

藻類バイオ燃料生産の  
ダウンストリームプロセスに関する研究

2021年1月

荒巻 徹

藻類バイオ燃料生産の  
ダウンストリームプロセスに関する研究

筑波大学大学院  
生命環境科学研究科  
生物機能科学専攻  
博士（生物工学）学位論文

荒巻 徹

## 論文の要約

地球温暖化の原因たる二酸化炭素の排出量削減に向けて、バイオマスを利用した燃料生産が期待されている。特に、微細藻類は他の陸上植物と比べて、燃料となるオイルの生産性が高いことや耕作に適さない地域でも生育が可能であることから、原料として有望である。しかしながら、従来の方法で製造される藻類バイオ燃料は生産コストが高いため、実用化には至っていない。特に、収穫後の藻類懸濁液の濃縮や燃料製造の工程が生産コストに与える影響は大きい。そのため、藻類バイオ燃料生産の社会実装に向けて効率的なダウンストリームプロセスの開発が求められている。これまで、濃縮工程や燃料製造工程についての独立した検討は多く報告されているが、これらを一貫した視点で俯瞰的に検討した事例はほとんどない。しかしながら、複数の工程にまたがる統一的な視点で各工程を検討することは、新たな課題の発見や、技術開発の指針を明らかにする上で有用である。

本論文は、藻類バイオ燃料生産の社会実装に向けて、ダウンストリームプロセスを構成する藻類懸濁液の濃縮技術とバイオ燃料の製造技術について、一貫した視点でプロセスを組み、実験を通じて得られた定量的知見から新たなダウンストリームプロセスを提案したものである。

第1章では、本研究の背景と目的を述べた。

第2章では、既存技術を組み合わせた濃縮プロセスを検討し、その課題や可能性を明らかにした。濃縮技術を評価する指標のうち、濃縮性能と処理速度の2点を重視して、遠心分離による一次濃縮と凝集・ろ過による二次濃縮という二段階の濃縮プロセスをベンチスケールで検討した。その結果、固形分濃度が0.03 wt%程度の希薄な藻類懸濁液15 tを約2.5 hという短時間で25 wt%程度まで濃縮できることを明らかにした。遠心分離によって排出される大量の上清液は極めて清澄であり、藻類の培養に使う水源としての再利用の可能性が示された。一方で凝集・ろ過操作によって排出されるろ液には凝集剤が混入している可能性があり、培養液としての再利用に適さないことや、それによって有機物を多量に含んだ廃水として処理する必要があることから、より効率的な濃縮プロセスの構築に向けて、凝集剤を使用しないプロセスが望ましいことを示した。また、この連続濃縮プロセスでは、濃縮装置の規模に比べて、100倍程度大きな規模の藻類培養槽を扱うことが可能であることがわかり、処理速度が非常に高いことを示した。一方で、エネルギー消費量を算出した結果、凝集・ろ過に比べて、遠心分離に要するエネルギー量が多いことを明らかにした。

以上より、遠心分離と凝集・ろ過を組み合わせた濃縮プロセスは、濃縮性能と処理速度の2点において、良好な濃縮プロセスであることが示された。希薄な微細藻類懸濁液の濃

縮をベンチスケールで検討し、目標とする固形分濃度 20 wt%程度まで濃縮が行えた成果を詳細な定量的知見と共に示したはじめての成果である。本章で得られた知見は工業規模での濃縮プロセスの設計に役立つと考えられる。

第3章では、第2章の内容を承けて、遠心分離機と凝集剤を使用せずろ過のみで濃縮する方法としてケーキろ過を検討した。孔径の異なるろ布を用いて、固形分濃度 0.01 wt%程度の希薄な藻類懸濁液を定圧ろ過した結果、ろ過の進行に伴って、粒子の捕捉場所が変化し、最終的にケーキろ過へと移行することを明らかにした。ここで得た知見をもとに、効率的にケーキろ過を実施する方法として、微細藻類の大きさよりもあえて孔径の大きなろ布を用いて、固形分濃度 0.1 wt%程度まで予備濃縮した懸濁液のろ過を検討した。その結果、比較的高い透過流束でケーキろ過を実施できるだけでなく、ろ過操作における固形分の阻止率が向上することを明らかにした。しかし、予備濃縮した藻類懸濁液のケーキろ過では、ろ液の流路が狭小化するケーキの圧縮が起きていることが示唆された。そこで、微細藻類で構成されるケーキの圧縮性を評価するために、単位ケーキ重量当たりのろ過抵抗の大きさを表す平均ケーキ比抵抗に対するろ過圧力と堆積ケーキ量の影響を評価した。その結果、堆積ケーキ量が多く、ろ過圧力が大きいほど平均ケーキ比抵抗が大きくなり、藻類で構成されるケーキに圧縮性があることを明らかにした。そのため、比較的穏やかなろ過圧力でろ過を行い、ある程度ケーキが堆積した時点でろ過を終了し、ケーキを回収する操作が望ましいことを示した。

以上より、固形分濃度 0.1 wt%程度の藻類懸濁液をケーキろ過することによって遠心分離機や凝集剤を使用せずに比較的良好な処理速度で高濃度濃縮できることが示された。微細藻類懸濁液の濃縮方法としてケーキろ過を検討した例はなく、本研究を通じてはじめてその可能性や操作条件を明らかにすることができた。また、微細藻類で構成されるケーキは、圧縮性が高いことをはじめて示し、学術的な観点からも有意義な成果である。一方で、培養工程のみで固形分濃度 0.1 wt%の藻類懸濁液を調製することは困難であるため、収穫後の希薄な藻類懸濁液を予備濃縮する必要がある点や、ケーキの圧縮性によって高いろ過圧力でのろ過が非効率な操作となる点を課題として明らかにした。

