

5 結論

各種木質バイオマス原料（杉おがくず、竹、ナラ、稲ワラ等）を原料とし、1L小型コンバージミルを用いてメカノケミカル粉砕し、その後、セルラーゼ酵素を用いて糖化処理を行う。本研究では、主に①メカノケミカル粉砕条件の検討、②酵素糖化技術の最適化、③量産化に対応するためのコンバージミル連続粉砕装置の開発を実施した。その結果、以下のような結論を得た。

- ① 杉おがくずをコンバージミルでメカノケミカル処理することで、原料の微粒子化・非晶質化が進行し、酵素糖化特性が大幅に向上した。
- ② 木質中セルロースの結晶化度が低いほど、糖化率が高くなる傾向にあった。
- ③ 媒体ボールは、比重の大きなクロム鋼球が良く、結晶化度小、生成グルコース濃度は大となった。また、試料投入量/媒体ボール量の体積比は小ほど生成グルコース濃度は大となった。
- ④ ボール径4～6mm程度の小径ボールを使用し、ボール充填率15%では、約30分間の短時間コンバージミル粉砕で糖化率80%以上を達成できることがわかった。このときの粉体物性は、平均粒子径 (D_{50}) $20\mu\text{m}$ 以下、結晶化度 (CrI) 約10%となる。ただし、過度の粉砕は糖化率の低下を招き、最適な粉砕処理条件が存在すると言える。
- ⑤ コンバージミルで結晶性を低下させる場合には、一度、微粒子化 (約 $50\mu\text{m}$ 程度) することが効果大であることがわかった。
- ⑥ 前処理粉砕 (ハンマーミル処理1分) とコンバージミル粉砕の組みあわせを行うことにより (複合前処理粉砕)、コンバージミル10～20分間粉砕で糖化率80%以上を達成できることがわかった。
- ⑦ 各種木質バイオマスのコンバージミル粉砕はセルロース (C6糖類) の糖化だけでなく、ヘミセルロース (C5糖類) の糖化にも効果があることが示唆された。
- ⑧ 通常のセルラーゼ酵素に β -グルコシダーゼを少量添加すると、セロビオースは減少し、グルコースは大きく増加することがわかった。
- ⑨ 木質バイオマス原料 (杉、竹) のメカノケミカル粉砕によるナノレベルでの構造解析をXRD、固体NMR、IR測定で実施した。セルロースの結晶構造の変化はXRD測定の他、固体NMRおよびIR測定でも確認でき、さらに、セルロース構造の分子内・分子間の水素結合が切断されていることも明らかとなった。
- ⑩ 粉砕機メーカー (㈱アーステクニカ) との協力により、コンバージミル連続粉砕処理装置 (内容積9L、処理量10kg/day) を完成させた。
- ⑪ 6L連続コンバージミルでは、ハンマーミル前処理粉砕を併用すると10分間粉砕で糖化率80%以上を達成できた。このことより、粉末処理量10kg/day、エタノール製造単価 (粉砕工程) 98円/Lを達成できた。

<2008 年度>

○ 研究発表

- 1) 丹野浩一, 二階堂満, 戸谷一英, 「メカノケミカル粉碎技術をバイオマス資源活用技術へ応用展開」 「JST 産学官連携ジャーナル」 vol.4, No. 11, 34-36 (2008)
- 2) 丹野浩一, 戸谷一英, 二階堂満, 「メカニカルアロイングおよびメカノケミカル反応等の技術の発展に寄与するコンバージミル」 「粉体と工業」, Vol. 40, No. 9, 26-36 (2008)
- 3) 真壁英一, 丹野浩一, 二階堂満, 戸谷一英, 浅田格, 佐藤友章, 猪股尚治, 「エネルギー集中型高速高純度反応粉碎機, コンバージミル」, 粉末および粉末冶金, 55(1), 67-69 (2008)
- 4) 丹野浩一, 二階堂満, 戸谷一英, 「コンバージミルの粉碎効果」, 粉体工学会 2008 年度春期研究発表会 講演論文集, 133-134 (2008).
- 5) 猪股尚治, 丹野浩一, 二階堂満, 戸谷一英, 「コンバージミルにおける環境分野への応用」, 化学装置, 2009 年 5 月号, 61-65 (2009)

