

木質バイオマス糖化前処理のための簡易型マイクロ波照射装置の設計

長谷川 直輝[†] 三谷 友彦[†] 篠原 真毅[†] 大代 正和^{†‡}

瀬郷 久幸[‡] 桂 陽子[‡] 渡辺 隆司[†]

[†] 京都大学 生存圏研究所 〒611-0011 京都府宇治市五ヶ庄

[‡] 日本化学機械製造株式会社 〒532-0031 大阪府大阪市淀川区加島 4 丁目 6-23

E-mail: [†] {naoki_hasegawa, mitani, shino, twatanab}@rish.kyoto-u.ac.jp,

[‡] {m-daikai, h-sego, y-katsura}@nikkaki.co.jp

あらまし 木質バイオマスからバイオエタノールを生成するための前処理装置の改善を行った。従来装置では、装置のインピーダンス整合をとるためのチューナ類やマイクロ波反射率を測定するための測定器などが設置されていたが、これらは装置の大型化及び高コスト化の要因となり産業化を目指す上で大きな足かせとなっていた。そこで本研究では、チューナ類や測定器を用いない非常に簡単で安価なマイクロ波前処理装置の実現を目指す。はじめに、被加熱物となる木質バイオマス混合溶液についての複素誘電率測定を行い、測定により得られた測定値をもとに 3 次元有限要素法シミュレータ（ムラタソフトウェア社、Femtet）を用いて装置の設計を行った。結果として、被加熱物温度が 20-90℃の温度領域において、装置の反射特性は-20dB 以下に抑えることができた。

キーワード マイクロ波加熱, 木質バイオマス, 複素誘電率測定, 糖化前処理装置

Design of Simplified Microwave Irradiating Launcher for Woody Biomass Pretreatment

Naoki HASEGAWA[†] Tomohiko MITANI[†] Naoki SHINOHARA[†] Masakazu DAIDAI^{†‡}

Hisayuki SEGO[‡] Yoko KATSURA[‡] Takashi WATANABE[†]

[†] Kyoto University Gokasho, Uji, Kyoto, 611-0011 Japan

[‡] Japan Chemical Engineering & Machinery Co., Ltd. 4-6-23, Kasima, Yodogawa ku, Osaka shi, 532-0031 Japan

E-mail: [†] {naoki_hasegawa, mitani, shino, twatanab}@rish.kyoto-u.ac.jp,

[‡] {m-daikai, h-sego, y-katsura}@nikkaki.co.jp

Abstract We have improved a microwave irradiating launcher for woody-biomass pretreatment. In the conventional system, the launcher has included matching tuners and power monitors which play an important role of impedance matching for low microwave reflection. However, the tuners and power monitors make the plant cost expensive, which prevent industrialization. Then, we simplified the launcher by removing tuners and power monitors. We first measured the complex permittivity of a woody-biomass mixture. Next we designed the simplified launcher with 3D First Element Method (FEM) simulator. As a result, we can make the reflection coefficient S11 less than -20dB between 20 and 90 deg. C.

Keyword Microwave Heating, Woody Biomass, Complex Permittivity, Pretreatment System

1. はじめに

近年、木質バイオマスは再生可能な新エネルギーとして注目されている。特に、カーボンニュートラルやサステナビリティの面で、化石燃料の代替品として大きな期待を寄せている。木質バイオマスの組成は、セルロース（40-50%）、ヘミセルロース（10-20%）、そしてリグニン（20-40%）からなり、セルロースやヘミセルロースを糖化・発酵することでバイオエタノールを得ることができる。しかし、木質バイオマスからバ

イオエタノールを生成する場合、酵素糖化力は非常に小さく数%にとどまっている。これは、木質バイオマス中において、セルロースはリグノセルロースとしてリグニンに被覆された構造を持ち、酵素による加水分解反応が進行しにくいためである。この問題に対して、J. Azuma らは木質バイオマスの糖化前処理としてマイクロ波加熱を行うことで、最高温度保持時間が数分程度であったとしても良好な糖収率を得られるという研究結果を報告している^[1]。これはマイクロ波加熱によ

