

リング媒体利用粉砕で杉を粉砕する際の粉砕熱の影響

高橋武彦¹, 石川理樹²¹ 秋田県立大学システム科学技術学部機械知能システム学科² 秋田県立大学大学院システム科学技術研究科

本研究では、パッチ式のリング媒体利用粉砕機である HV30 の粉砕容器のジャケットを導入流体により加熱および冷却できるシステムを構築し、杉粉末の粉砕調製において粉砕時の熱状態の違いがどのような影響を持つか、実験により検証した。粉砕試験における 60 分粉砕後の到達温度は、水道水による冷却、オイルによる冷却、オイルによる加熱のそれぞれで、44°C, 117°C, 139°C となり、熱状態を変えた粉砕試験が実施できた。しかし、それらの粉砕調製で得られた杉粉末では、粉砕時の温度の違いによらず 20 分粉砕で平均粒径 30 μm , 80% 通過粒径 40~50 μm へ到達し、60 分粉砕でセルラーゼ酵素を用いた場合の酵素糖化率が 70% へ到達するなど、安定した粉砕効果が確認できた。

キーワード: リグノセルロース, バイオマス, 杉, 熱付加粉砕, 酵素糖化

秋田県立大学では、木質バイオマスや草本バイオマスなどのバイオマス資源を活用するバイオリファインリーにおける粉砕前処理を効果的に実施するため、リング媒体の転動運動により粉砕を行うリング媒体利用粉砕機（タンデムリングミル）を開発した；高橋ら（2012）。タンデムリングミルでの粉砕により、杉はもちろんのこと、稲わら、もみ殻など、木質、草本を問わず様々なバイオマスで、セルラーゼ酵素を用いた加水分解においてセルロース、ヘミセルロースを単糖に変換する割合である酵素糖化率を高くできる結果を得ている；Takahashi et al（2014）。

木質バイオマスは、リグノセルロースが主成分であり、おおまかにはセルロース、ヘミセルロース、リグニンから構成されている。これら熱分解温度は、ヘミセルロースでは 180~300°C、セルロースでは 240~400°C、リグニンでは 280~550°C とされている；栗山（1967）。粉砕時にこの温度範囲に到達すれば、リグノセルロースの一部が熱分解すると考えられる。これまでの HV30 型タンデムリングミルでのバッチ粉砕では、粉砕中に粉砕容器のジャケット構

造に冷却水を通して粉砕熱を除去し、粉砕容器内部の温度上昇を抑制しており、粉砕熱が粉砕粉末に与える影響については検討されていない。また、連続粉砕のための粉砕容器長の延長や、大型化のための粉砕容器径の拡大を考えると、それらのジャケット構造の付加は、製造コストの増加や構造強度の低下の要因となる。

本研究では、HV30 型タンデムリングミルのジャケット構造を導入流体により加熱および冷却できるシステムを構築し、杉粉末の粉砕調製において粉砕時の熱状態の違いがどのような影響を持つか実験により検証した。その結果を報告する。

リング媒体利用粉砕機の加熱・冷却装置の概要

本研究で使用したリング媒体利用粉砕機は、HV30 型タンデムリングミルであり、その構造およびリング媒体は既報と同様である；高橋ら（2016）。

リング媒体利用粉砕機は、粉砕容器の円運動によりリング媒体が粉砕容器の内壁に沿った転動運動を

行い、粉砕容器内の粉砕物に対して粉砕容器内壁とリング媒体の間でリング媒体の自転によるせん断力とリング媒体の公転による圧縮力を与えて、粉砕物を粉砕するものである。既報では、粉砕容器に対して 800 g~1000 g までの杉の粉砕物であれば、ホロセルロースに対する酵素糖化率を 80%前後と、高くする粉砕調製が可能であることを明らかにした；高橋ら (2016)。本実験では、粉砕時に発生する熱が粉砕に与える影響を明らかにするため、高糖化率となる粉砕粉末が安定して粉砕調製できる粉砕量である 800g/粉砕容器を粉砕条件に設定した。

図 1 に粉砕容器の加熱・冷却用のジャケット構造の概念図を示す。粉砕容器の加熱・冷却は、粉砕容器の外周面の設置されたジャケット構造内に加熱もしくは冷却用の媒体を流すことで実施した。この場合、粉砕容器内部への媒体の流入は無く、粉砕容器

