

令和 3 年度博士論文

加圧熱水処理による作物残渣からの成分分離とその利用に関する研究

Studies on component separation from crop residues
using hot-compressed water treatment and its utilization

東京農工大学大学院連合農学研究科

農業環境工学専攻

19954002

櫻井 俊輔

論文要旨

本研究では、油糧作物として生産され、それ以外にも多様な目的で栽培されているヒマワリを対象作物として、加圧熱水処理を用いた作物残渣からの植物養分の抽出法とその効果的な利用法の検討を目的とした。作物残渣には良質なセルロースと比較的高濃度の植物養分が含まれていることに着目し、加圧熱水処理は処理条件によって選択的に物質を分離できる点を利用して、セルロース成分主体の固形分と液分に含まれる植物養分総量の両者が最大となる処理条件について検討した。加圧熱水処理によって分離された植物養分の特徴を明らかにするとともに、それら植物養分の有益な循環利用法を構築するため LED 照明を用いたコマツナの養液土耕栽培の試験を通して、効果的な利用条件を考察した。

第1章では、研究の背景と研究目的について述べた。未利用バイオマスの一種である作物残渣はカーボンニュートラルの特徴を有していることから環境負荷の少ないエネルギー資源として注目されている。しかし、作物残渣はかさ密度が低く、灰分が多く、発熱量が少ないことなどが燃料としての利用の課題となっている。本研究で対象にしたヒマワリは乾燥気候に強く、生育期間が比較的短いため、世界的に栽培されていて、その作物残渣量も多い。また、優れた養分吸収能を有していることから、作物残渣に蓄積された植物養分を回収し、再利用できる。本研究で採用した加圧熱水処理は、高温高圧下で水が液状を維持して、増大するイオン積を利用するバイオマス分解技術である。バイオエタノールの原料加工技術として研究されてきた加圧熱水処理はリグノセルロース系バイオマスからのセルロース抽出と発酵阻害物質であるリグニンを分離できる。本章では、作物残渣に蓄積された植物養分を分離・抽出することに焦点を当てた加圧熱水処理法の適用を説明した。

第2章では、対象としたヒマワリの栽培と作物残渣の発生特性について記載した。栽植密度が作物残渣の量と形質に及ぼす影響を検討するため、栽植密度を変えてヒマワリを試験栽培し、作物残渣となる茎の形状変化を観察するとともに、子実収量と作物残渣量の関係を調べた。結果として、栽植密度が高くなるほど茎長は長くなり、茎径は細くなることが確認

された。作物残渣量は栽植密度が高くなるほど増加する傾向が見られ、子実収量も同様であった。栽植密度が高くなると茎の折れや倒伏などのリスクが大きくなることも示された。

第 3 章では、加圧熱水処理法の処理条件がヒマワリ茎に含まれる植物養分の抽出に及ぼす影響について述べた。実験 1 では、栽植密度を変えて栽培し、開花期、登熟期、収穫期に採取したヒマワリ茎を供試し、異なる形質の茎から分離される成分の特徴について調べた。実験 2 では、処理温度と保持時間を変えて加圧熱水処理を行い、異なる加圧熱水条件が植物養分の分離・抽出に及ぼす影響を調べた。その結果、各植物養分の溶出率は元素ごとに異なり、原料内の含有量に依存することが明らかになった。ただし、植物養分の元素総量は材料の C/N 比と密接な関係があり、液分に溶出する植物養分の総量は原料の C/N 比から推定できることが示された。加圧熱水処理の処理温度を高温にするとリン以外の植物養分元素の溶出率は増大するが、セルロースを主とする固形分の残存率が低下したことより、セルロースの分解が進まず、発酵阻害物質の除去も行える 180 °C 程度の温度帯が、得られる固形分と植物養分の双方が最大となる処理温度であるとわかった。

第 4 章では、加圧熱水処理で得られた植物養分の利用法を LED 照明下で試験栽培したコマツナの養液土耕で検討し、効果的な利用法について考察した。試験の結果、抽出液の施用は灌水量とコマツナの生育の両方に影響を及ぼし、抽出液の施用量が多くなるほど生育が抑制された。また、作物残渣の採取時期によって、得られる抽出液はコマツナの生育に影響を及ぼすことが示された。抽出液の施用はコマツナの成長を抑制するが、一方で、相対的な炭素固定量を増大させるため、窒素利用効率は高くなることが分かった。また、抽出液を少量施用することで水利用効率が高まることも明らかとなった。生育障害の一因としてカリウムの過多が考えられた。抽出液の利用による窒素フローより、土壌からの窒素吸収量及び利用率、子実などの生成物の総量から収穫期のヒマワリ茎の利用が植物養分の循環利用に適していることがわかった。

第 5 章では、研究を総括し、残された課題について述べた。今後の研究では、本研究で示された作物残渣量や成分量を使って循環利用モデルとして表し、作物残渣の利用の選択肢

を増やすことが課題となる。加圧熱水処理で投入されるエネルギーと発生する環境負荷を LCA 解析で明らかにして、環境負荷がマイナスになるような利用モデルを構築することが期待される。