り、リグニン分子中の結合が切断され、リグニンの低分子化が行われることによりセルロースが分離されるためである。また、この結果は従来の爆砕などの前処理法に比べてもマイクロ波加熱が高い糖化率を与えることが確認されている。そこで現在、マイクロ波加熱を用いた木質バイオマス糖化前処理についての研究及び装置開発が多くなされている^[2]。中でも連続式のマイクロ波前処理装置であれば、木質バイオマス混合溶液を容器中に流しながら連続的に加熱できるというメリットがあり大量処理が可能である。

現在、本研究室において連続式マイクロ波前処理装置のプロトタイプが実現されている^[3]。本プロトタイプ装置より生産されるバイオエタノールの推定値は1.25kg/hであるが、将来の産業化を目指すに当たり更なる大量処理を実現しなければならない。しかし、マイクロ波加熱装置ではマイクロ波の浸透深さの制限により容器の容量を大きくすることが困難である。そこで、安価な簡易型マイクロ波照射装置を量産しプラントを大規模化させることによりバイオエタノールの大量処理を可能とする。これより、本研究では産業化に耐える安価な簡易型マイクロ波前処理装置の設計を行い、将来のプラントスケール化の実現を目指す。

2. 簡易型マイクロ波前処理装置の概要

従来のプロトタイプ装置では、マイクロ波照射部でのインピーダンス整合を行い装置の加熱効率を改善するためのチューナ類や、マイクロ波反射率を測定するための測定器などが設置されており、装置の高額化の原因となっていた^[4]。そこで、本研究ではこれらの高額な機器を用いることなく高効率な加熱効率を実現することで装置の簡単化を行う。

図1に連続式簡易型マイクロ波前処理装置の概要を示す。マイクロ波発振器には安価なマグネトロン（日立マグネトロン 2M130, 1.5kW）を用いることで装置の低コスト化に貢献する。プロトタイプ装置からの変更

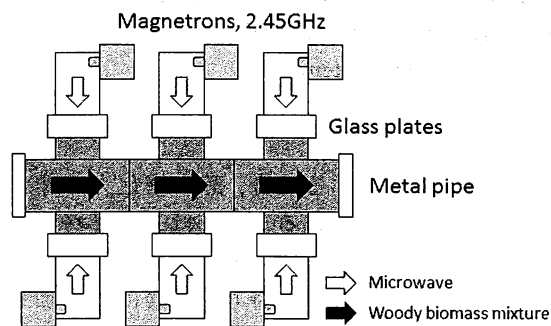


図1.: 連続式簡易型マイクロ波前処理装置概要

点は、(i)チューナ類、測定機器の不使用、(ii)ガラス部の薄化、(iii)給電部の多ポート化である。(i)を実現するために被加熱物である木質バイオマス混合溶液の複素誘電率測定を行い、これより計算される压力容器の入力インピーダンスに最適化されたマイクロ波照射部を設計する。ガラス部の薄化については、ガラス部におけるマイクロ波の縮退を防ぎ、高次モードによる反射や損失が低減できると期待される。しかし本装置において、压力容器に1.5MPaという大きな圧力をかけながら前処理を行うため、ガラス寸法は大きな制限を受けることになる。そこで、従来の石英ガラスからパイレックスガラスへ変更することで、ガラス厚さを20mmから15mmへ薄くした。また、加熱むら対策として压力容器中心部に攪拌機を設置して被加熱物を攪拌する。さらに、多ポート化を行うことにより、1ポート装置に比べ被加熱物のより急速な温度上昇が期待でき、これは装置の消費電力量を抑える上で有利である。また、加熱むらの低減が期待でき、木質バイオマスの前処理量の向上が期待できる。

