

バイオ燃料の効率的生産技術の開発(第1報)

— 高圧水蒸気蒸留装置によるスギ葉部の処理 —

横山慎一郎、足立良富

Development of Effective Biofuel Production Technology (I)

- Treatment of Japanese cedar leaf by high-pressure water steam distillation equipment -

Shin-ichiro YOKOYAMA and Yoshitomi ADACHI

林地残材として有効利用が望まれるスギ葉部の、バイオ燃料としての実用化を目的に、エッセンシャルオイル(精油)の抽出効率向上と残渣の固形燃料化を兼ねた処理技術として高圧水蒸気蒸留に着目し、その可能性について検討を行った。その結果、高圧水蒸気蒸留により、通常の水蒸気蒸留で5時間ほど要する精油抽出時間が10分程度にまで短縮出来ることが明らかとなった。また、本蒸留残渣のかさ密度は $0.03\text{g}/\text{cm}^3$ から $0.25\text{g}/\text{cm}^3$ へと約10倍向上した。さらに本残渣は、硫黄、窒素および塩素含量こそ0.09、1.11および0.11%と木質ペレットの品質基準に適合していないものの、熱量、灰分および重金属含量については基準を満たしており、廃棄物固形化燃料としての使用は十分可能であることが判明した。

1. はじめに

持続可能な低炭素社会の実現やエネルギー自給率の向上が求められている現状を踏まえ、岐阜県では平成23年3月に次世代エネルギービジョン¹⁾を策定し、木質バイオマスと小水力発電の普及を中心とした、地産地消型再生可能エネルギー技術革新の推進を図っている。特に岐阜県は県土の約80%が山間部で占められ、古くから林業が盛んであり、林地残材等の木質バイオマスは豊富に存在している。

これまでこうした残材をバイオ燃料として実用化するには、回収にかかるコストによる採算性の低さが課題とされてきたが、森林経営計画制度²⁾の推進による集約化、および全木集材の普及により、林地残材の回収コストが低減され、バイオ燃料としての実用性が高まりつつある。しかし、葉部をはじめとする枝条部については、かさばること、固形燃料としてのまとまりがよくない(脆化しやすい)ことから、未だ有効な活用の目途が立っていない。

一方で、ハーブや樹木よりエッセンシャルオイル(精油)が抽出され、主に嗜好商品として流通しているが、樹木においては特に葉部に精油含量が高いとされる。

本研究ではこの精油の商品性に着目し、精油とその残渣をカスケード利用することで、よりバイオ燃料としての採算性を向上させることを目的に、精油の抽出効率と燃料としての実用性の双方を高められる処理技術として高圧水蒸気蒸留に着目し、林産材としてヒノキと共に賦存量の豊富なスギの葉部を原料として、その可能性について試行した。

2. 実験

2. 1 スギ葉の成分分析

スギ葉部は、岐阜県森林文化アカデミーの演習林内において平成24年4月12日に採取したものをを用いた。含水率はMoisture Balance MOC-120H(Shimadzu, Kyoto, Japan)にて計測した。生葉50gを精油定量器に供し、 150°C にて5時間

精油を抽出した。抽出した精油の成分分析はGC-17A GCMS-QP5000 (Shimadzu)を用いたガスクロマトグラフィー質量分析計(GC-MS)にて行った。カラムにはDB-1($60\text{m} \times 0.32\text{mm I.D.}$, $0.25\ \mu\text{m}$ thickness, Agilent Technologies Inc., Santa Clara, CA, USA)を用いた。抽出した精油は酢酸エチルにて10倍に希釈し、うち $10\ \mu\text{l}$ をGC-MSに注入した。GCオーブンは注入後 100°C で2分間、その後 $1.5^\circ\text{C}/\text{分}$ で 250°C まで昇熱し、最後に 250°C で5分間ホールドした。MSスキャンレンジは $45\text{-}300(\text{m/z})$ とした。生葉は 105°C で乾燥し、Vita-Mix Blender(Absolute 3, Osaka Chemical Co. Ltd, Osaka, Japan)にて28mesh以下にまで粉碎し、 105°C で再度絶乾した。その後、ソックスレー抽出装置によりエタノール・ベンゼン(1:2 v/v)抽出(6時間)を行い、溶解画分を回収し、秤量した。ホロセルロースは乾燥粉末をWise法³⁾にて、 α -セルロースは17.5% NaOH溶出後のホロセルロース残存物として定量した。KlasonリグニンはTAPPI法⁴⁾により分析した。