第1章 序論.....	1
1.1 作物残渣の利用推進の意義.....	1
1.2 ヒマワリの特徴と作物残渣の利用性.....	2
1.3 成分分離手法としての加圧熱水処理.....	2
1.4 養液土耕栽培.....	4
1.5 研究目的.....	5
1.6 論文の構成.....	5
第2章 作物残渣の発生特性.....	7
2.1 実験目的.....	7
2.2 試験作物および栽培方法.....	7
2.3 生育調査およびサンプリングの方法.....	10
2.4 結果及び考察.....	13
2.4.1 ヒマワリの生育.....	13
2.4.2 ヒマワリの子実および茎の乾物質量.....	16
2.5 まとめ.....	19
第3章 加圧熱水処理が作物残渣の養分抽出に及ぼす影響.....	20
3.1 緒言.....	20

3.2 材料および方法.....	21
3.2.1 実験 1：異なる原料での成分分離.....	21
3.2.2 実験 2：異なる加圧熱水条件での成分分離.....	22
3.2.3 成分分析.....	22
3.3 結果及び考察.....	24
3.3.1 ヒマワリ茎部に含まれる植物養分元素.....	24
3.3.2 加圧熱水処理による植物養分の溶出.....	26
3.3.2.1 固形分の分離.....	26
3.3.2.2 植物養分の溶出.....	30
3.3.3 加圧熱水処理条件の影響.....	31
3.3.3.1 原料の分解.....	31
3.3.3.2 植物養分の溶出.....	32
3.3.4 加圧熱水処理の作物残渣への適用.....	34
3.3.4.1 加圧熱水処理で得られる植物養分量の推定.....	34
3.3.4.2 液分に溶出する有機酸への対応.....	37
3.3.4.3 作物残渣への利用に最適な加圧熱水処理条件の検討.....	38
3.4 まとめ.....	39
3.5 摘要.....	39
第 4 章 加圧熱水処理による抽出液を用いた作物栽培.....	41
4.1 緒言.....	41
4.2 実験方法.....	41
4.2.1 材料.....	41

4.2.2 栽培条件.....	41
4.2.3 試験区の設定.....	42
4.2.4 栽培暦.....	43
4.2.5 生育調査及び収量調査.....	44
4.2.6 ポット内の土壌水分.....	45
4.2.7 栽培棚における温度及び相対湿度の推移.....	46
4.3 実験結果及び高圧.....	46
4.3.1 コマツナの生育.....	46
4.3.1.1 抽出液の混合割合がコマツナの生育に及ぼす影響.....	46
4.3.1.2 抽出液の種類が生育に及ぼす影響.....	50
4.3.1.3 まとめ.....	53
4.3.2 コマツナの乾燥質量及び成分.....	54
4.3.2.1 コマツナの乾燥質量.....	54
4.3.2.2 コマツナの成分.....	55
4.3.3 コマツナの水利用効率.....	56
4.3.4 コマツナの窒素利用.....	59
4.3.4.1 窒素回収率.....	59
4.3.4.2 窒素利用効率.....	60
4.4 加圧根水抽出液の栽培利用に向けた改善案.....	62
4.5 抽出液の利用による窒素フロー.....	62
4.6 まとめ.....	63
第5章 総括.....	65

5.1 緒言	65
5.2 作物の発生特性.....	65
5.3 加圧熱水処理による作物残渣からの養分抽出	67
5.4 栽培試験を通じた加圧熱水処理液の利用手法	68
5.5 結論.....	69
5.6 今後の課題.....	69
引用文献	71
SUMMARY.....	78
謝辞.....	81

第1章 序論

1.1 作物残渣の利用推進の意義

近年、未利用バイオマスの一種である作物残渣はカーボンニュートラルであることから環境負荷の少ないエネルギー資源として注目が集まっている。Lal(2005)は世界の穀類作物残渣は年間28億トン生産されていることを報告している。日本での作物残渣の発生量は1.2～1.4千万トンであると推定されている(Matsumuraら 2005, Minami and Saka 2005)。小川ら(1988)は北海道では、栽培される主要作物の残渣が1 haあたり平均2トンに上ると報告している。作物残渣は発生過程で土壌中の養分を吸収し、大気から二酸化炭素を同化するため、その成分の利用が期待されている。松本ら(2014)は稲わらにおいてホロセルロースと灰分がそれぞれ61.3%, 17.7%含まれていることを報告し、針谷ら(2016)は稲わらに含まれている灰分の主要成分がケイ素である一方でカリウムやカルシウムが20%程含まれていることも明らかにしている。作物残渣は機械収集しやすいが、かさ張ること、形状が不均一であるためハンドリングが難しいこと、灰分の多さから燃料として活用する際に熱量が低いことが問題となっている(Wertherら 2000)。農林水産省(2016)は2016年時点での作物残渣の利用率は約88%であると報告しているが、その大半はすき込みであり、それを除いた飼料や肥料、燃料といった利用は約32%しかない。IPCC(気候変動に関する政府間パネル)の第4次評価報告書(2007)では農業由来の温室効果ガスは世界で年間51～61億トンの二酸化炭素に相当する量が排出されており、人為起源の排出ガスの13.5%を占めると述べている。肥料窒素の施用や農作物残渣のすき込み等に伴って発生する N_2O を農水省に報告することが義務付けられている(大橋ら 2007)など、作物残渣が温室効果ガス発生の一因となっている。また、農林水産省(2021)は2025年までに作物残渣の利用率を約45%に到達させることを目標としており、より経済的な価値を生み出す高度利用を推進している。そのため、バイオマス資源の高度利用化を実現させるためには、有用成分を段階的に回収し、最終的に飼料や肥料、バイオリファイナリーのための微生物発酵原料、燃焼によるエネルギー