3. 被加熱物の選択と複素誘電率測定

今回、被加熱物として水系の有機酸水溶液とユーカリチップ混合溶液を用いる。有機酸を用いる理由としては、希酸を溶液に添加することでリグニンの加水分解反応を促進し、セルロースの糖収率を上昇させることができるためである^[2]。また、有機酸を用いてリグニンの分解反応を促進させる場合、ユーカリなどの広葉樹との相性がよいことが知られている^[5]。さらに今回より、先行研究で用いていた有機溶媒系から水系の溶液に変更することにより、溶液コストを削減する。ユーカリについては、東南アジア地域で単位haあたり毎年10tから30tの成長が見られる代表的な早生樹種として知られており^[6]、産業化する上での十分な生産性を確保できると考えられる。以上より、水系有機酸水溶液とユーカリチップ混合溶液を用いることは糖収率や樹種特性、薬品コストの面で多くのメリットを持つ。

そこで今回、蒸留水、0.03wt%有機酸水溶液、及び15wt%ユーカリチップの混合溶液についてAgilent社製85070Eプローブキットを用いて複素誘電率測定を行った。測定した複素誘電率の実部と虚部の周波数特性、温度特性をそれぞれ図2、図3に示す。図2より、有機酸水溶液やユーカリチップ混合溶液の複素誘電率の実部はおおよそ蒸留水の値に近く、2-5GHzの周波数範囲においてほぼ一定値となった。また、虚部については有機酸水溶液とユーカリチップ混合溶液において低周波域での値の増加が見られた。これは、Maxwell-Wagner効果と呼ばれ、イオン伝導度を持つ

電解溶液特有の現象である。今、複素誘電率の虚部は以下のように表すことができる。

$$\epsilon'' = \epsilon''_{dipole} + \frac{\sigma}{2\pi f} \tag{1}$$

ただし、右辺第1項は誘電体の双極子による損失、第2項はイオン伝導度による損失をそれぞれ示す。式(1)よりイオン伝導度による損失項は周波数 f を分母に持つため、低周波域において値が大きくなったと考えられる。ただし、およそ 2GHz よりも高い周波数帯において、有機酸水溶液の虚部の値は蒸留水の値に漸近する。また、ユーカリチップ混合溶液では測定した周波数域において虚部の値が全体的に上昇していることが確認された。これは、ユーカリチップを混合させることにより、溶液の損失が大きくなることを意味する。

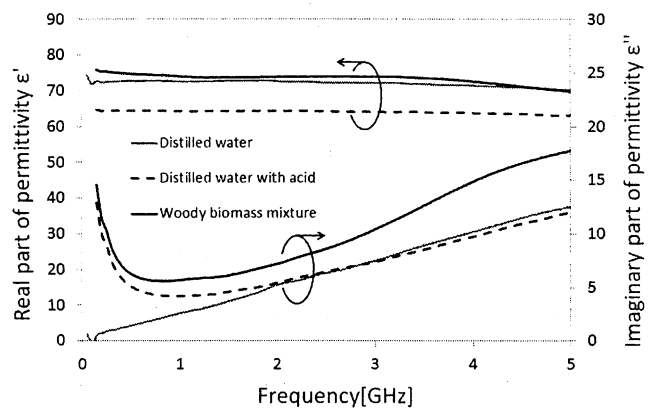


図 2. : 測定温度 40℃での複素誘電率周波数特性

次に、周波数 2.45GHz における複素誘電率実部と虚部の温度特性を図 3 に示す。グラフより、被加熱物の温度上昇に伴い複素誘電率の実部と虚部の値はともに減少していくことがわかる。また、有機酸水溶液に比べユーカリチップ混合溶液では温度変化における複素誘電率実部の変化量が抑えられている。一方、虚部の値は全体的に上昇し損失が大きくなることが確認できる。