○ 学会発表

- 1) 二階堂満, 戸谷一英, 福村卓也, 丹野浩一, 猪股尚治, 真壁英一, 「コンバージミルの応用技術を紹介します」, 国際粉体工業展東京 2008, 2008 年 10 月
- 2) 福村卓也, 二階堂満, 石川慶典, 戸谷一英, 猪股尚治, 「コンバージミルを用いた木質バイオマスの高効率エネルギー変換法の構築」, 第 3 回 バイオマス科学会議, 2008 年 1 月
- 3) 福村卓也, 二階堂満, 石川慶典, 戸谷一英, 猪股尚治, 「メカノケミカル粉碎を前処理とした木質バイオマス高効率糖化法の構築」, 化学工学会第 39 回秋季大会, 2007 年 9 月
- 4) 二階堂満, 戸谷一英, 福村卓也, 猪股尚治, 真壁英一, 「メカノケミカル粉碎の実用化技術を紹介します」, APPI 産学官連携フェア 2007—粉の技術—, 2007 年 10 月
- 5) 戸谷一英, 二階堂満, 丹野浩一, 猪股尚治, 増井彩乃, 岡田守, 川口光朗, 又平芳春, 「エネルギー集中型高速粉末反応装置 “コンバージミル” によるバイオマス資源の有効利用」, 日本応用糖質科学会平成 20 年度大会 (第 57 回), 2008 年 9 月
- 6) 小山康裕, 窪田哲也, 鈴木務士, 中澤 光, 二階堂満, 戸谷一英, 小笠原渉, 岡田宏文, 森川 康, 「*Trichoderma reesei* セルラーゼによる微粉碎処理杉の分解」, 第 22 回セルラーゼ研究会, 2008 年 7 月

<2009 年度>

○ 研究発表

- 6) 猪股尚治, 丹野浩一, 二階堂満, 戸谷一英, 「コンバージミルにおける環境分野への応用」, 化学装置, 51(5), 61-65 (2009)
- 7) 竹田 匠, 二階堂満, 戸谷一英, 小原実広, 中野友貴, 内宮博文, 「コンバージミル (エネルギー集中型媒体ミル) によるイナワラ等の糖化効率の評価」, J. Appl. Glycosci., 56, 71-76 (2009)

- 8) 戸谷一英, 二階堂満, 丹野浩一, 猪股尚治, 川口光朗, 又平芳春, キッチン系バイオマス資源の高度利用に向けた環境負荷低減技術, *WEB Journal*, **98**, 27-31 (2009).