の回収などに利用するといった体系化された開発システムの構築が重要となる(阪本ら 2014).

1.2 ヒマワリの特徴と作物残渣の利用性

本研究では油糧作物であるヒマワリを栽培し、その茎を作物残渣として扱った。ヒマワリ (*Helianthus annuus* L.)(2n=24)はキク科の一年生草本で、油糧作物としての生産量は第6位である(FAO STAT 2019)。油糧用以外にもクリーニングクロップ、景観作物、緑肥など多様な目的で栽培されている。根系が発達しており、耐乾性を持ち、冬に300 mm程度の降雨でも灌漑なしで作物生産ができる(Bassam 2004)。生育初期は適切な除草や間引きを必要とするが、開花始を過ぎれば耐乾性から放任で良く(朝倉 2004)、生育期間も約90日程度である(松崎 2009)ことから生育にかかる作業負担が少ないのが特徴である。また、ヒマワリの播種時期が早い程初期生育における雑草の発生量が少なくなったことも報告されている(平山ら 2009)。ヒマワリは1 ha当たり3~7トンの乾物が畑に残ると言われ(Marrechalら 1999)、ヒマワリ茎の発熱量は子実と同程度あることが報告されている(東城ら 2018)。ヒマワリは優れた養分吸収能を持ち、水耕栽培したヒマワリが低い濃度であってもCdを吸収したこと(Cornuら 2016)が報告されている。また、ヒマワリはVA菌根菌と非常によく共生するため、跡地のVA菌根菌の密度を高め、後作物の生育、収量を改善する効果大きい(有原 2001)ことも報告されている。

1.3 成分分離手法としての加圧熱水処理

加圧熱水処理は、水を高温高压状態にすることで水のイオン積を増大させて、バイオマスの分解性を高める技術である(Akiyaら 2002)。温度上昇とともに水の誘電率が急激に低下し、イオン積が250 °C程まで増大して最大 6.34×10^{-12} となる。これにより、水を含むバイオマスなどが加水分解されやすくなる。この技術はセルロースからバイオエタノールを生産するための酵素糖化前処理技術として発達してきた。同様の前処理技術には希酸加水分

解, アルカリ加水分解などがある. それらの技術と比較して酸やアルカリといった薬品を用いないため, 機材の腐食が起りにくいことと中和などの後処理工程を必要としないことが特徴である. Kruse ら(2006)は加圧熱水処理における水は希釈によるタールやチャー, コークスの生成を防ぐ溶媒の役割を持ち, 活性化エネルギーを変化させ, 周囲の水では存在しない反応経路を開く触媒となるため, 熱分解や酸化のような分解反応が行われ, 合成は行われないことを報告している. また, Toora ら(2011)は熱分解と比較した際にエネルギー回収率が約50%に対して収率が約30%と収率の面で劣るが比較的安定した生成物が得られることを述べており, 反応器からのエネルギー再循環を利用することでエネルギーの消費量を削減することができる. このことから, 加圧熱水処理は環境負荷の小さい, 作物残渣の成分分離に適した技術であると言える. しかし, 加圧熱水の既往研究の大半は, バイオエタノールの生成のために木質バイオマスを対象としたセルロースの抽出及び阻害物質であるリグニン, ヘミセルロースの分離である(藤本ら 2008, Song ら 2019). 熊谷(2018)は 300 °Cで 30 分の処理により得られる固形分の炭素含有量が増加し, 発熱量が原料と比較して 1.6 倍になることを報告し, 種類の異なるバイオマスを供試しても得られた固形分の特性に差異が確認されず, 均質化されることを明らかにした. Machmudah ら(2015)はリグニンが加圧熱水処理によるエーテル結合の加水分解によりフェノール類やメトキシフェノール類に分解されることを示した. リグノセルロース系バイオマスを対象とした加圧熱水処理において, 処理温度を変えることで遊離糖, ヘミセルロース, セルロースを分離抽出できること, 原料によって灰分やリグニンの可溶化の程度が異なる(熊谷ら 2004, 熊谷ら 2007)ことが報告されている. 坂木ら(1998)は 250~300°C程度の加圧熱水のみでヘミセルロースやセルロースを数 10 秒から数分の短時間で高速に糖化できることを報告している. 金属元素である Ca や Mg の溶出に関する報告もある(Kumagai ら 2008, Liaw ら 2016). 回分式の加圧熱水処理では一度溶解したリグニンが冷却過程で反応容器中に再析出する可能性がある(永嶋ら 2010, 小林 2015). 流水式の加圧熱水処理も存在するが, 回分式と比較して 4 倍ほどの水を消費するため, 高い所要エネルギーが必要になってしまう(Liu 2005). 回分式では溶

