



Solvent Extraction and Continuous Hydrothermal Liquefaction of Native Microalgae for Biofuel Production

著者	JAIN Ankit
発行年	2018
その他のタイトル	土着微細藻類を原料とした溶媒抽出と連続水熱液化処理によるバイオ燃料生産
学位授与大学	筑波大学 (University of Tsukuba)
学位授与年度	2018
報告番号	12102甲第8833号
URL	http://hdl.handle.net/2241/00153932

氏名	ANKIT JAIN		
学位の種類	博 士 (農 学)		
学位記番号	博 甲 第 8 8 3 3 号		
学位授与年月日	平成 3 0 年 9 月 2 5 日		
学位授与の要件	学位規則第 4 条第 1 項該当		
審査研究科	生命環境科学研究科		
学位論文題目	Solvent Extraction and Continuous Hydrothermal Liquefaction of Native Microalgae for Biofuel Production (土着微細藻類を原料とした溶媒抽出と連続水熱液化処理によるバイオ燃料生産)		
主査	筑波大学教授	博士 (工学)	市川 創作
副査	筑波大学教授	博士 (農学)	青柳 秀紀
副査	筑波大学教授	工学博士	中嶋 光敏
副査	筑波大学准教授	博士 (農学)	野村 名可男

論 文 の 要 旨

バイオ燃料の生産は、第一世代と呼ばれる穀類等のデンプン系資源を原料とした検討、第二世代と呼ばれる木質等のセルロース系資源を原料としたが検討が行われてきたが、藻類は食料生産との競合が少なく、単位面積当たりの生産性が高いため第三のバイオマス資源としてその利用が注目されている。藻類を原料としたバイオ燃料生産では、油分を多く産出する藻類種を純粋培養する方法が検討されているが、単一種の藻類を大量かつ高密度で純粋培養するためには、その藻類種の増殖に適した環境を維持・管理すると共に、他の藻類や微生物の侵入を防ぐ必要がある。このため培養に必要な費用がかさみ、安価な供給が求められるバイオ燃料の生産には必ずしも適しているとは限らない。そこで、適切な量の栄養源と光があれば容易に増殖する土着の微細藻類を開放系で培養し、得られる微細藻類の群集を原料とする方法が考案され、福島県南相馬市で実験的な検討が進められている。南相馬市の寒冷な気候にもかかわらず、土着の微細藻類(優先種 *Desmodesums* sp.)を培養することで、年間を通じて1日あたり29 g/m²以上の比較的高い生産性が得られることが示されている。著者は、この南相馬市で培養された土着微細藻類からバイオ燃料を生産する方法として、藻類に含まれている油分を溶媒により直接抽出する方法と、藻類を亜臨界水で処理して液体燃料を生産する水熱液化 (Hydrothermal Liquefaction; HTL) 処理法について検討し、得られるバイオ燃料の収率や特性について検討した。

はじめに、著者は土着微細藻類からヘキサンや酢酸エチル、ジクロロメタン、アセトン、クロロホルムとメタノールの混合液(体積比 2:1)など様々な溶媒を使用してクルードオイルを抽出し、その収率を調べた。その結果、クルードオイルの収率は、溶媒の溶解性の指標であるHildebrand溶解度パラメータと良好な正の相関を示すことを示した。ヘキサンにより抽出されたクルードオイルの収率は、原料藻類の無水無灰 (dry and ash free; daf)基準で1.5 % (w/w)と低い、熱重量分析の結果、軽油に相当する揮発温度250~350 °Cの画分が37.0 % (w/w)と比較的多く含まれていることを示した。検討した溶媒の中では、メタノールが最も高い収率11.4 % (w/w)を示し、得られたクルードオイルには軽油に相当する揮発画分が28.0 % (w/w)含まれていることを示した。

