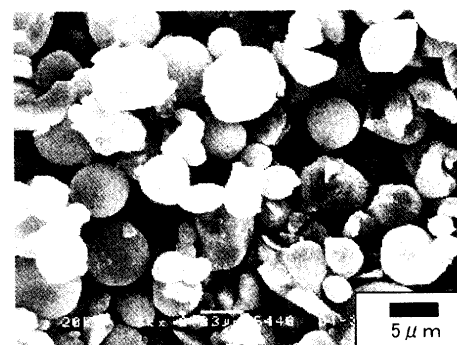


図-14 Run17におけるサイクロン捕集物の電子顕微鏡写真

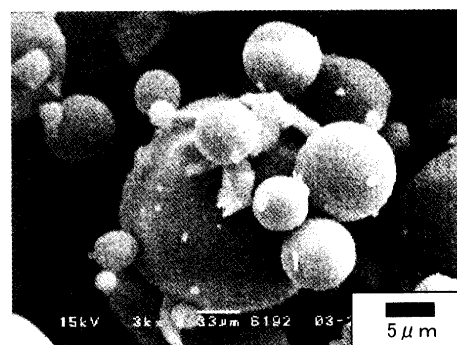


図-15 Run18におけるサイクロン捕集物の電子顕微鏡写真

電子顕微鏡写真より、本研究で得られたシラスマイクロバルーンはきれいな球形を成して発泡していることが確認できた。図-11 及び 12 と図 13 及び 14 からわかるように気流層型装置におけるシ

ラスの発泡では、バーナーの火炎温度と火炎内のシラス滞留時間が重要なファクターであり、火炎温度が高く、滞留時間が長いほどより球形に近いシラスマイクロバルーンが得られていた。

3.3 捕集物の嵩密度及び粒子径分布

表-6 にサイクロン及びバグフィルター捕集物の嵩密度を示す。

表-6 サイクロン及びバグフィルター捕集物の嵩密度

Run No.	嵩密度 [kg/m ³]	
	サイクロン捕集物	バグフィルター捕集物
8	1340	861
14	743	813
15	1110	1020
16	691	1746
17	1080	915

捕集物中にはステンレス屑やレンガ片などの不純物が含まれている場合があり、嵩密度が原料シラスよりも高い値を示すものがあった。嵩密度が最も低いもので Run No. 16 のサイクロン捕集物が原料シラス 1110kg/m³ に対して 691×10³kg/m³ という値を示した。また図-16～20 に図 11～15 において電子顕微鏡写真で示したサイクロン及びバグフィルター捕集物の粒子径分布を示す。本研究で得られたシラスマイクロバルーンは粒子径 10μm 以下のものがほとんどであり、特にバグフィルター捕集物については原料よりも低い粒子径分布を示していた。しかし、入来町シラスを原料として用い