出した成分が再析出する可能性があるものの、液分の回収も可能であり、流水式では回分式と比較して不純物の少ないセルロースを分離することができるので、それぞれの目的に合わせて実験系を選択する必要がある。ここまで、固形分に焦点を当てた報告であったが、鈴木ら(2016)は3種の作物残渣に水熱反応を行い得られた濾液が高濃度の時にコマツナの発芽を阻害したことを報告している。本研究では得られた液分を液肥として用いる栽培試験を行った。

1.4 養液土耕栽培

本研究では加圧熱水処理によって得られる液分に含まれる栄養成分に着目し、液肥として植物工場を想定した養液土耕栽培に供試する栽培試験を行った。養液土耕栽培は養液栽培と土耕栽培の手法を組み合わせた栽培手法であり、土の培地に養液を灌水することで水と肥料を供給する栽培法である。慣行の栽培と比較して従来の元肥相当分を施用せず、生育に必要な養分を過不足なく与えられるため、栽培後の残存窒素が問題となる施設栽培において窒素負荷低減に有効である(長友・上之菌 2001)。利点として、施肥の省力化と施肥量の削減、生育促進や増収、塩類の集積回避が挙げられ(荒木 2007)、養液栽培の問題点であった培養液管理として行われる養液の交換時の排水による地下水の $\text{NO}_3\text{-N}$ イオン汚染(久保田ら 2001)や青枯病が発生すると培養液を伝って栽培装置全体に蔓延する(竹内ら 1994)といった問題も回避できる。林ら(2003)は施肥量を変更したトマトの養液土耕栽培においてトマトの窒素利用効率がほとんど変わらず、慣行栽培よりも高かったことを報告しており、養液土耕栽培では株元に少量ずつ施肥を行うため、根域の狭い野菜においても効率的な肥料の吸収利用が行われていると述べている。建部ら(2006)はホウレンソウの養液土耕栽培において吸収量に近い窒素量を施用することで慣行の全量元肥の栽培と比較して安定した硝酸イオン低減効果があると述べている。中野ら(2001)は養液土耕により灌漑部分への根の集積および根に対するイオンストレスの負荷が軽減され、トマトの尻腐れ果実の発生を抑制する効果を明らかにしている。Pandey ら (2013) は、唐辛子の収量・収益を向

上させ、雑草及び病害を最小限に抑える効果があることを報告し、灌水量と灌水時間の節約に効果があると述べている。Tanaskovik ら(2011)は、トマトの養液土耕栽培により、従来の施肥と比較して水利用効率が向上したことを明らかにしており、収量の増加に繋がると報告している。実際の養液土耕を用いた生産現場では、養分供給方法として、毎朝 1 回必要な肥料成分の供給を灌水と同時に行い、その後必要な水分を供給する方法と肥料成分を含む溶液を常に給液する 2 つの方法がある(吉田ら 2011)。本研究では加圧熱水処理によって得られる抽出液を養液として用いた栽培試験を行った。

1.5 研究目的

加圧熱水処理に関する既往研究は固形分、特に炭素成分に着目したものが多く、窒素やリン、カリウムといった可溶成分を抽出した液分に着目した研究は少ない。そこで、本研究では加圧熱水処理による作物残渣の成分分離への影響を原料と処理条件の 2 点から明らかにし、得られる固形分と液分の双方が最大となるような処理条件を検討して得られた液分の利用法を検討することを目的とした。また、本研究における循環系での物質フローを作成し、圃場から吸収した成分がどの程度利用されているのかを明らかにした。

1.6 論文の構成

第 1 章では、序論として本研究に関わっている作物残渣、ヒマワリ、加圧熱水処理の報告などをまとめ、研究目的及び研究構成を提示した。

第 2 章では、加圧熱水処理実験に供試する作物残渣としてヒマワリを栽培した。栽植密度を変えて栽培し、採取時期を変えて採取することで栽培条件及び採取時期の違いによる形質及び性質の違いについて説明した。

第 3 章では、加圧熱水処理実験を行い、供試する原料と処理条件をそれぞれ変更することで作物残渣の成分分離へ及ぼす影響について記載した。

第 4 章では、得られた抽出液を用いてコマツナの栽培試験を行い、作物栽培への影響を

明らかにして効果的な利用法を検討した。

第 5 章では、第 2 章～第 4 章で得られた結果を総括し、結論として作物栽培において、子実収量及び作物残渣、作物残渣から得られる抽出液を用いた作物生産における総量が最大となる栽培条件及び加圧熱水処理条件について整理するとともに、残された課題について述べた。