次に、著者は土着微細藻類の懸濁液(固形分濃度19.4 % (w/w))を、ベンチスケールの管型反応器により、350℃、19.5 MPaの亜臨界条件を6分間保持する連続HTL処理を行いバイオクルードを生産すると共に、得られたバイオクルードから溶媒によりクルードオイルを抽出した。HTL処理により、土着微細藻類の60.8 % (w/w; daf基準)がバイオクルードに変換されることを示した。バイオクルードを熱重量分析し、灯油(揮発温度180~250 °C)および軽油(揮発温度250~350 °C) に相当する割合が、HTL処理により増加することを明らかにした。また、原料藻類およびバイオクルードの元素分析を行い、藻類からバイオクルードへと変換される化学反応の量論係数を推算した。さらに著者は、HTL処理により溶媒へキサンおよびクロロホルムとメタノールの混合液(体積比 2:1)で抽出されるクルードオイルの収率が、それぞれ1.72倍および1.47倍に増加した結果を示すと共に、HTLの反応機構に関して既往の研究報告と併せて考究し、HTL処理により藻類に含まれる糖質やタンパク質が油分へと変換されクルードオイルが増大すると考察した。

HTL処理に使用する藻類懸濁液の固形分濃度(10.0, 19.4 および 27.1% (w/w))と、反応温度(250, 300 および 350 °C)の影響についても著者は検討し、固形分濃度は19.4 % (w/w)、反応温度は350 °Cの条件で最も高いバイオクルード収率が得られたことを示し、藻類バイオマスからの効率的なバイオクルード生産には、原料の固形分濃度と反応温度が重要な因子であることを明らかにした。また、得られたバイオクルードの元素組成からDulongの式により求めた高位発熱量は29.7 MJ/kg となり、石炭の高位発熱量15~27 MJ/kgと同程度であることを示した。

以上の検討結果から、土着微細藻類からバイオ燃料を生産する場合、燃料の収率および特性に着目すると、藻類に含まれている油分を溶媒により直接抽出する方法よりも、HTL処理する方が有利であると著者は結論付けた。

審 査 の 要 旨

本論文で著者は、開放系で比較的安価に培養できる土着微細藻類を原料としてバイオ燃料を生産する方法として、藻類から油分を溶媒により抽出する方法と、藻類を亜臨界水でHTL処理する方法について検討した。溶媒抽出法に関する検討では、様々な溶媒を使用して抽出されるクルードオイルの収率を示すと共に、その収率が溶媒の溶解性の指標であるHildebrand溶解度パラメータと正の相関を示すことを示した。また、溶媒により抽出されるクルードオイルの揮発特性が異なることを明らかにした。これらの知見は、クルードオイルを抽出する際、溶媒選択の指針を与える意義ある成果である。HTL処理法に関する検討では、ベンチスケールの管型反応器により土着微細藻類懸濁液を連続的に処理し、原料藻類の60.8 % (w/w; daf基準)が石炭と同程度の高位発熱量を有するバイオクルードに変換されることを示した。また、HTL処理により低温で揮発する画分が増加することを示した。さらに、得られたバイオクルードから溶媒により抽出されるクルードオイルの収率は、HTL処理により増大することを示した。これらの知見は、油分含量が比較的少ない土着微細藻類を原料としてバイオ燃料を生産する場合、燃料の収率および特性の観点からは、HTL処理法が有効であることを示す有用な成果である。産業化に向けて溶媒抽出法とHTL処理法それぞれのエネルギー投資効率について検討・比較する必要はあるが、本論文により得られた成果は、土着微細藻類からバイオ燃料を生産するための有用な基礎的知見として学術的にも技術的にも価値がある。

平成30年7月23日、学位論文審査委員会において、審査委員全員出席のもとに論文の審査及び最終試験を行い、本論文について著者に説明を求め、関連事項について質疑応答を行った。その結果、審査委員全員によって合格と判定された。

よって、著者は博士(農学)の学位を受けるのに十分な資格を有するものとして認める。