

バイオ燃料の効率的生産技術の開発(第2報)

— 高圧水蒸気蒸留によるスギおよびヒノキ葉部の有効利用 —

横山慎一郎、足立良富、棚橋光彦*

Development of Effective Biofuel Production Technology (II)

- Practical use of Japanese cedar and Japanese cypress leaves by high-pressure steam distillation -

Shin-ichiro YOKOYAMA, Yoshitomi ADACHI and Mitsuhiro TANAHASHI*

スギおよびヒノキ葉部の、バイオ燃料としての実用化を目的に、高圧水蒸気蒸留(HPSD)の可能性について検討を行った。HPSD処理により、常圧蒸留にて10時間で抽出される量以上の精油が数十分以内に得られることが明らかとなった。また、180°C(1.0MPa)よりも140°C(0.3MPa)で処理をした方が、得られる油分の色調が常圧蒸留と同等で、かつ精油の抽出量も多かった。本蒸留残渣のかさ密度はスギ葉部で約18倍、ヒノキ葉部で約7倍に向上した。さらにこれらの残渣は、共に硫黄、窒素および塩素含量こそ木質ペレットの規格に及ばないものの、熱量、灰分および重金属含量については規格を満たしており、廃棄物固形化燃料として使用可能であることが判明した。

1. はじめに

高圧水蒸気蒸留(HPSD)処理は、木材圧縮成形の原理を利用し、蒸気釜内で原料をプレスしながら、その圧搾汁の蒸留分を回収するものである¹⁾。我々は、未利用な林産材の葉部の有効利用を目的に、HPSD処理の実用性について試行している。前報²⁾ではスギ葉部について、主にHPSDの条件設定等について検討してきた。本研究ではスギ葉部のHPSD処理に更なる検討を加えるとともに、ヒノキ葉部についても、同処理による精油の抽出に及ぼす効果、およびその残渣の固形バイオ燃料としての適性について評価した。

2. 実験方法

2.1 供試試料

本実験において、スギおよびヒノキの葉部は、岐阜県森林文化アカデミーの演習林内において平成25年10月21日に採取したものを用いた。

2.2 蒸留

HPSDは、前報²⁾同様、木材圧縮成形装置(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を用いて行った。本検討では、スギおよびヒノキ生葉部各500gを蒸留・圧縮治具(200 mm in diameter)に充填し、32kg/cm²の圧力で圧縮しつつ、高圧釜内の水蒸気圧を140°C(0.3MPa)および180°C(1.0MPa)に保持して、10分おきに蒸留液を回収した。

常圧蒸留にはPureStiller Standard/M(Type SHJK25L, Kohga International Trading Co., Ltd., Fukuoka, Japan)を使用し、10時間蒸留を行った。

2.3 精油の回収および定量

蒸留にて得られた精油の回収および定量は李ら³⁾の報告

を参考に行った。すなわち、得られた蒸留液を常温にて一晚静置後、分液ロートに移し替えた。また、容器に残存する精油分はヘキサンで洗浄、溶解し、先ほどの分液ロートに加えた。こうして得られた油層をロータリーエボポレーターにて脱溶媒し、精油を回収、秤量した。

2.4 葉の成分分析

供試試料の成分分析は以下のように行った。含水率はMoisture Balance MOC-120H(Shimadzu, Kyoto, Japan)にて計測した。生葉は105°Cで乾燥し、Vita-Mix Blender(Absolute 3, Osaka Chemical Co. Ltd, Osaka, Japan)およびカッターミル(MF10 analytical mill, IKA Japan, Fukushima, Japan)にて粒径2mm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(10時間)を行い、溶解画分を回収し、脱溶媒後秤量した。ホロセルロースは乾燥粉末をWise法⁴⁾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⁵⁾により分析した。

2.5 かさ密度の測定

かさ密度の測定は次のように行った。葉部を20cm以下のサイズに裁断し、ペール缶(目盛付18L容)に充填した後、体積と重量を測定した。葉部の処理残渣の体積については、圧縮治具が直径200mmの円筒形であることから、円の面積に得られた残渣の高さを掛け合わせることで算出した。重量については含水率から乾重量を算出し、乾燥物あたりのかさ密度として求めた。

2.6 固形燃料適性試験

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

* 飛騨産業(株)

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おいて、含水率は59.9%、乾燥物の成分組成は、アルコール・ベンゼン可溶性画分11.4%、 α -セルロース含量35.9%、ヘミセルロース含量15.6%、Klasonリグニン含量33.1%であった。また、ヒノキ葉部において、含水率は59.4%、乾燥物の成分組成は、アルコール・ベンゼン可溶性画分11.4%、 α -セルロース含量33.4%、ヘミセルロース含量13.4%、Klasonリグニン含量36.4%であった。