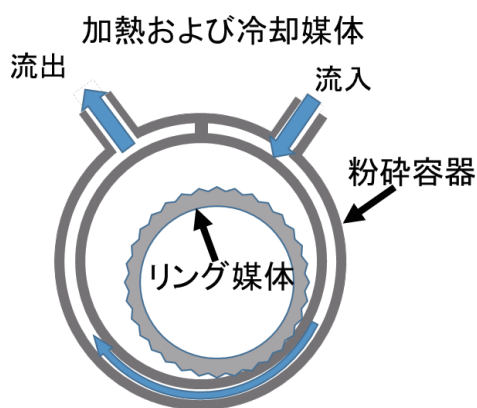


図 1 粉砕容器の加熱・冷却用のジャケット構造の概念図

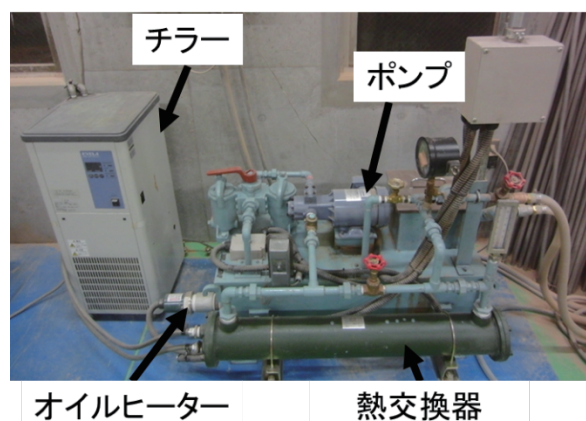


図 2 加熱もしくは冷却用のオイルを循環させるオイル循環ユニットの設置状況

の外周面を通じた熱交換により、間接的に粉砕容器の内部温度を調整している。

図 2 に加熱もしくは冷却用のオイルを循環させるオイル循環ユニットを示す。オイル循環ユニットのオイルタンク容量は 80 L、ポンプ吐出圧力は 0.44 MPa、吐出量は 15 L/min であり、流量調整用にバルブで流量調整できる戻り配管を備えている。また、オイル加熱はオイルタンク内に設置された、3 kW の八光電気製オイルヒーターを用いて実施し、オイル冷却はポンプによる送り配管に伝熱面積 1.8 m² のオイルクーラを接続し、そのオイルクーラを冷却能力 850 W の EYELA 製チラーで冷却して実施した。

なお、粉砕機は粉砕容器 2 個で同時に粉砕を行う構造であり、このオイルによる加熱・冷却は片側で実施し、もう一方は水道水により冷却した。

実験手順

粉砕試験に使用した杉粉末は、杉材チップをスチールプラントック製衝撃式粉砕乾燥装置 KDS-2 で粗粉砕と含水率調整を同時に行い、含水率 10~15% に調節しながら予備粉砕したのち、ふるいで 100 μm 以下に分級したものをを用いた。

粉砕条件は、粉砕容器 1 つ当たりの粉砕量を 800 g とし、モータ回転数を 1600 rpm、粉砕機の振幅を 6 mm、粉砕時間を 60 分とした。また、10 分毎に粉砕機を止めてサンプルを採取した。粉砕試験中の粉砕容器内の温度は、粉砕容器の蓋に取り付けたミスミ製のシース型の熱電対 TCKC により測定した。

今回の粉砕試験では、粉砕容器のジャケット構造内に水道水、加熱および冷却したオイルを流し、粉砕容器内の加熱状態を変えている。水道水の流量を 6 L/min とした場合の粉砕容器内の初期温度は 9.4℃、加熱オイル 15 L/min とした場合の粉砕容器内の初期温度は 30.9℃、冷却オイル 15 L/min とした場合の粉砕容器の初期温度は 7.1℃となった。粉砕試験はこの 3 条件で行った。

粉砕時にサンプル採取した粉砕粉末は、粒度分布測定と酵素糖化試験で評価した。粒度分布測定は、日機装製の Microtrac MT3300EX II で行い、平均粒径および 80%通過粒径により評価した。酵素糖化試験

は、pH5.5 の 0.1M 酢酸バッファー溶液 2 ml に対し、杉粉砕粉末を 2 w/v%，セルラーゼ酵素の Novozymes 製 Cellic CTec2 を 0.1 wt% 混合し、恒温振とう装置を用いて反応温度 50℃，振動数 200 rpm，反応時間 48 時間として実施した。糖量測定はシェールズ試薬法により行い、日立ハイテクノロジーズ製の分光光度計 U-3900H を用いて、波長 420 nm で評価した。また校正曲線にはグルコース検量線を用いた。

測定した糖量を基に杉粉末の酵素糖化率を評価した。酵素糖化率の定義は、杉粉末の組成をセルロース 39.6 %，ヘミセルロース 28.4 %，リグニン 31.5 % とし、このセルロースとヘミセルロースを合計したホロセルロース 68% を基準として酵素糖化試験で得られた糖量の割合とした。

実験結果

図 3 に加熱オイル、冷却オイル、水道水で粉砕中の除熱量を変えて粉砕試験を実施した際の粉砕容器内の温度変化を示す。なお、10 分間隔で生じている一時的な温度低下は、粉砕機を停止して粉砕物のサンプルを行った際の影響によるものである。いずれ条件においても粉砕時間の増加にともない温度が上昇している。