○ 学会発表

- 7) 二階堂満, 戸谷一英, 渡邊 崇, 「粉碎技術を利用したバイオマス・未利用資源の有効活用」, 2009年度 INS 未利用資源活用研究会 第6回全県大会粉体工学東北談話会講演会, 2010年2月
- 8) 戸谷一英, 渡邊 崇, 二階堂満, 「メカノケミカル粉碎のバイオマス・地域資源への展開」, 2009年度 粉体工学東北談話会 講演会, 2009年12月
- 9) 戸谷一英, 「環境負荷低減技術によるキッチン系バイオマス資源の高度利用」, 第2回乾燥分科会, 2009年11月
- 10) 戸谷一英, 「環境負荷低減技術によるキッチン系バイオマス資源の高度利用」, 第3回多糖の未来フォーラム, 2009年11月
- 11) 貝原巳樹雄, 戸谷一英, 二階堂満, 猪股尚治, 「キッチンの光学的性質と分光スペクトルとの関係」, 第32回情報化学討論会, 2009年10月
- 12) 戸谷一英, 福村卓也, 丹野浩一, 粉川 潤, 猪股尚治, 小山康裕, 岡田宏文, 森川 康, 二階堂満, 木質バイオマスのメカノケミカル粉碎処理と酵素糖化, 日本応用糖質科学会平成21年度大会(第58回), 2009年9月
- 13) 二階堂満, 戸谷一英, 福村卓也, 丹野浩一, 猪股尚治, 真壁英一, 「環境技術にコンバージミルを」, APPI 産学官連携フェア 2009, 2009年10月
- 14) Koichi TANNO, Mitsuru NIKAIDO, Kazuhide TOTANI, Tomoaki SATO, Kaku ASADA, Mitsuhiro TAKEDA, 「Development and application of “Converge mill”」, The2nd Japan-Korea Joint Symposium, October, 2009
- 15) 二階堂満, 「コンバージミルの環境技術への応用について」, 化学工学会 第7回東北ジョイント夏季セミナー, 2009年8月
- 16) 二階堂満, 戸谷一英, 福村卓也, 丹野浩一, 猪股尚治, 真壁英一, 「木質系バイオエタール製造のためのコンバージミル粉碎技術開発」, 第7回全国高専テクノフォーラム, 2009年8月
- 17) 千葉圭介, 蜂谷亮, 二階堂満, 「木質バイオマスの粉体特性と酵素糖化特性」, 化学工学会 第12回化学工学会学生発表会, 2010年3月

<2010年度>

○ 研究発表

- 1) 二階堂満, 戸谷一英, 福村卓也, 長田光正, 丹野浩一, 猪股尚治, 粉川潤, 「コンバージミルによる木質バイオマス原料の高効率粉碎」, *粉碎技術*, **2**(8), 17-24 (2010)
- 2) 木質原料の酵素糖化特性に及ぼすコンバージミル粉碎の影響. 福村卓也, 長田光正, 戸谷一英, 二階堂満, *J. Jpn. Inst. Energy.*, **89**(10), 968-974 (2010).
- 3) 戸谷一英, 二階堂満, 丹野浩一, 粉川潤, 猪股尚治, 川口光, 「環境負荷低減技術によるキッチン系バイオマス資源の高度利用」, *粉碎技術*, **2**(10), 42-50 (2010)

- 4) 戸谷一英、長田光正、二階堂満、「多糖の資源活用と機能探求—キチン系バイオマスのメカノケミカル粉碎と酵素糖化」、化学工業、**61** (12), 912-919 (2010)
- 5) キチン分解物の生成方法、長田光正、戸谷一英、二階堂満、特許出願 2010-144174
- 6) Yuko S. Nakagawa, Yasuhiro Oyama, Nobuko Kon, Mitsuru Nikaido, Koichi Tanno, Jun Kogawa, Shoji Inomata, Ayano Masui, Akihiro Yamamura, Mitsuaki Kawaguchi, Yoshiharu Matahira, and Kazuhide Totani, Development of innovative technologies to decrease the environmental burdens associated with using chitin as a biomass

○ 学会発表

- 1) 招待講演、二階堂満、「粉体技術とバイオマス資源の有効利用」、2010年度化学系学協会東北大会、2010年9月
- 2) 二階堂満、蜂谷亮、千葉圭亮、古関健一、福村卓也、長田光正、戸谷一英、「セルロース系バイオマスの酵素糖化特性に及ぼす多段前処理粉碎の影響」、日本エネルギー学会第6回バイオマス科学会議、2011年1月
- 3) 依頼講演、二階堂満、「コンバージミルによる食品・生物系資源の粉碎」、日本粉体工業技術協会 第53回粉体技術専門講座、2011年1月
- 4) 阿部賢太郎、二階堂満、「セラミック原料のメカノケミカル処理と粉体物性」、2010年度化学系学協会東北大会、2010年9月
- 5) 阿部賢太郎、二階堂満、「混合粉碎におけるメカノケミカル処理とその特性」、化学工学会 第13回化学工学会学生発表会、2011年3月