常圧水蒸気蒸留を10時間行った際の精油収量はスギ葉部で1.9g/500g、ヒノキ葉部で5.7g/500gであった。

180°CにおけるHPSD処理では、蒸留開始後10分間で、スギ葉部で4.2g/500g、ヒノキ葉部では3.7g/500gの精油が得られ、その後収量は順次減少するものの、抽出40分間の合計において、スギでは6.6g/500g、ヒノキでは7.6g/500gの精油が得られた(図1)。

一方、140°Cにおける処理では、蒸留開始後10分間において、スギ葉部で3.7g/500g、ヒノキ葉部で6.7g/500gの精油が得られ、180°CにおけるHPSD処理に及ばないものの、抽出40分間の抽出量の合計において、スギで7.6g/500g、ヒノキで16.8g/500gと、特にヒノキにおいて約2倍と大幅に上回った(図1)。

以上の結果より、精油抽出において、HPSD処理は常圧水蒸気蒸留に比べ、顕著な抽出時間の短縮と、抽出に要するエネルギーの大幅な節減が期待できるものと思われる。

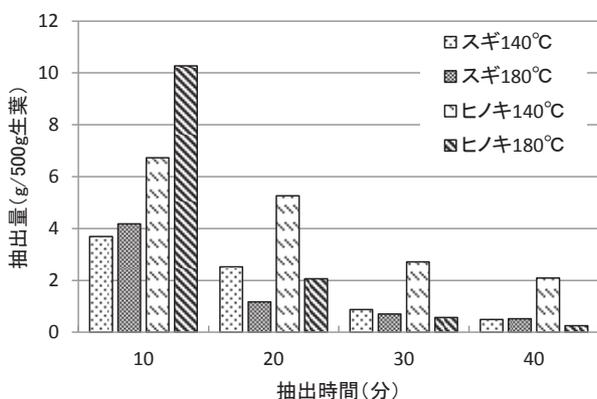


図1 HPSDによるスギ・ヒノキ葉部からの精油抽出量

また蒸留温度が180°Cでは、両処理物共、前報同様蒸留液の褐変が観察された。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る。また、180°Cよりも140°Cで処理をした方が、油分の色調が通常の蒸留と同等で香りも好ましく感じられた。これより、精油を得る目的であれば、蒸留温度は140°Cが好適であると判断され、以後の検討は140°Cの処理条件にて行った。

燃料のもととなる固形成分について、HPSD処理前後の含有量の変動について解析した(表1, 2)。HPSD処理により、スギ葉部では、アルコール・ベンゼン画分が減少していた(表1)。一方でヒノキ葉部では、ヘミセルロース画分の減少が認められた(表2)。

表1 HPSD処理前後のスギ葉部固形成分

	処理前(g)	残渣(g)	残存率(%)
固形成分総量	200.5	167.0	83.3
ホロセルロース	103.4	89.5	86.6
α -セルロース	72.0	63.7	88.4
ヘミセルロース	31.3	25.8	82.4
アルコールベンゼン	22.9	15.1	66.0
リグニン	66.4	59.7	89.9
その他(灰分等)	7.8	2.7	34.2

表2 HPSD処理前後のヒノキ葉部固形成分

	処理前(g)	残渣(g)	残存率(%)
固形成分総量	203.1	174.2	85.8
ホロセルロース	95.0	76.2	80.2
α -セルロース	67.7	55.7	82.2
ヘミセルロース	27.2	20.6	75.4
アルコールベンゼン	23.0	18.6	80.5
リグニン	74.0	70.0	94.7
その他(灰分等)	11.1	9.4	84.7

HPSD処理(140°C)にて得られたスギ残渣のかさ密度は0.024g/cm³から0.44g/cm³へと約18倍に向上した。一方ヒノキ残渣においては、スギに及ばないものの、0.063g/cm³から0.46g/cm³へと約7倍に向上した。

HPSD処理したスギ残渣は、圧縮成形後のまとまりがよく、プレス時の形状を保っていた。しかしヒノキ残渣はもろく、成形性に劣っていた。

これらHPSD処理残渣(乾燥物)の燃料としての適性について分析した結果を表3および表4に示す。両残渣共に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3.2~4.2%と木質ペレットのC区分の範疇に収まるものの、スギ葉部処理前乾燥物およびそのHPSD処理残渣、およびヒノキ葉部処理前乾燥物では硫黄、窒素および塩素について、ヒノキ葉部HPSD処理残渣では硫黄および窒素について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⁶⁾を満たしていた。よってこれら処理残渣は、RDFとして利用可能であることが判明した。またこうした熱量や成分は、スギ葉部処理前乾燥物においても本残渣とほぼ同一であった。本残渣は葉部単体で

