

平成 30 年 6 月 20 日現在

機関番号：12601

研究種目：挑戦的萌芽研究

研究期間：2016～2017

課題番号：16K15011

研究課題名(和文)加熱圧縮によるセルロース系バイオマスの水熱処理

研究課題名(英文)Hydrothermal treatment of cellulosic biomass by hot press

研究代表者

芋生 憲司 (Imou, Kenji)

東京大学・大学院農学生命科学研究科(農学部)・教授

研究者番号：40184832

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 2,900,000円

研究成果の概要(和文)：本研究では、セルロース系バイオマスを原料としたエタノール製造におけるエネルギー消費とコストの低減を目的として、加熱圧縮による酵素糖化前処理に関する研究を行った。加熱圧縮処理は、試料をピストンで加圧し間隙をなくすことにより試料中の水を液体に維持することで、30%前後の低水分でも水熱反応を可能とする技術である。加熱圧縮処理は草本バイオマスの稲わら、エリアンサスに対して高い酵素糖化前処理効果を持つことを確認した。また、密閉式反応器により、ヘミセルロース由来成分の回収が可能であることを確認した。加熱圧縮処理では、反応時の水の量が水熱処理と比べ1/20となるため、消費エネルギーの大幅な削減が可能となる。

研究成果の概要(英文)：In this study, hot press treatment for enzymatic saccharification of lignocellulosic biomass was evaluated. Water in the sample is kept liquid during hot press treatment and a reaction similar to hot compressed water treatment is shown under low water content around 30%. Hot press treatment worked well on herbaceous biomass such as rice straw or erianthus. C5 sugars from hemicellulose can be recovered by a sealed reactor and reaction pressure can be lowered from 16 MPa to 4 MPa. Hot press treatment was expected to reduce energy consumption of pretreatment for enzymatic saccharification drastically because the amount water in the reactor of hot press treatment was about one twentieth of that in the reactor of hydrothermal treatment.

研究分野：農業機械学

キーワード：再生可能エネルギー バイオ燃料 エタノール バイオマス

### 1. 研究開始当初の背景

木質系や草本系の未利用バイオマス为原料としたバイオエタノール生産の実証試験が広く行われているが、コストの高さが課題となっており普及には至っていない。エタノール生産コストを押し上げる要因の一つとして原料の収集コストが挙げられる。バイオマス、特に稲わらなどの草本系バイオマスは嵩高いため輸送効率が低い。また、草本系バイオマスは水分が多いため、水分15%程度まで乾燥させないと腐敗が進行する。これらの要因によりバイオマス収集のコストが高くなっていると考えられる。筆者らはこれまで、エタノール原料としての稲わらの効率的な収集コストの低減に取り組んできた。稲わらを圧縮成型することで長期間の保存が可能となり、減容化により輸送コストの低減が期待できること、圧縮成型時に高水分の状態を加熱（加熱圧縮処理）することにより水熱反応に類似する反応が生じ、酵素糖化性が向上することを確認した。水熱反応は通常水分90%程度の高水分の状態で行われる。加熱圧縮処理では水分30%の低水分の状態でも加圧によりバイオマスから浸みだした自由水とバイオマスが接触し、水熱反応と同様の反応場が形成されるためであると考えられる。一方、加熱圧縮処理では、ヘミセルロース由来のC5糖がほとんど回収できないことが課題である。

### 2. 研究の目的

これまでの研究で、温度180℃、圧力16MPa程度で、含水率30%程度の稲わらを加熱圧縮すると、酵素糖化の前処置効果が得られることがわかった。しかし、セルロース由来のC6糖は高収率で回収できたが、ヘミセルロース由来のC5糖はほとんど回収できなかった。これはC5糖が過分解されているためと考えられる。そこで本研究では、加熱圧縮が糖化を容易にするメカニズムを明らかにし、より効果的な処理方法を見いだすとともに、C5糖の過分解を防ぐ処理条件を検討した。

### 3. 研究の方法

#### (1) 高基質濃度での酵素糖化試験

蒸留で消費されるエネルギーの観点から、蒸留前のエタノール濃度は5%以上であることが必要であるとされている。エタノール濃度5%を達成するには、酵素糖化後のグルコース濃度が10%以上となる必要がある。そこで、酵素糖化時の基質濃度を5-30%とした加熱圧縮処理試料の酵素糖化試験を行った。