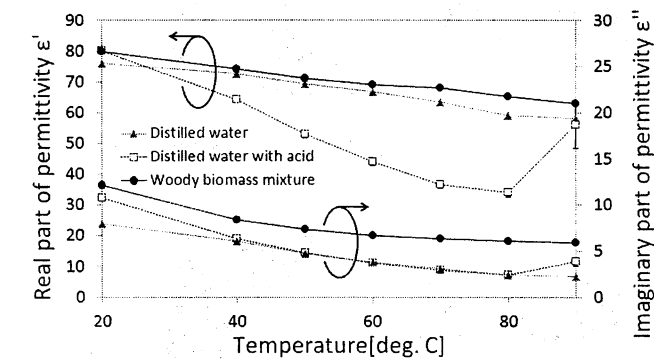


図 3. : 周波数 2.45GHz での複素誘電率温度特性

ここで、測定した複素誘電率の測定値から被加熱物

の電力半減深度と単位面積あたりの吸収電力を計算する。電力半減深度と吸収電力はそれぞれ以下の式で与えられる。

$$L_{\frac{1}{2}} = \frac{3.32 \times 10^{10}}{f \sqrt{\epsilon'} \tan \delta} \text{ mm} \tag{2}$$

$$P_L = 2\pi f E^2 \epsilon' \tan \delta \tag{3}$$

ただし、 $\tan \delta = \epsilon''/\epsilon'$ は誘電正接であり、 E は電界強度である。ここで、電界強度 $E = 1 \text{ V/m}$ としたとき 2.45GHz における電力半減深度と吸収電力の温度特性を図 4 に示す。

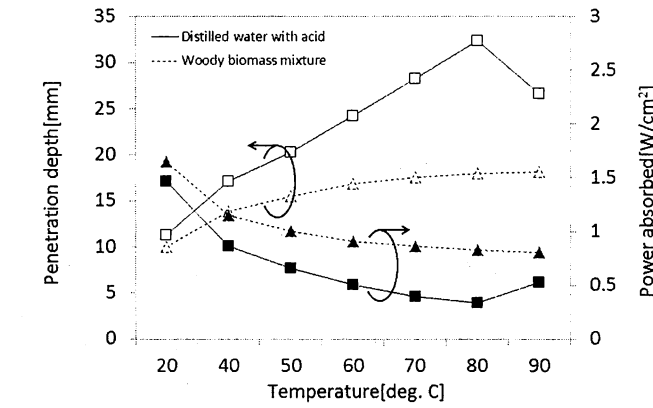


図 4. : 有機酸水溶液及びユーカリチップ混合溶液の電力半減深度と吸収電力の温度特性

図 4 より、各被加熱物ともに電力半減深度は温度上昇に伴いだんだんと上昇し、一方で吸収電力はだんだんと減少する。これより、電力半減深度と吸収電力の間にはトレードオフの関係があり、温度上昇に伴いマイクロ波の単位面あたりに吸収される電力が減少したために、電力半減深度は上昇すると考えられる。また、図 4 の電力半減深度の理論値からも、ある程度の圧力容器の容量を確保する場合、攪拌機や多ポート化による加熱むら低減の必要性が確認できる。

4. 単ポートマイクロ波照射装置の設計

測定した被加熱物の複素誘電率の値を元に、3 次元有限要素法シミュレータ (ムラソフトウェア社, Femtet) 上で簡易型マイクロ波照射装置の設計を行った。ただし、被加熱物として 0.03wt%有機酸水溶液と 15wt%ユーカリチップの混合溶液を想定した。図 4 に簡易型マイクロ波照射装置のシミュレーションモデルを示す。本装置は圧力容器、ガラス部、方形導波管、及びマグネトロンからなる非常にシンプルな装置である。今、方形導波管として一辺 70mm の正方形導波管を用いているが、この場合の基本モードのカットオフ周波数と高次モードである TM11 モードのカットオフ周波数はそれぞれ 2.1GHz 及び 2.5GHz である。これより 2.45GHz の周波数においては基本モードである TE10

モードのみが導波管部を伝搬する。また、マイクロ波給電部にはマグネトロンアンテナを模擬したポートを設置した。なお、入力マイクロ波の電力としては1.5kWを想定する。