第2章 作物残渣の発生特性

2.1 実験目的

栽植密度が作物の収量に及ぼす影響については多くの研究報告があるが、作物残渣については限定的である。本章では、栽植密度が作物残渣量と形質に及ぼす影響を検討するため、栽植密度によって草姿が大きく変わるヒマワリを対象作物とした。栽植密度を変えてヒマワリを栽培し、子実収量と作物残渣の関係を明らかにし、双方が最大となるような栽培条件について考察した。

2.2 試験作物および栽培方法

対象作物をヒマワリとして、栽培品種は採油用品種として知られるハイブリッドサンフラワー（カネコ種苗）とした。栽培地は東京農工大学附属農場 FM 府中（東京都府中市）で、栽培年は2019年と2020年であった。栽植密度を変えるため、条間を70 cmに固定して、株間を20 cm, 30 cm, 40 cm, 50 cmの4条件（栽植密度はそれぞれ、7.1株 m⁻², 4.8株 m⁻², 3.6株 m⁻², 2.9株 m⁻²）にした試験区を設けた。各試験区の面積は8.4 m², (3.0 m × 2.8 m)で、それぞれ3反復とした。試験区の配置を図2-1に、栽培暦を表2-1に示す。栽培期間は2019年6月24日～9月25日と2020年6月18日から10月7日であった。試験圃場を耕耘した後、試験区を設定して施肥し、その後に再度耕耘した。施肥は基肥のみで、化成肥料（くみあい燐加案42号, N:P:K=14:14:14）を窒素, リン酸, カリウムの施用量がそれぞれ10 g m⁻²となるように散布した。試験区の配置は乱塊法に基づいて無作為に決定した。播種前にヒマワリ種子を忌避剤（米沢化学, キヒゲン R-2 フロアブル）でコーティングした。播種は深さ約2 cmの穴を空け、手作業で1箇所につき3粒播種した。第二葉が展開した後間引きを行い、1箇所につき1株とした。灌水・追肥は行わず、降雨のみとした。開花後は防鳥ネットを張り、野鳥による食害が発生しないように努めた。

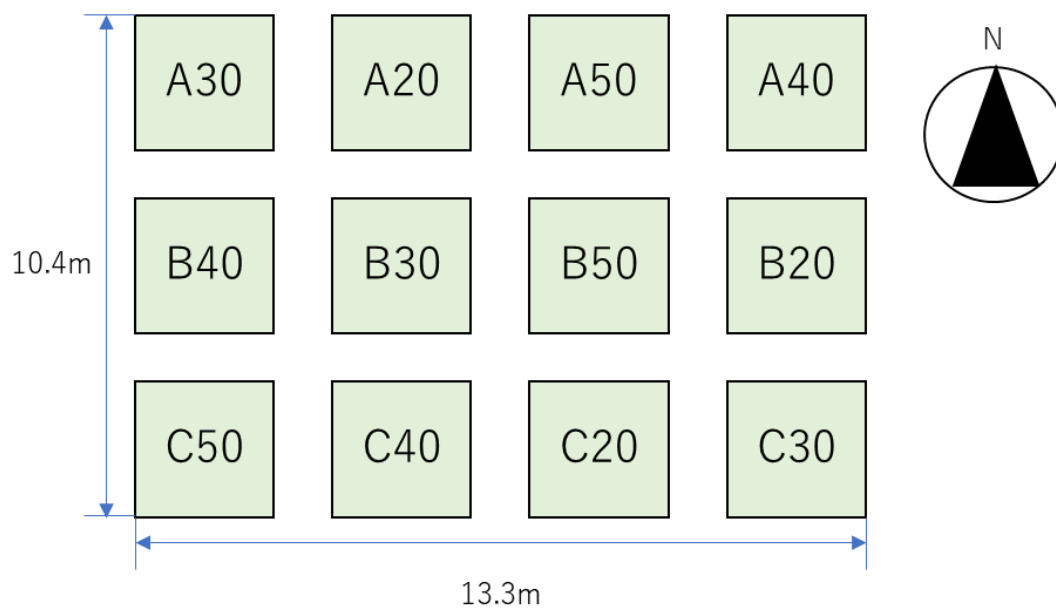
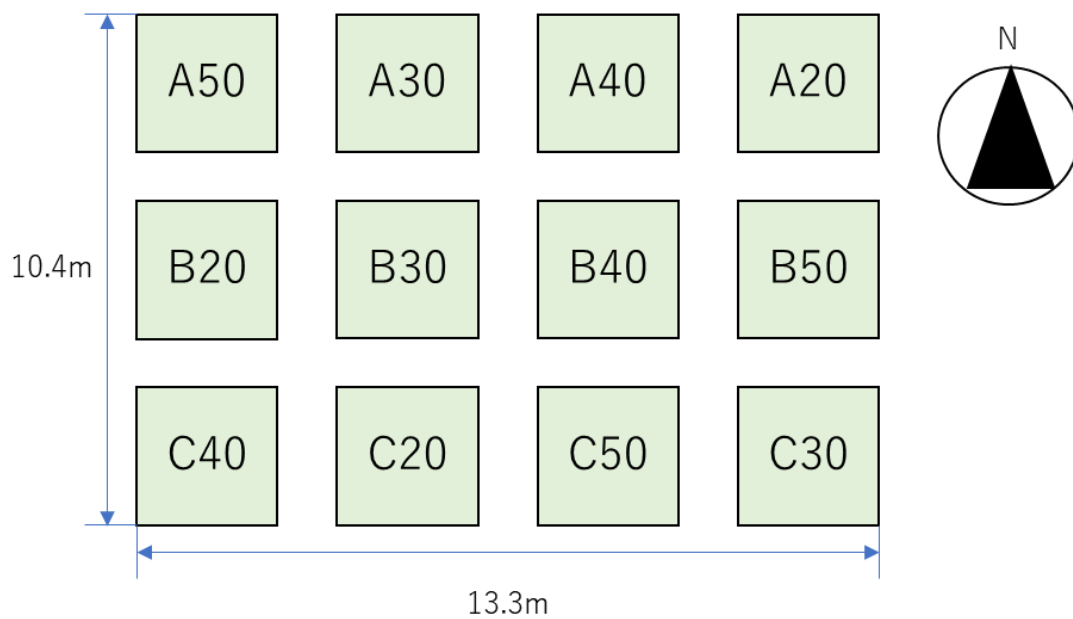