構成されていることから、他のRDFと比べ、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。

また、表1および2に見られた有機成分の減少は、熱量に影響しないことも判明した。

表3 スギ葉部およびそのHPSD残渣のバイオ燃料としての適性

分析項目	処理前	残渣
含水率 %	5.5	1.7
低位発熱量 MJ/kg	19.5	20
高位発熱量 MJ/kg	20.5	21.5
灰分 %	4.2	3.8
硫黄 %	0.08	0.09
窒素 %	0.8	1.1
塩素 %	0.13	0.13
ヒ素 mg/kg	<0.1	<0.1
カドミウム mg/kg	<0.05	<0.05
全クロム mg/kg	<1	<1
銅 mg/kg	4	5
水銀 mg/kg	0.04	0.03
ニッケル mg/kg	<1	2
鉛 mg/kg	<1	<1
亜鉛 mg/kg	10	15

表4 ヒノキ葉部およびそのHPSD残渣のバイオ燃料としての適性

分析項目	処理前	残渣
含水率 %	5.6	2
低位発熱量 MJ/kg	19.5	21
高位発熱量 MJ/kg	21	22
灰分 %	3.5	3.2
硫黄 %	0.09	0.08
窒素 %	1	1
塩素 %	0.1	0.03
ヒ素 mg/kg	<0.1	<0.1
カドミウム mg/kg	0.11	0.11
全クロム mg/kg	2	1
銅 mg/kg	5	3
水銀 mg/kg	0.05	0.03
ニッケル mg/kg	8	6
鉛 mg/kg	<1	<1
亜鉛 mg/kg	53	55

このように、今回の検討では、高圧水蒸気蒸留がスギのみならず、ヒノキ葉部のバイオ燃料化にも有効であることを確認できた。一方で、HPSD処理による精油の収量は多いものの、常圧蒸留との成分的な違い等、検討すべき課題が残されている。さらにはこうした固形バイオ燃料は単一の原料で構成されているとはいえ、原料がバイオマス故、季節等により成分のばらつきが生じることも考えられる。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、こうした成分の季節変動についての知見を得る必要がある。現在これらの課題について検討を進めている。

4. まとめ

スギおよびヒノキ葉部から、効率よく精油を得つつ、実用

性の高い固形バイオ燃料を製造する技術の確立を目的に、高圧水蒸気蒸留 (HPSD) 装置の導入を検討したところ、以下の知見を得た。

- ・ スギおよびヒノキ葉部において精油の抽出時間の大幅な短縮効果が認められた。
- ・ 精油の質および収量の点より、水蒸気処理温度は140°C (0.3 MPa) が適切であった。
- ・ 本処理により、スギ葉部にて約18倍、ヒノキ葉部で約7倍のかさ密度の向上を達成した。
- ・ 圧縮成形後のスギ残渣はまとまりが良いが、ヒノキ残渣はまとまりに欠けていた。
- ・ 両HPSD残渣はRDFとしての基準を満たしていた。

【謝 辞】

試料となるスギおよびヒノキ葉部の提供、林業振興における課題等について情報提供頂きました、岐阜県森林研究所の古川邦明部長並びに上辻敏久専門研究員に深謝致します。

【訂 正】

前報にてかさ密度の記載に誤表記がございました。この場を借りてお詫び申し上げます。残渣の体積は1,256cm³ではなく、正しくは753.6cm³でした。これによりかさ密度は0.25g/cm³ではなく0.42g/cm³と算出され、前報での測定では約1.4倍の向上が認められたこととなります。

【参考文献】

- 1) 棚橋光彦 他, 特開2002-338991.
- 2) 横山慎一郎ら, 岐阜県産業技術センター研究報告, 7, pp.10-13, 2013.
- 3) 李志霞ら, 廃棄物資源循環学会論文誌, vol.20, pp.361-370, 2009.
- 4) Wise *et al.*, *Pap. Trade J.* 122, pp.35-43, 1946.
- 5) TAPPIスタンダード, 中外産業調査会, T2220S-74, 1986.
- 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

High-pressure steam distillation (HPSD) is considered to suitable for utilization of woodland surplus material as biofuel. Previously, we estimated the potential of HPSD for efficiency of essential oil extraction and molding of residual substance as solid-fuel from Japanese cedar (*Cryptomeria japonica*) leaf. In addition to Japanese cedar, we examined the same study about Japanese cypress (*Chamaecyparis obtusa*) leaf in the present work.

The essential oil extraction time of each Japanese cedar or Japanese cypress, which took about 10 hours by traditional distillation, was able to shorten to several tens of minutes by HPSD treatment. The bulk density of Japanese cedar and

Japanese cypress improved about 18 and 7 folds, respectively. 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 HPSD can treat both Japanese cedar and Japanese cypress leaves effectively and economically, and the residual substance can be used as a refuse derived fuel.