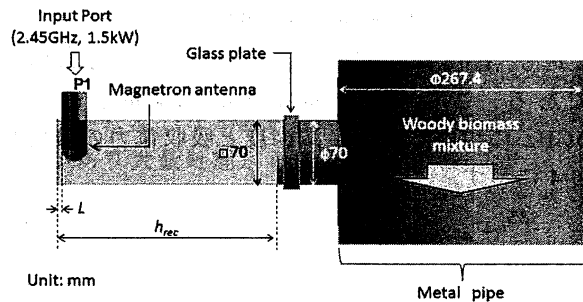


図 5：簡易型照射装置のシミュレーションモデル

上記モデルにおいて、方形導波管の短絡板からの長さ h_{rec} 及び短絡板からのマグネトロンアンテナの距離 L についてパラメトリック解析を行い、適切な h_{rec} 及び L の値を決定した。図 6 に h_{rec} 及び L の値についてパラメトリック解析を行ったときの装置の反射特性を示す。図 6 より、短絡板からの方形導波管の長さ h_{rec} が変化するとき、方形導波管部における管内波長の半波長分毎に装置の反射率 S_{11} は周期的に低くなることが確認された。これはつまり、ガラス部より先を見た入力インピーダンスに対して、方形導波管の給電部からの長さとして短絡板までの長さを適切に設定することでインピーダンスマッチングが行われたものと考えられる。

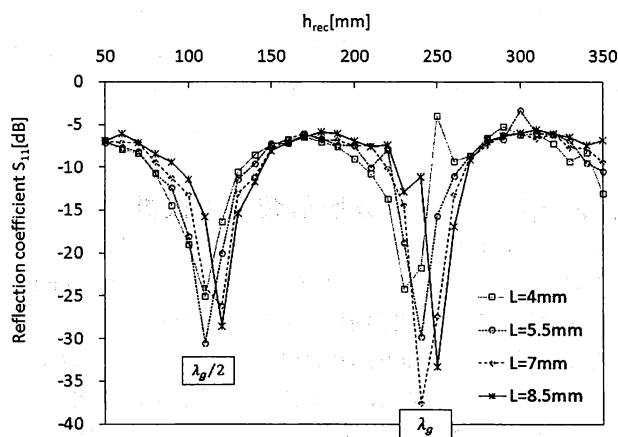


図 6： h_{rec} 及び L を変化させたときの装置反射特性 S_{11}

これより、図 5 モデルにおいて $h_{rec} = 240$ mm 及び $L = 7$ mm としたときの装置の周波数特性を図 7 に示す。図 7 より 2.45GHz において確かに装置の S_{11} が大きく減少していることが確認できる。また、図 7 におけるグレーで覆われた周波数範囲はマグネトロンの発

振周波数スペクトル帯域である。一般にマグネトロンの発振周波数スペクトルは ± 200 MHz 程度の周波数範囲を持ち^[7]、例えば共振器系の加熱装置において効率低下の原因となることが知られている。そこで、マグネトロンを用いた高効率な加熱装置を目指す以上、マグネトロンの発振周波数帯域に対応した加熱装置を設計する必要がある。今、図 7 を見ると本装置の S_{11} が -10dB 以下となる周波数範囲が、マグネトロンの発振周波数スペクトル帯域をカバーしていることが確認できる。