図 2-1 栽培試験区の配置(上図：2019 年，下図：2020 年)

A, B, C は反復、20~50 の数字は株間を表す。

表 2-1 2019 年と 2020 年の栽培暦

日付	播種後 日数	作業内容	日付	播種後 日数	作業内容
2019 年			2020 年		
6 月 20 日	—	施肥	6 月 14 日	—	施肥
6 月 23 日	—	耕耘	6 月 16 日	—	耕耘
6 月 24 日	0	播種	6 月 18 日	0	播種
7 月 22 日	28	第一回生育調査	7 月 27 日	39	第一回生育調査
7 月 29 日	35	第二回生育調査	8 月 3 日	46	第二回生育調査
8 月 5 日	42	第三回生育調査	8 月 10 日	52	第三回生育調査
8 月 12 日	49	第四回生育調査	8 月 17 日	60	第四回生育調査
8 月 18 日	55	第一回サンプリ ング(開花期)	8 月 19 日	62	第一回サンプリ ング(開花期)
8 月 19 日	56	第五回生育調査	8 月 24 日	67	第五回生育調査
8 月 26 日	63	第六回生育調査	8 月 26 日	69	防鳥ネット設置
8 月 29 日	66	防鳥ネット設置	8 月 31 日	74	第六回生育調査
9 月 2 日	70	第七回生育調査	9 月 7 日	81	第七回生育調査
9 月 7 日	75	第二回サンプリ ング(登熟期)	9 月 10 日	84	第二回サンプリ ング(登熟期)
9 月 25 日	93	第三回サンプリ ング(収穫期)	9 月 14 日	88	第八回生育調査
			9 月 21 日	95	第九回生育調査
			9 月 28 日	102	第十回生育調査
			10 月 5 日	109	第十一回お生育 調査
			10 月 7 日	111	第三回サンプリ ング(収穫期)

2.3 生育調査およびサンプリングの方法

(1) 生育調査

ヒマワリの生育時の形質の変化を調べるために毎週 1 回生育調査を行った。各試験区から連続する 5 個体を選定し、調査個体とした。試験区の外周に位置する個体は調査個体とらなかった。茎長・茎径・葉数を調査項目とした。茎長は地面から花托までの高さをコンベックスで測定した。茎径は地表から 5 cm の箇所をノギスで測定した。葉数は葉柄が茶色に変色したものを除外した有効葉数とした。

(2) サンプリング調査

各試験区における生育段階の違いによる変化を調べるため、開花して以降に、開花期、登熟期、収穫期の 3 回にわたりサンプリングを行った。開花以降の様子を図 2-2 に示す。各サンプリング時期の判断基準として、開花期は試験区全体で 80%以上の開花が確認された時期、登熟期は花托が垂れ下がり、個体が黄変した時期、収穫期はヒマワリ全体褐色になり、茎や葉の乾燥が見られた時期とした。サンプリングは、2019 年の栽培では播種後 55 日、75 日、93 日で、2020 年は播種後 62 日、84 日、111 日であった。

生育調査の対象個体以外から無作為に 3 個体選定し、地上部を切断して収穫した。収穫した個体は茎、葉、花托に分け、茎と葉は生体質量を測定し、一部を切り取り 105 °C で 24 時間の炉乾燥により乾燥質量を算出した。花托は形を楕円と仮定してノギスで長径と短径を測定し、面積を算出した。収穫期個体のみ子実を選別して子実の収量を測定した。得られた茎は乾燥炉において 90 °C で 30 分間ブランチングした後、温度 60 °C で 72 時間乾燥した。試験区と材料は採取時期(開花期 F、登熟期 R、収穫期 H)と栽植密度(株間 20, 30, 40, 50)で表記した。