て得られた捕集物は、原料よりも高い粒子径分布を示した。

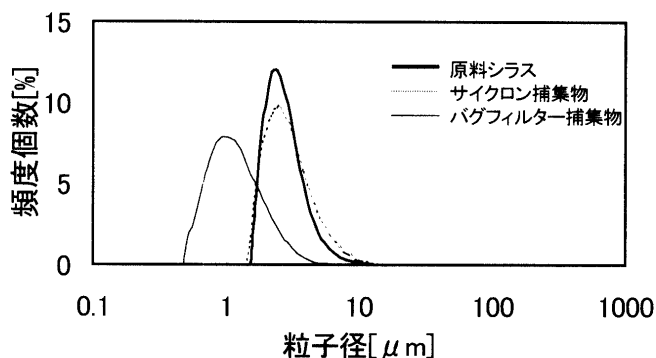


図-16 Run4 における捕集物の粒子径分布

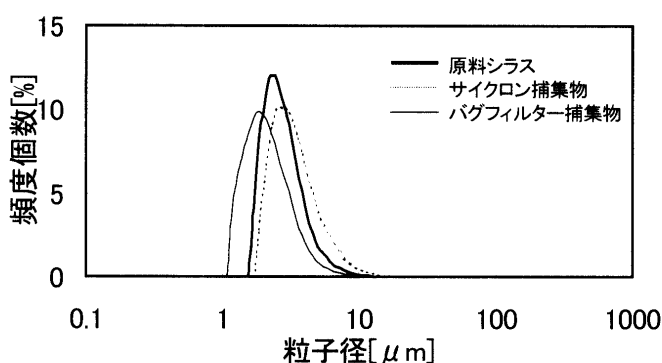


図-17 Run7 における捕集物の粒子径分布

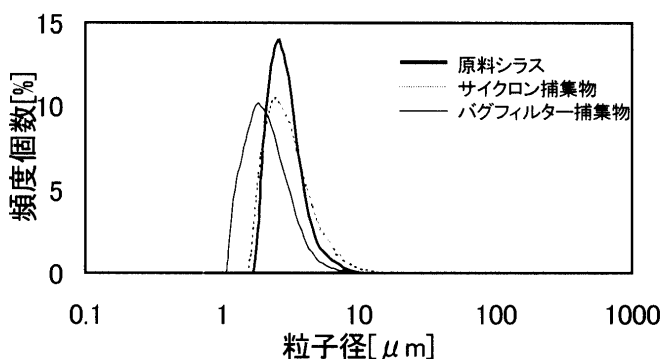


図-18 Run14 における捕集物の粒子径分布

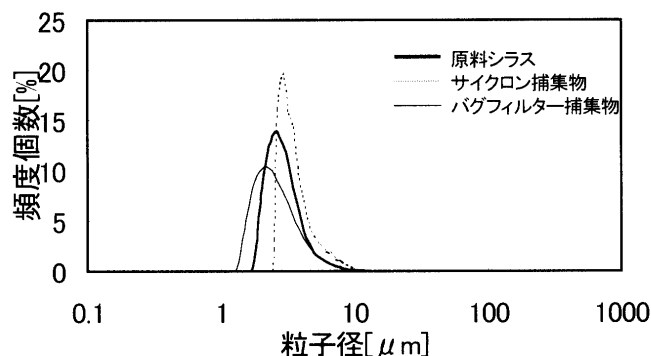


図-19 Run17における捕集物の粒子径分布

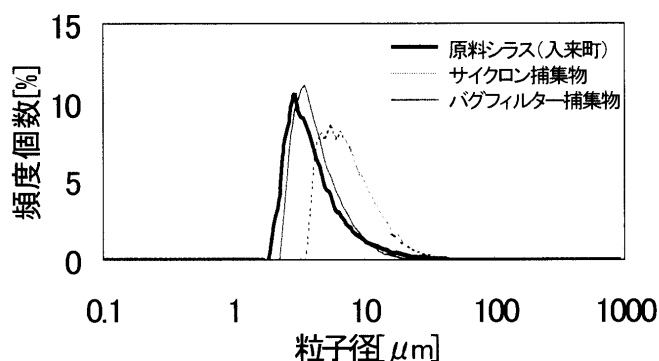


図-20 Run18における捕集物の粒子径分布

4. 結言

テーブルフィーダーとシラス吸引装置を組み合わせたシラス供給装置を用いることにより粒子径 $10\mu\text{m}$ 以下の微細シラスの連続的、定量的な供給が可能であった。生成物の捕集をバグフィルターによって行う及びライザーの材質を耐火レンガにするといった改良を施すことによってより長時間の運転が可能となり、シラスマイクロバルーンの捕集量、捕集率共に増加させることができた。気流層型反応装置におけるシラスの発泡にはバーナ

一の火炎が重要な役割を果たしており、火炎温度や火炎内のシラス滞留時間によりシラスの発泡状態に違いが見られた。また、原料に入来町シラスを用いた実験においてバグフィルター捕集物、サイクロン捕集物と共にきれいな球形をしていた。

参考文献

- 1) 袖山研一、目義雄、神野好孝、関博光；“ガラス質火山砕屑物からの微粒シラスバルーンの合成,” *Journal of the Japan Society of Powder and Powder Metallurgy*, **42**(10), 1128-1135 (1995)
- 2) 岩松暉、福重安雄、郡山榮；地学雑誌, **98**, 379-400(1989)
- 3) 木村邦夫；“シラスバルーン 火山ガラス質堆積物を原料とする微細中空ガラス球状体,” *Fragrance Journal*, **18**(10), 101-103(1990)
- 4) (財)日本産業技術振興協会；“シラスバルーンの市場動向調査報告書,” (1994)
- 5) 袖山研一、目義雄、神野好孝、関博光、西本研了、矢崎誠；“媒体流動炉を用いた微粒シラスバルーンの製造プロセス,” *Journal of the Society of Power Technology Japan*, **34**(9), 55-61(1997)
- 6) 本田秀隆；“シラスマイクロバルーン製造装置の開発,” 平成9年度鹿児島大学修士論文(1998)
- 7) 八代尚作；“高速流動層によるシラスマイクロバルーンの連続製造,” 平成10年度鹿児島大学卒業論文(1999)
- 8) 半崎伸司；“シラスの有効利用技術の開発,” 平成11年度鹿児島大学卒業論文(2000)
- 9) Uemura, Y., S. Nezu, N. Hamakawa, K. Ijichi, Y. Ohzuno

and Y. Hatate; "Application of High-Velocity Fluidized Bed Reactor for Producing Hollow Inorganic Microspheres from Volcanic Glass Particles," *J. Chem. Eng. Japan*, **31**(2), 298-301 (1998)

10) Uemura, Y., S. Nezu, H. Honda, Y. Ohzuno, K. Ijichi and Y. Hatate; "Inorganic Microballoon Production From Shinju-Gan Using an Entrained Bed Reactor," *Korean Journal of Chemical Engineering*, **16** (6), 837-839 (1999)

11) 八代尚作 ; "高速流動層型シラスマイクロバルーンの連続製造装置の開発," 平成 12 年度鹿児島大学修士論文(2001)