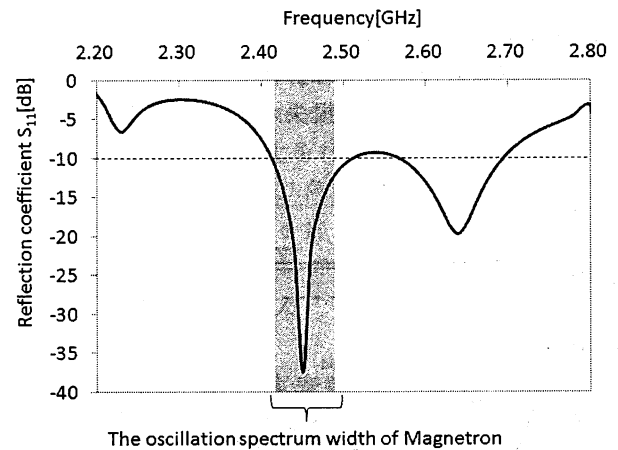
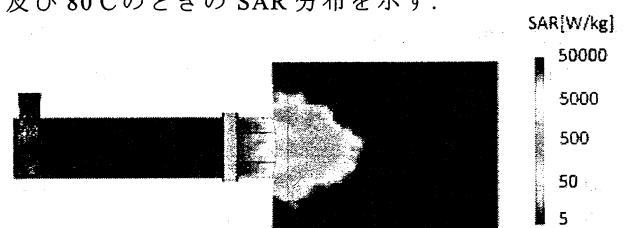
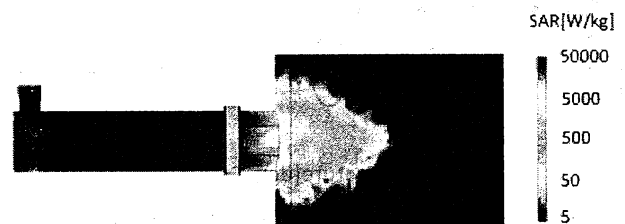


図 7：装置の反射特性 S_{11} の周波数特性

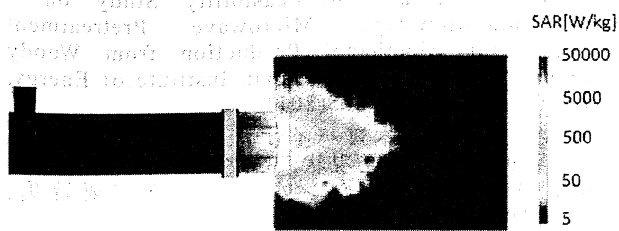
次に、装置の被加熱物温度特性について検討した。被加熱物の複素誘電率の実部と虚部は図 3 からわかるように温度上昇に伴いだんだんと減少していく。これより、圧力容器の加熱効率やマイクロ波反射特性は温度上昇に伴い変化していくため、これらの特性の変化がどの程度あるかを調べるのは装置を運用する上で重要である。そこで、図 8 に被加熱物の温度が 30℃、60℃、及び 80℃のときの SAR 分布を示す。



(a)：被加熱物温度 40℃における SAR 分布



(b)：被加熱物温度 60℃における SAR 分布



(c) : 被加熱物温度 80℃における SAR 分布

図 8 : SAR 分布の被加熱物温度特性

なお, SAR 分布とは単位質量あたりに吸収される電力を示し, 以下の式により表される.

$$SAR = \frac{1}{2\rho} \sigma' E^2 \quad (4)$$

ただし, $\sigma' = \sigma + \omega \epsilon' \tan \delta$ であり, ρ は密度, σ は導電率, ϵ' は複素誘電率実部, $\tan \delta$ は誘電正接, ω は角周波数, そして E は電界強度をそれぞれ示す. 図 8 より, 被加熱物温度が上昇して行くにつれ, 高い SAR を示す領域が中心部に広がっていくことが確認できる. ただし, 図 8 からわかるように浸透深さの制限によりマイクロ波が圧力容器の深い部分にまで達していないことが確認できる. これより, 実機では図 4 から得た結果と同様に攪拌機の設置や多ポート化により加熱むらを低減させる必要がある.

また, 被加熱物の温度上昇に伴う装置の S_{11} 及び圧力容器中でのマイクロ波の消費電力の温度特性を図 9 に示す. 図 9 から分かるように本装置では被加熱物の温度が 20℃から 90℃まで変化した場合であっても装置の S_{11} は -30dB 以下に抑えられ, 圧力容器中でのマイクロ波消費電力は 1.45kW 以上となった. 今, 入力するマイクロ波の電力が 1.5kW であるので本装置における加熱効率は 96%以上を達成したこととなる.