図 2-2 ヒマワリ栽培の様子(左図：2019 年，右図：2020 年)

(3) 気象データ

ヒマワリ栽培期間中の気象データを気象庁のアメダスより取得し，平均気温(°C)，降水量(mm)，日照時間(h)を図 2-3 に示した．取得したアメダスデータは東京農工大学附属農場 FM 府中内で測定されたものである．平均気温に関して，両年とも大きな違いは見られなか

った。降水量は8月までは2020年度の方が多かったものの、9月以降は2019年度の降水量が増加し、栽培期間全体での降水量に大きな差は見られなかった。積算日照時間は2020年度の方が高いものの、栽培期間が2019年度よりも長いため、1日当たりの日照時間は同程度であった。

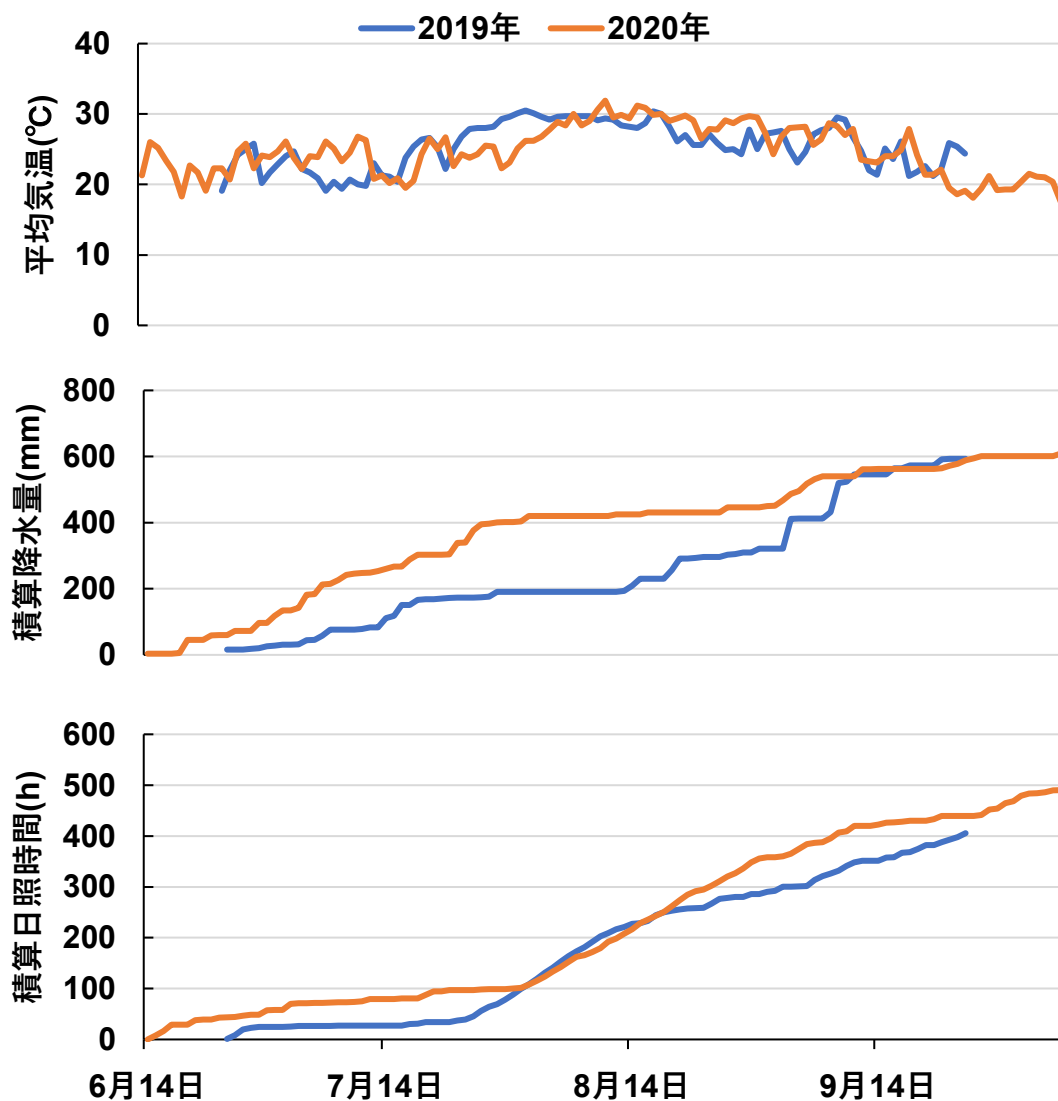


図 2-3 栽培期間中の気象

(上図：平均気温，中図：積算降水量，下図：積算日射時間)