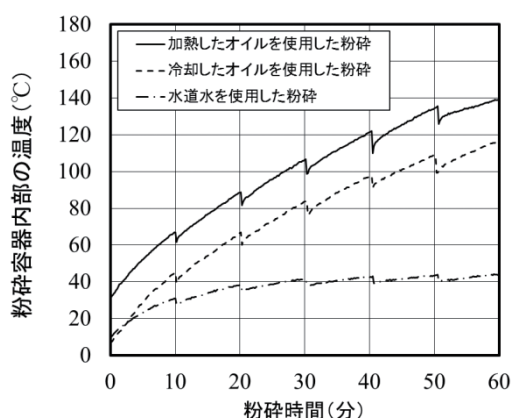


図 3 粉砕試験を実施した際の粉砕時間にもなる粉砕容器内の温度変化

最終的な粉砕容器内の温度は、加熱オイルを用いた熱状態での粉砕では 139.7℃，冷却オイルを用いた粉砕では 117.3℃，水道水を用いた冷却では 40℃と

なった。以上より、加熱オイル、冷却オイル、水道水で粉砕中の除熱量を変えることで、温度状態を変えた粉砕が出来ていると確認できる。

一方でこの結果は、粉砕によって生じる粉砕熱による熱量が大きく、粉砕容器のジャケット構造通じて与えられる熱交換量を上回っているものと理解できる。今後、本粉砕方式を実用化する際の連続粉砕にともなう粉砕容器長の増加や大型化にともなう粉砕容器径の増加においては、更なる粉砕熱の増加が予想されるため、粉砕熱を除熱する仕組みを検討する必要があると考える。

図 4 に加熱オイル、冷却オイル、水道水で粉砕中の除熱量を変えて粉砕試験を実施した際の粉砕粉末平均粒径の変化を示す。また、図 5 に同じく 80%通

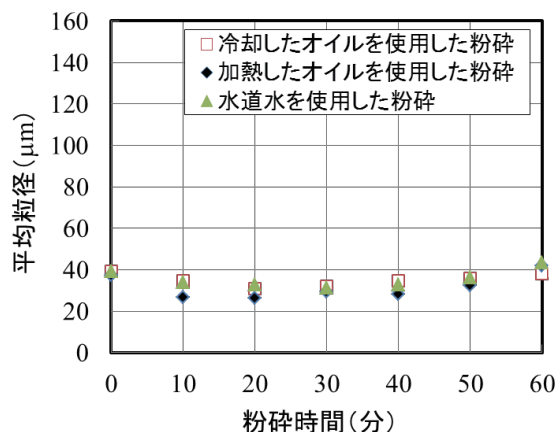


図 4 粉砕試験を実施した際の粉砕時間にもなる粉砕粉末の平均粒径の変化

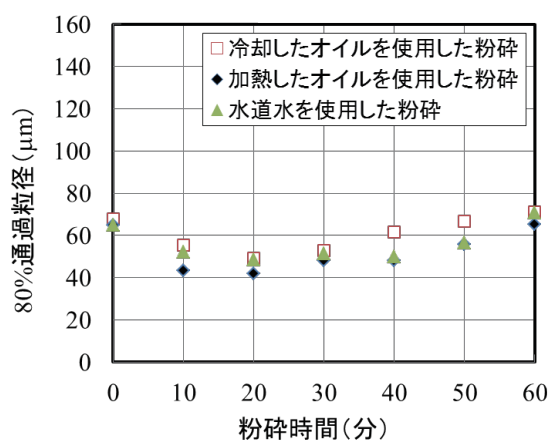


図 5 粉砕試験を実施した際の粉砕時間にもなる粉砕粉末の 80%通過粒径の変化

過粒径の変化を示す。

初期粒径は、ふるいで分級した粗粉末の粒径であり、平均粒径で 40 μm 程度、80%通過粒径で 65 μm 程度で違いは無い。またいずれの粉碎においても、粉碎時間 20 分において平均粒径、80%通過粒径ともに下げ止まりとなり、それぞれ 30 μm 、50 μm 程度である。その後の粉碎時間の増加にともない粒径の増加傾向が確認できる。これは粉碎粉末の凝集によるものと考えられる。しかし、いずれの温度状態の粉碎においても、粒径変化の傾向に違いは見られず、本粉碎での 140°C 程度までの温度状態までは、粒径変化に対して影響が無いものと判断できる。

図 6 に加熱オイル、冷却オイル、水道水で粉碎中の除熱量を変えて粉碎試験を実施した際の粉碎粉末の酵素糖化率の変化の比較を示す。粉碎前の粉末の酵素糖化率は 30% 程度であり、既報における結果；高橋ら (2016) と比べると 15 ポイントほど高くなっている。これは、100 μm のふるいで分級した粗粉末を用いることで、粉碎前の段階から粒径が小さく、比表面積が大きくなり、セルラーゼ酵素との反応性が上がったためであると考えられる。