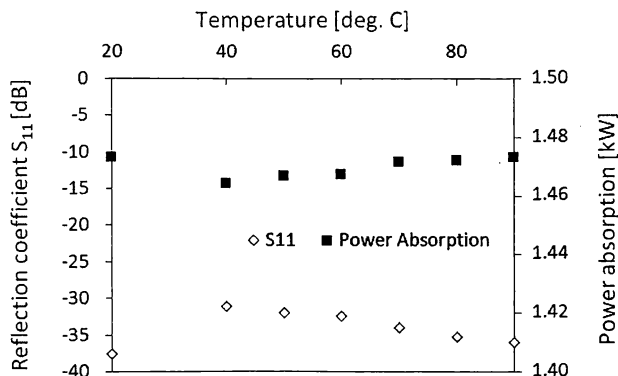
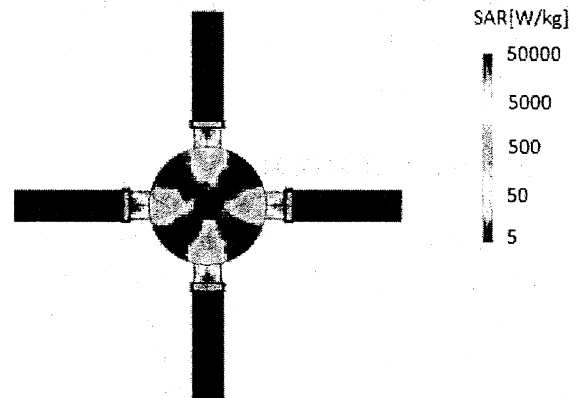


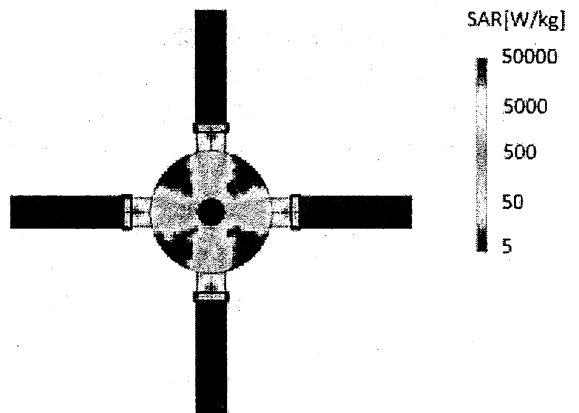
図 9 : 装置の反射率 S_{11} 及び圧力容器における消費電力の被加熱物温度特性

5. 装置の多ポート化

マイクロ波の急速加熱効果をさらに高めることで装置の消費電力量を抑え, さらに加熱むらを低減するために装置の照射部を 4 ポート化した. このときの装置の SAR 分布及び, S_{11} と圧力容器中の消費電力の被加熱物温度特性をそれぞれ図 10, 図 11 に示す. なお, 今回のモデルでは圧力容器の中心部に攪拌機を模擬した導体柱を設置した.