第4章では、第3章で示した予備濃縮の必要性やケーキの圧縮性という課題の解決策として、農産廃棄バイオマスをろ過助剤として利用する検討を行った。農産廃棄バイオマスを使用する利点は、廃棄物であるため安価で入手できる点や、微細藻類との混合濃縮物として回収された後、微細藻類と共にバイオ原油への変換が期待できる点が挙げられる。選択した農産廃棄バイオマス粒子を予めろ過膜の上に積層させてから固形分濃度 0.05 wt%

の藻類懸濁液をろ過した結果、バイオマス粒子を添加しない場合に比べて、透過流束とろ液への漏出率が高かった。これらは、膜の上に形成したバイオマス粒子の層によって膜の閉塞を起こすファウリング物質が吸着され、膜の閉塞が抑制されたためと考察した。また、膜の目詰まりの抑制や、膜からのケーキの剥離性も改善された。膜の目詰まりを抑制することで、ろ過膜の長期使用による膜コストの低下が期待される。また、ケーキの剥離性が向上することで実質的なケーキの回収率も向上すると考えられる。実験結果に基づいて単位時間当たり単位ろ過面積当たりの固形分回収量を比較した結果、バイオマス粒子を添加することによって、回収効率を大幅に改善できることが示された。

以上より、希薄な懸濁液を予備濃縮せずに直接ろ過しても、バイオマス粒子との混合濃縮物として微細藻類を回収できることが示された。微細藻類の濃縮にろ過助剤を使用するという研究例自体が極めて少ない中、バイオマス粒子をろ過助剤として使用したことは本研究の独創的な成果の1つである。これは、濃縮から燃料製造までの一貫した視点によってプロセスを構築したことによってはじめて考案された新規性の高い濃縮方法である。

第5章では、第4章で得られたバイオマス粒子と微細藻類の混合物を原料とした水熱液化 (HTL) を実施し、バイオ原油の生産性や燃料特性を明らかにした。クルードオイル収率を評価した結果、バイオマス粒子と微細藻類を共に水熱液化処理することで、それぞれの原料を独立に水熱液化処理するよりも、多くのクルードオイルを製造できることが示された。また、クルードオイルにはレジンやアスファルテンのような重質な成分が多く含まれていることを明らかにした。バイオマス粒子と微細藻類の共水熱液化では、各原料を独立に水熱液化処理するよりも特にレジンやアスファルテンが増加したため、これによってクルードオイルが多く製造されたことを明らかにした。水熱液化により得たクルードオイルは石炭と原油の中間的な発熱量を有しており、原料よりもエネルギー密度の高い燃料を製造できることがわかった。バイオマス粒子と微細藻類の共水熱液化は、従来のように有機溶媒を用いて藻体から直接オイルを回収するよりも、エネルギー回収率が高いことを示した。

以上より、バイオマス粒子と微細藻類の共水熱液化を実施することで、クルードオイルの収率が增大する共に、発熱量の高い燃料を製造できることが示された。これまで微細藻類を水熱液化処理した研究は数多く報告されているが、本研究によりはじめて農産廃棄バイオマス粒子と微細藻類を混合して水熱液化を実施することの優位性を示すことができた。また、そこで議論されたクルードオイル収率と原料組成の関係性は、水熱液化処理条件を設定する上での指針を与えるものであると考えられる。

各章で得られた知見に基づいて 3 種類の新たなダウンストリームプロセスを提案した。まず、遠心分離と凝集・ろ過によって藻類懸濁液の濃縮を実施するプロセスでは、エネルギー消費量は大きいですが、短時間で大量処理できる点や、比較的藻類の性状に左右されず濃縮できる点で優れている。ケークロ過によって濃縮するプロセスでは、予備濃縮が必要ではあるが、遠心分離機や凝集剤を使わずにろ過のみで濃縮できるため、エネルギー消費量が少ないだけでなく、スケールアップしやすいと考えられる。農産廃棄バイオマス粒子をろ過助剤として利用したろ過とその後共水熱液化を行うプロセスでは、予備濃縮を行わずに一段階の濃縮工程のみで水熱液化の原料を作製できる点や、共水熱液化により多くのクルードオイルを効率的に製造できる点で有望である。以上、濃縮から燃料製造までの一貫した視点での俯瞰的検討を行うことで、藻類バイオ燃料生産の社会実装に向けた新たなダウンストリームプロセスを提案することができた。これらの提案プロセスが足掛かりとなり、藻類バイオ燃料生産の社会実装につながることを、ひいては、地球温暖化の原因たる二酸化炭素排出の削減に貢献できることを期待する。

#### 付記

本論文の内容の一部は、下記の誌上で報告されている。

- 1) Toru Aramaki, Makoto M. Watanabe, Mitsutoshi Nakajima, Sosaku Ichikawa (2020) Bench-scale dehydration of a native microalgae culture by centrifugation, flocculation and filtration in Minamisoma city, Fukushima, Japan, *Bioresource Technology Reports*, **10**, 100414