2. 2 高圧水蒸気蒸留

本検討に用いた高圧水蒸気蒸留装置⁵⁾の概要を図1に示す。曲げ木の加工に用いられる真空加圧含浸装置(Type HVI-40/58, Hisaka Works Ltd., Osaka, Japan)に、蒸気回収弁、冷却装置、沈殿槽を取り付けたもので、円筒状の蒸留・圧縮治具にスギ生葉を充填し、高圧釜中で加圧水蒸気に曝しながらプレスを行い、この時の蒸気を回収し冷却後、沈殿槽にて得られた上層水より精油を得るものである。本検討では、スギ生葉1kg(乾燥重量で446g相当)を蒸留・圧縮治具(200mm in diameter)に充填し、 $32\text{kg}/\text{cm}^2$ の圧力で圧縮しつつ、高圧釜内の水蒸気圧を $160^\circ\text{C}(0.6\text{MPa})$ にして10分おきに蒸留液を回収した。また、高圧釜内の水蒸気を $120^\circ\text{C}(0.2\text{MPa})$ 、 $140^\circ\text{C}(0.3\text{MPa})$ 、 $160^\circ\text{C}(0.6\text{MPa})$ 、 $180^\circ\text{C}(1.0\text{MPa})$ 、および $200^\circ\text{C}(1.5\text{MPa})$ と順次上昇させた時の精油の抽出効率について検討した。

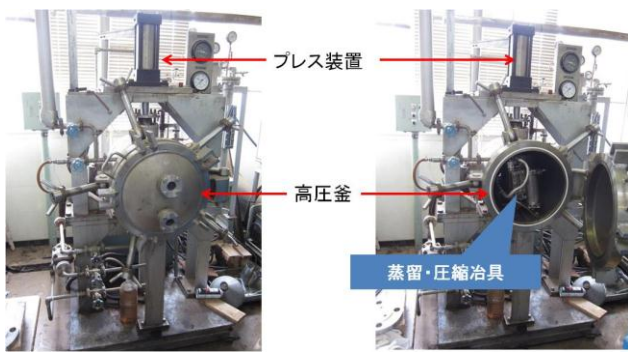


図1 高圧水蒸気蒸留装置

2. 3 燃料適性試験

発熱量の測定はJIS Z 7302-1およびJIS Z 7302-2、水分の測定はJIS Z 7302-3、灰分の測定はJIS Z 7302-1およびJIS Z 7302-4、全塩素分の測定は、JIS Z 7302-1およびJIS Z 7302-6、硫黄分の測定はJIS Z 7302-1およびJIS Z 7302-7、窒素分の測定は、JIS Z 7302-1 およびJIS Z 7302-8に準じた。またヒ素、カドミウム、全クロム、銅、水銀、ニッケル、鉛および亜鉛の測定は、JIS Z 7302-1 およびJIS Z 7302-5 に準じた。

3. 結果及び考察

本研究に用いたスギ葉部について、生葉の含水率は47.8%、乾燥葉の成分組成は、アルコール・ベンゼン可溶性画分17.6%、 α -セルロース含量26.8%、ヘミセルロース含量15.4%、Klasonリグニン含量26.7%、灰分2.8%であった。また、精油含量は0.7ml/100g生葉であった。

スギ葉部より水蒸気蒸留にて得られた精油中の成分分析を行った。主な成分として、ヘジカリオール、10-エビ- γ -オイデスマール、 α -オイデスマール、 β -オイデスマール等のセスキテルペン類や、カウレンといったジテルペンの含有が認められた(図2)。

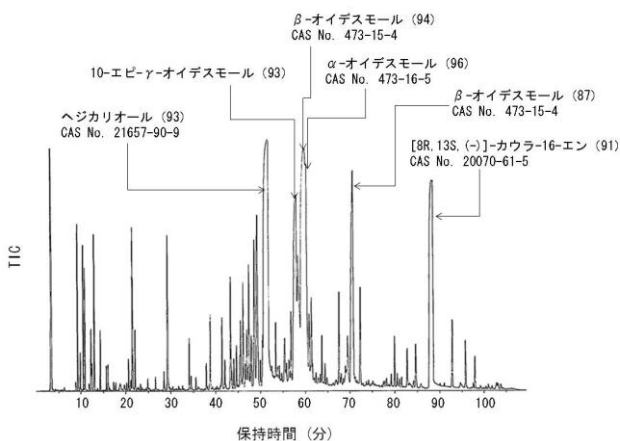


図2 スギ葉部に含まれる精油の成分

高圧釜内の水蒸気圧を160°Cにして高圧水蒸気蒸留を行

った結果、蒸留液を回収開始後10分間程度で6.3ml/kg生葉の精油が得られ、そのほとんどがこの蒸留時間内で回収されることが明らかとなった(図3)。通常水蒸気蒸留は5時間程度行うことを考えると、著しい抽出時間の短縮と、抽出に要するエネルギーの節減が期待できるものと思われる。