粉碎時間の増加にともない酵素糖化率が増加し、60 分粉碎後では、温度状態の違いによらず 70% 前後の高い酵素糖化率が得られている。しかし、こちらも粒径と同様に、本粉碎では、140°C 程度までの温度状態までは、酵素糖化率への影響は無いものと判断できる。

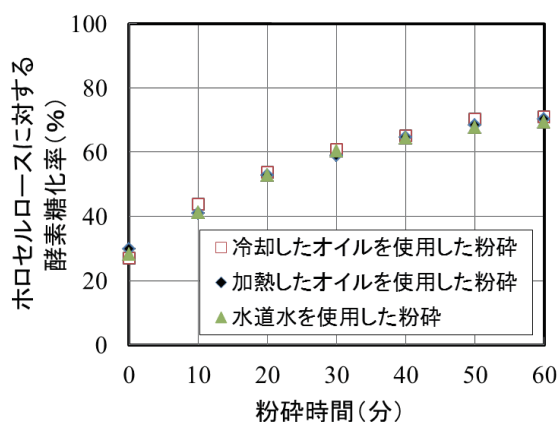


図 6 加熱オイル、冷却オイル、水道水で粉碎中の除熱量を変えて粉碎試験を実施した際の粉碎粉末の酵素糖化率の変化の比較

まとめ

本研究では、リング媒体利用粉碎において粉碎中に発生する熱が粉碎粉末に与える影響を調査した。その結果得られた知見を以下に示す。

- 1) 粉碎試験における粉碎温度 140°C までの粉碎では粒径変化に違いは見られず、粉碎中に発生する熱は粉碎粉末の粒径に影響を与えない。
- 2) 粉碎試験における粉碎温度 140°C までの粉碎では酵素糖化に違いは見られず、粉碎中に発生する熱は粉碎粉末の酵素糖化性に影響を与えない。

謝辞

本研究は、秋田県立大学平成 27 年度 学長プロジェクト研究費「科研費チャレンジ研究」の支援を受けて行った。ここに記して、謝意を表する。

文献

- 高橋武彦, 伊藤新, 遠田幸生, 伊藤一志, 小林淳一 (2012). 「木質系バイオマス微粉碎効率向上のための歯車型リング媒体利用粉碎機の研究開発」『日本機械学会論文集 (B 編)』78 (788) 905-916.
- T. Takahashi, K. Ito, A. Ito, Y. Enda, M. Gochi, H. Mori, J. Kobayashi (2014). Tandem ring-mill pulverization benefits for enzymatic saccharification of biomass, *Renewable Energy*, 65, 146-151.
- 栗山旭 (1967). 「木材の 200°C までの加熱処理による化学的変化について」『材料』16, 169, 16-19.
- 高橋武彦, 森英明 (2016). 「リング媒体利用粉碎における粉碎容量が粉碎効率に与える影響の検討」『秋田県立大学ウェブジャーナル B (研究成果部門)』2, 6-10.

〔平成 28 年 7 月 20 日受付
平成 28 年 7 月 31 日受理〕

Effect of Heat on the Japanese Cedar Powder Pulverized by Vibration Milling Using Ring Media

Takehiko Takahashi¹ and Masaki Ishikawa²

¹ *Department of Machine Intelligence and Systems Engineering, Faculty of Systems, Science and Technology, Akita Prefectural University*

² *Course of Machine and Intelligence Systems, Graduate School of Systems Science and Technology, Akita Prefectural University*

In this study, we investigated the heat effect on Japanese cedar powder pulverized in batch pulverization tests using a HV30-type tandem-ring mill. An oil heating and cooling system for heat exchange at the jacket of the mill chamber was constructed to control the temperature during the pulverization tests. Then, pulverization tests were subsequently carried out at 44 °C, 117 °C, and 139 °C. The mean particle size and 80%-pass particle size achieved in the tests were approximately 30 and 40–50 μm, respectively, after 20 min of pulverization, irrespective of the temperature. In addition, the saccharification efficiency reached 70% after 60 min of pulverization, irrespective of the temperature. Therefore, temperatures as high as 139 °C at the tandem-ring mill have no effect on Japanese cedar pulverization.

Keywords: lignocellulosic biomass, Japanese cedar, heating pulverization, enzymatic saccharification

Correspondence to Takehiko Takahashi, Department of Machine Intelligence and Systems Engineering, Faculty of Systems Science and Technology, Akita Prefectural University, 84-4 Aza-Ebinokuchi, Tsuchiya, Yurihonjo, Akita 015-0055, Japan.

E-mail: takehiko_takahashi @akita-pu.ac.jp