(a) : 被加熱物温度 40℃における SAR 分布



(b) : 被加熱物温度 80℃における SAR 分布

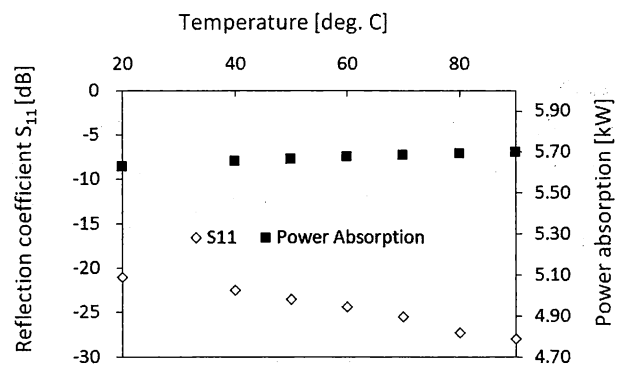


図 11 : 4 ポート装置の反射率 S_{11} 及び圧力容器における消費電力の被加熱物温度特性

図 10 より, 1 ポート装置と同様に被加熱物の温度が上昇するに従いマイクロ波の浸透深さが深くなっていることが確認できる。また, 4 ポート化したことにより SAR の値が高い領域が図 8 に比べ大幅に増加していることが確認される。また図 11 より, 装置の反射率 S_{11} 及び圧力容器中での消費電力は被加熱物温度が 20℃から 90℃まで上昇した場合であっても, それぞれ -20dB 以下及び 5.5kW 以上, つまり加熱効率 93%以上を実現することができた。これより, 4 ポート化したことによる装置特性への影響はほとんど見られないことが確認された。

6. まとめと今後の課題

今回の報告では, 木質由来のバイオエタノール製造の産業化を目指し, 木質バイオマス糖化前処理装置の簡易化及び多ポート化を行った。特に今回の装置では, 従来用いていたチューナ類や測定器などを用いることなく装置の反射特性 S_{11} を -30dB 以下とし, 加熱効率 96%以上をシミュレータ上で実現することができた。これは, 装置の大幅な低コスト化やプラントの実現に対する大きな貢献となる。

また, 装置での消費電力量を抑え, 圧力容器での加熱むらを低減するために 4 ポート化を行った。この場合のモデルであっても, 装置の反射特性 S_{11} を -20dB 以下とし, 加熱効率 93%以上をシミュレータ上で実現することができた。

以上より, 3 次元シミュレータ上において装置の簡易化を行うことができた。今後, 実際に装置を制作しシミュレーション値との比較を行い, 装置の処理能力及び糖収率の検討を行う。さらに, 現在の被加熱物のユーカリチップの混合比率は 15wt%であるが, チップ混合率が多いほど装置の処理量は上昇する。そこで今後, ユーカリチップの混合率を変化させた場合, 装置の反射特性や加熱効率にどのような影響を生じるかを検討する。

7. 謝辞

本研究は独立行政法人新エネルギー・産業技術総合開発機構 (NEDO) 「新エネルギー技術研究開発／バイオマスエネルギー高効率転換技術開発 (加速先導技術研究開発)」に採択され, 支援を受けている。本プロジェクト関係各位に深く感謝する。

文 献

- [1] J. Azuma, and T. Katayama, "Microwave Irradiation of Lignocellulose Materials," Mokuza Gakkaishi, 30, pp.501-509(1984).
- [2] 越島 哲夫 他, マイクロ波加熱技術集成, 越島 哲夫 (編), pp.177-195, (株) NTS, 東京(1994).

- [3] T. Mitani et al, "A Feasibility Study on a Continuous-flow-type Microwave Pretreatment System for Bioethanol Production from Woody Biomass," Journal of the Japan Institute of Energy, vol.90, no.9, pp.881-885(2011).
- [4] 三谷 友彦 他, "木質バイオマス前処理用マイクロ波照射装置の開発現状," 第 5 回日本電磁波エネルギー応用学会シンポジウム講演要旨集, pp.78-79(2011).
- [5] 渡辺 隆司, "木質バイオマスからの高効率バイオエタノール生産システムの研究開発," NEDO「バイオエネルギー関連事業報告会」, pp.157-162(2010)
- [6] 横山 伸也 他, アジアバイオマスハンドブック-バイオマス利用活用の手引き-, 横山 伸也 (編), pp.12-80, 社団法人 日本エネルギー学会, 2002.
- [7] T. Mitani et al, "Improvement of Spurious Noises Generated from Magnetrons Driven by DC Power Supply after Turning off Filament Current," IEICE TRANS. ELECTRON., VOL.E86-C, NO.8, pp.1556-1563(2003).