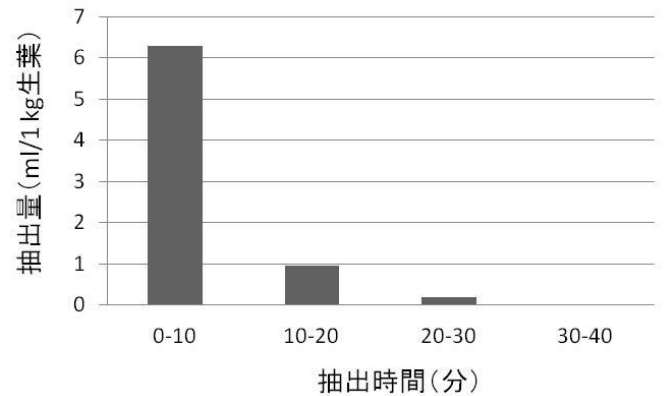


図3 蒸留時間による精油抽出量の変化(160°C)

次に、120°Cから200°Cまで蒸留温度を順次上昇させ、各温度域で21ずつ蒸留液を回収する試みを行った。その結果、140°Cにおける蒸留で6.2mlと最も精油が多く回収されるのが確認された(図4)。また蒸留温度が160°C以上になると、蒸留液の褐変が観察された。これは、高温によりヘミセルロースが分解を受け生成したフルフラール等が、蒸留液中に抽出された結果であると考えられた。これより、精油を得る目的であれば、蒸留温度は140°Cで十分であることが明らかとなった。

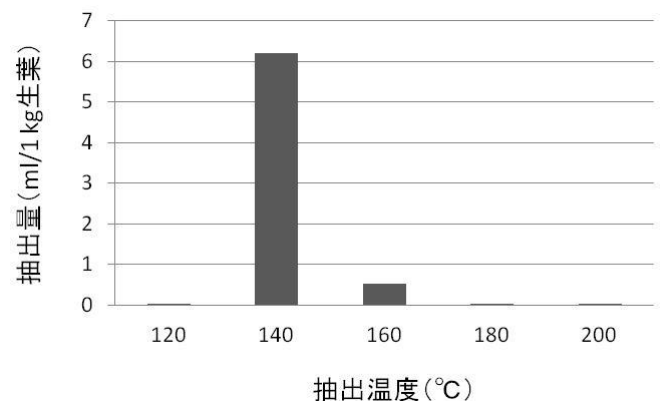


図4 蒸留温度による精油抽出量の変化

高圧水蒸気蒸留処理(200°C)にて得られた残渣の重量は446gから320gに、容積は約15,000cm³から1,256cm³に減少した。これにより、かさ密度は0.03g/cm³から0.25g/cm³へと約10倍に向上した(図5)。残渣の重量が減少しているのは、ヘミセルロース成分がフルフラールとして抽出され、蒸留液へ移行したためであると考えられた。かさ密度の向上は、本残渣を固形燃料として活用する際に、保管のスペースや運搬

コストを軽減できることから、より扱いやすい製品となったといえる。なお、プレス装置の圧縮操作にはまだ改良の余地があり、圧縮度を上げることにより、さらなるかさ密度の向上が図れるものと思われる。



図5 スギ葉部(生葉)と高圧水蒸気蒸留後の残渣

次に、本蒸留残渣(乾燥物)の燃料としての適性について分析した結果を表1に示す。熱量および重金属含量は木質ペレットの規格を満たしていた。また灰分は3.4%と木質ペレットのC区分の範疇に収まるものの、硫黄、窒素および塩素については規格の条件を満たしていなかった。しかし、廃棄物固形化燃料(RDF)としての規格である標準仕様書TR Z 0011:2005(廃棄物固形化燃料)にある高位発熱量12.5 MJ/kg以上、水分10%以下、灰分20%以下といった条件⁶⁾を満たしていた。よって本蒸留残渣は、RDFとしての利用には支障がないことが判明した。またこうした熱量や成分は、スギ葉の乾燥物においても本残渣とほぼ同一であった。本残渣はスギの葉部単体で構成されていることから、RDFとして使用する場合には、熱量、成分共に均一な、扱いやすい固形燃料となるものと期待できる。