#### (2) 各種バイオマスを試料とした加熱圧縮処理試験

加熱圧縮処理の各種バイオマスに対する効果を検証するために、バガス、エリアンサス、スギ、タケを試料として加熱圧縮処理試験を行い、処理後の試料の酵素糖化性を評価

した。また、刈り取り直後の未乾燥稲わらを試料とした試験も行った。

#### (3) 密閉型反応器での加熱圧縮反応

これまでの反応器では、ピストンとシリンダー間のクリアランスに、反応により生成した物質が浸み出していた。そこで、反応生成物の浸みだしを防ぐ密閉型の容器を製作した。実験試料は水分30%に調製した稲わらとし、加熱圧縮処理条件は表1に示す条件で加熱圧縮処理を行った。処理後の試料の成分分析および酵素糖化試験を行った。

#### (4) 加熱圧縮処理の消費エネルギー

加熱圧縮処理に必要なエネルギーを算出し、一般的な水熱処理に必要なエネルギーとの比較を行った。加熱圧縮処理は、パーティクルボード製造工程を参考に算出した。

### 4. 研究成果

#### (1) 高基質濃度での酵素糖化試験

基質濃度15%以下では、糖化率80%以上を示した。基質濃度30%では72時間後の糖化率は72%、グルコース濃度95g/Lであった。基質濃度30%では、基質は水分70%を含む固体の状態であり、攪拌が困難である。これが糖化低下の要因と考えられる。そこで、糖化初期に基質を段階的に投入することにより攪拌性を上げ、糖化率を改善することを試みた。最終基質濃度30%となるように、基質を2.5時間ごとに6回に分けて投入し、酵素糖化を行った。その結果、糖化率が78%まで上がることが確認された。

基質濃度30%で72時間糖化した後の糖化残渣を回収し水を添加したところ、糖化反応の進行が確認された。そこで、図1に示す糖化サイクル（残渣再糖化プロセス）により、糖化残渣からのグルコースの回収を試みた。その結果、通算の糖化率80%、最高グルコース濃度105g/Lとなった。糖化残渣を再糖化することにより糖化率が上がり、エタノール生産の目安となるグルコース濃度10%(100g/L)を達成可能であることが確認された。

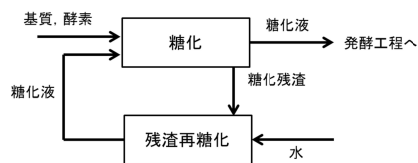


図1 残渣再糖化プロセスの概要

#### (2) 各種バイオマスを試料とした加熱圧縮処理試験

各種バイオマスでの加熱圧縮処理試験の結果を表1に示す。刈り取り直後の稲わら、エリアンサスは加熱圧縮処理により酵素糖化率が80%程度となった。一方、バガスでは糖化率44.0%、スギ16.8%、タケ7.4%という結果であった。したがって、加熱圧縮処理は稲わら、エリアンサスの酵素糖化前処理に利

用可能であるが、バガス、スギ、タケに対する酵素糖化前処理効果は低いことが確認された。

表1 各種バイオマスの加熱圧縮処理

	処理条件	糖化率 (%)
稲わら (収穫直後)	180□	84.3
	16 MPa	
エリアンサス	180□	79.6
	16 MPa	
バガス	180□	44.0
	16 MPa	
スギ	200□	16.8
	16 MPa	
タケ	200□	7.4
	16 MPa	

### (3) 密閉型反応器での加熱圧縮反応

密閉式反応器を使用した加熱圧縮処理後の稲わら試料の成分分析の結果を図2,3に示す。反応器を密閉し、クリアランス部への反応生成物の浸みだしを防ぐことによりヘミセルロース由来成分の回収が可能となった。

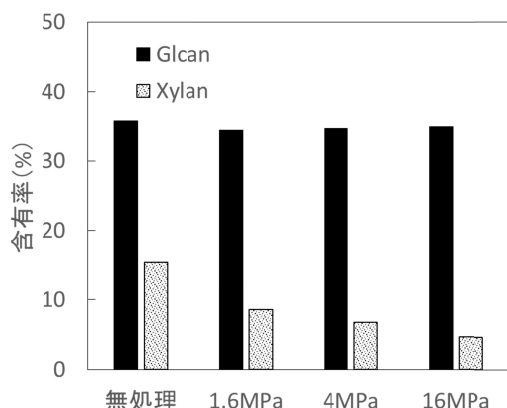


図2 加熱圧縮処理試料の組成 (処理温度 180□)

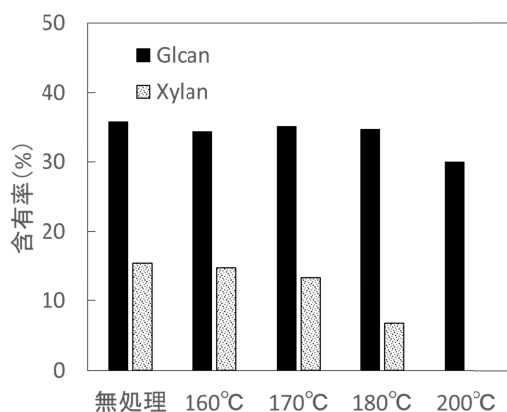


図3 加熱圧縮処理試料の組成 (処理圧力 4 MPa)