表1 スギ葉部およびその高圧水蒸気蒸留残渣のバイオ燃料としての適性

分析項目	スギ葉部 乾燥物	高圧水蒸気 蒸留残渣	木質ペレット 品質基準 (C区分、参考)	
含水率	%	3.1	2.3	≤10
低位発熱量	MJ/kg	22.6	21.2	≥16
高位発熱量	MJ/kg	24	22.6	≥17.6
灰分	%	3.4	3.4	1.0<灰分≤5.0
硫黄	%	0.09	0.09	≤0.04
窒素	%	1.31	1.11	≤0.5
塩素	%	0.06	0.11	≤0.03
ヒ素	mg/kg	<1	<1	≤1
カドミウム	mg/kg	<0.5	<0.5	≤0.5
全クロム	mg/kg	<10	<10	≤10
銅	mg/kg	<10	<10	≤10
銅	mg/kg	<0.1	<0.1	≤0.1
水銀	mg/kg	<10	<10	≤10
ニッケル	mg/kg	<10	<10	≤10
鉛	mg/kg	28	18	≤100
亜鉛	%	3.1	2.3	≤10

今回の検討では、高圧水蒸気蒸留がスギ葉部のバイオ燃料化に有効であることを確認できたが、至適なプレス条件、蒸留温度、あるいは通常の水蒸気蒸留との精油成分の違い

等、検討すべき項目は多い。さらにはスギの葉単一で構成されているとはいえ、産地、品種、季節、気候等により成分的に一様ではないと考えられる。熱量等においてより安定した品質のバイオ燃料を供給出来るようにするためには、こうした種々のパラメーターについての知見を得る必要がある。また今後は、スギと共に賦存量の豊富なヒノキについても同様の検討を行っていきたい。

4. まとめ

林地残材であるスギ葉部から、採算性に優れたバイオ燃料を製造する技術の確立を目的として、高圧水蒸気蒸留装置の導入を検討したところ、以下の知見を得た。

- 精油の抽出時間の大幅な短縮が図られた。
- 約10倍のかさ密度の向上を達成した。
- 残渣はRDFとしての基準を満たしていた。

【謝 辞】

高圧水蒸気蒸留装置の使用を快諾頂き、かつ本事業推進において有益なご助言を賜りました棚橋光彦前岐阜大学応用生物科学部教授、また、試料となるスギ葉部および林業の現状についての情報をご提供下さいました岐阜県森林研究所森林環境部の古川邦明部長に深謝致します。

【参考文献】

- 1) 岐阜県次世代エネルギービジョン，岐阜県，<http://www.pref.gifu.lg.jp/sangyo-koyo/kigyo-ritchi-shien/chusho-kigyo-shien/shinene-shinsangyo/keikaku-vision-minaoshi-H2208.data/bijon-2.pdf>.
- 2) 森林所有者又は森林の経営の委託を受けた者がたてる「森林経営計画」，林野庁，http://www.rinya.maff.go.jp/j/keikaku/sinrin_keikaku/con_6.html.
- 3) Wise *et al.*, *Pap. Trade J.* 122, pp.35-43, 1946.
- 4) TAPPIスタンダード，中外産業調査会，T2220S-74, 1986.
- 5) 棚橋光彦 他，特開2010-000506.
- 6) 標準仕様書 TS Z 0011:2005，廃棄物固形化燃料，日本規格協会(標準情報書，TR Z 0011:1999).

Abstract

For purpose of utilization of woodland surplus material as biofuel, we examined the potential of high-pressure water steam distillation as treatment technology suitable for efficiency of essential oil extraction and molding of residual substance as solid-fuel from Japanese cedar (*Cryptomeria japonica*) leaf.

The essential oil extraction time, which took about 5 hours by traditional distillation, was able to shorten to about 10 minutes by high-pressure water steam distillation. The bulk density improved about 10 fold. The residual substance

fulfilled the standard value of the wood pellet, such as heating value and contents of ash and heavy metals except for sulfur, nitrogen and chloride.

In conclusion, the high-pressure water steam distillation

can treat Japanese cedar leaf effectively and economically, and the residual substance can be used as a refuse derived fuel.