ヘミセルロース由来成分の回収率は反応温度 170□以上で減少し、反応温度 200□では

ほとんど回収できなかった。また、ヘミセルロース過分解物の一つであるフルフラールの生成量を分析した結果、分解したヘミセルロース由来成分の 10%以下であることが確認された。今後はフルフラール以外の成分の分析が必要であると考えられる。

図4,5に密閉式反応器を使用した加熱圧縮処理後の稲わら試料の酵素糖化試験の結果を示す。密閉式の反応器では反応圧力を 4MPa まで下げられることが確認された。この圧力はパーティクルボードの製造時の圧力とほぼ同じである。パーティクルボード製造装置の改造により加熱圧縮反応装置の大型化が可能であると考えられる。

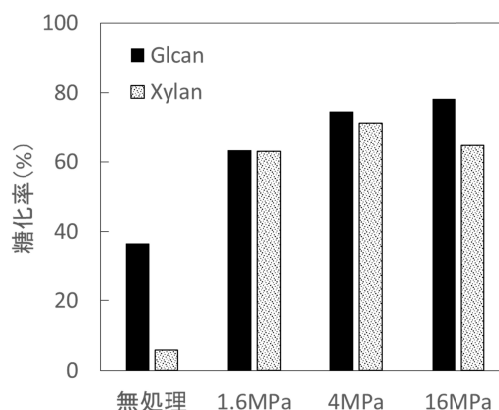


図4 加熱圧縮処理試料の酵素糖化 (処理温度 180□)

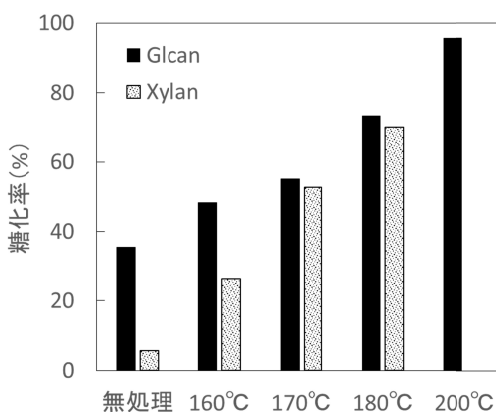


図5 加熱圧縮処理試料の酵素糖化 (処理圧力 4 MPa)

### (4) 加熱圧縮処理での消費エネルギー

加熱圧縮処理に必要な熱エネルギーは水熱処理に必要な熱エネルギーの約 10%であった。バイオマス試料 1 に対する水の量が、加熱圧縮処理では 0.43、水熱処理では 9 である。そのため加熱する水の量が加熱圧縮処理では水熱処理の 1/20 程度となり、処理に必要な熱エネルギーの削減が可能となった。今後は、加熱圧縮処理の実用化に向けた装置の設計を行い、消費電力等の評価を行う予定である。

また、加熱圧縮処理により試料の密度が

1.0 g/cm<sup>3</sup>以上になった。一般に、セルロース系バイオマスは嵩高く輸送効率が低い。例えば、稲わらはロールペール状で輸送されるが、そのかさ密度は0.10-0.15 g/cm<sup>3</sup>である。加熱圧縮処理によりバイオマス原料の輸送効率が大きく向上することが確認された。

#### 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 件)

〔学会発表〕(計 2 件)

長谷川文生, 海津裕, 芋生憲司: 稲わらの収集と酵素糖化原料としての利用, 第12回バイオマス科学会議, 2017年

Fumio Hasegawa, Yutaka Kaizu, Kenji Imou: Development of Hot-Pressing Treatment of Lignocellulosic Biomass for Bioethanol Production, 4th Asian Conference on Biomass Science, 2016

〔図書〕(計 件)

〔産業財産権〕

出願状況(計 件)

名称:  
発明者:  
権利者:  
種類:  
番号:  
出願年月日:  
国内外の別:

取得状況(計 件)

名称:  
発明者:  
権利者:  
種類:  
番号:  
取得年月日:  
国内外の別:

〔その他〕

ホームページ等

#### 6. 研究組織

##### (1) 研究代表者

芋生 憲司 (IMOU, Kenji)  
東京大学・大学院農学生命科学研究科・  
教授  
研究者番号: 40184832

##### (2) 研究分担者

( )

研究者番号:

##### (3) 連携研究者

( )

研究者番号:

##### (4) 研究協力者

( )