2.4 結果及び考察

2.4.1 ヒマワリの生育

生育調査の結果を図 2-4 及び図 2-5 に示した。栽植密度が高くなると茎長が長くなり、逆に茎径は細くなった。葉数は栽植密度が高くなると減少する傾向が見られた。これは 2019 年、2020 年の両年で同じであった。栽植密度が高くなることで生育時に光の競合が起こり、水平方向よりも鉛直方向への生長が促進されたと考えられ、Anten ら(2005)は密植により起こる風の遮蔽が茎の伸長を増加させていると示唆している。また、密植になることで群落の下層に光が入らなくなるため、ヒマワリの下部に位置する葉が枯れ、葉数の減少につながったと考えられる。両年とも、栄養成長は開花期まで続き、それ以降の花托の登熟が始まると大きな変化は起こらなくなった。2020 年度の栽培において株間 20 cm の試験区では、開花期と登熟期において茎径は他試験区に比べて有意に細かったが、収穫期には茎径の差は縮小した。

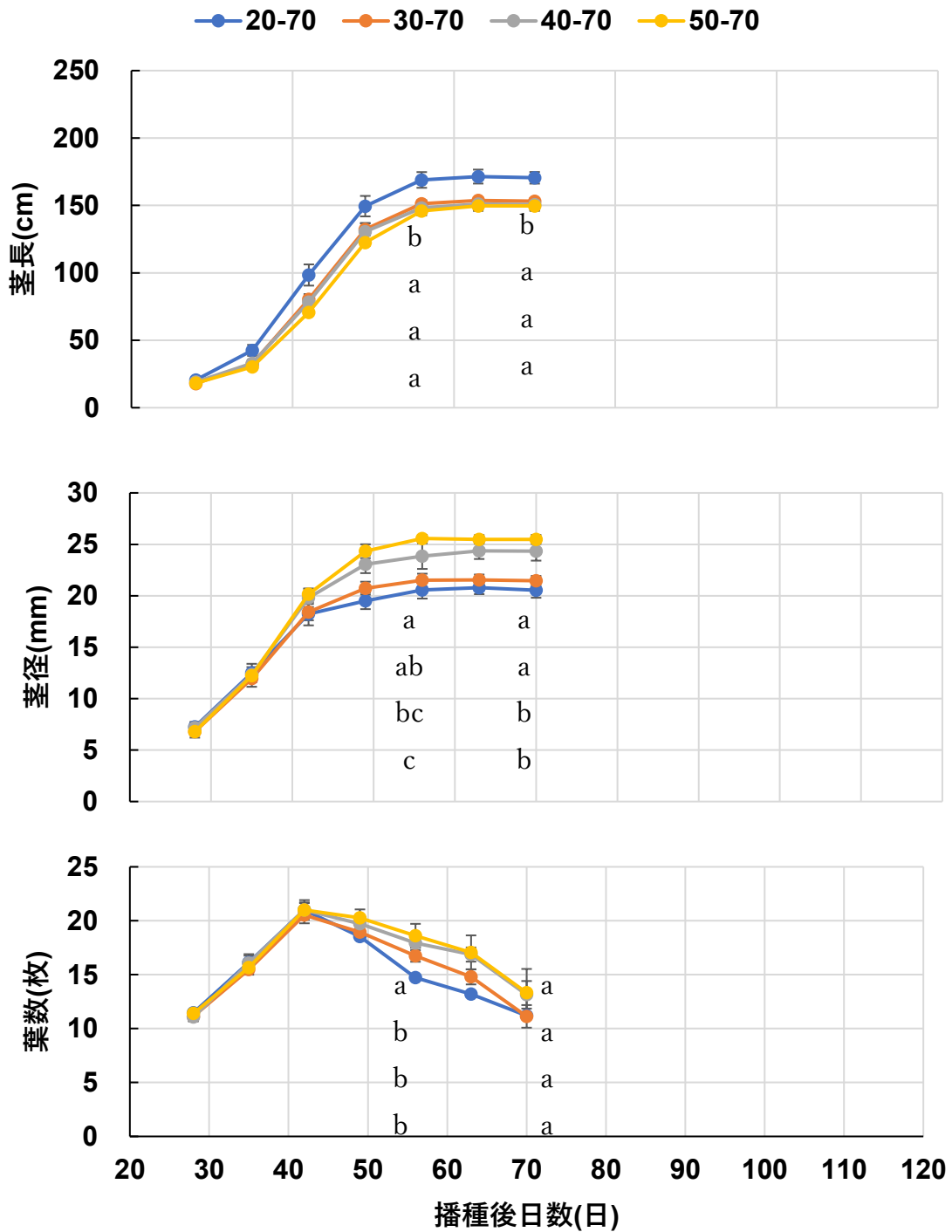


図 2-4 ヒマワリの生育 (2019 年) (上図：茎長, 中図：茎径, 下図：葉数)

凡例は栽植密度で株間 (cm) と条間 (cm) で表す。エラーバーは標準誤差を表す。

異なるアルファベットは Tukey-Kramer の多重比較法で試験区間に有意差あり

($p < 0.05$) を示す。

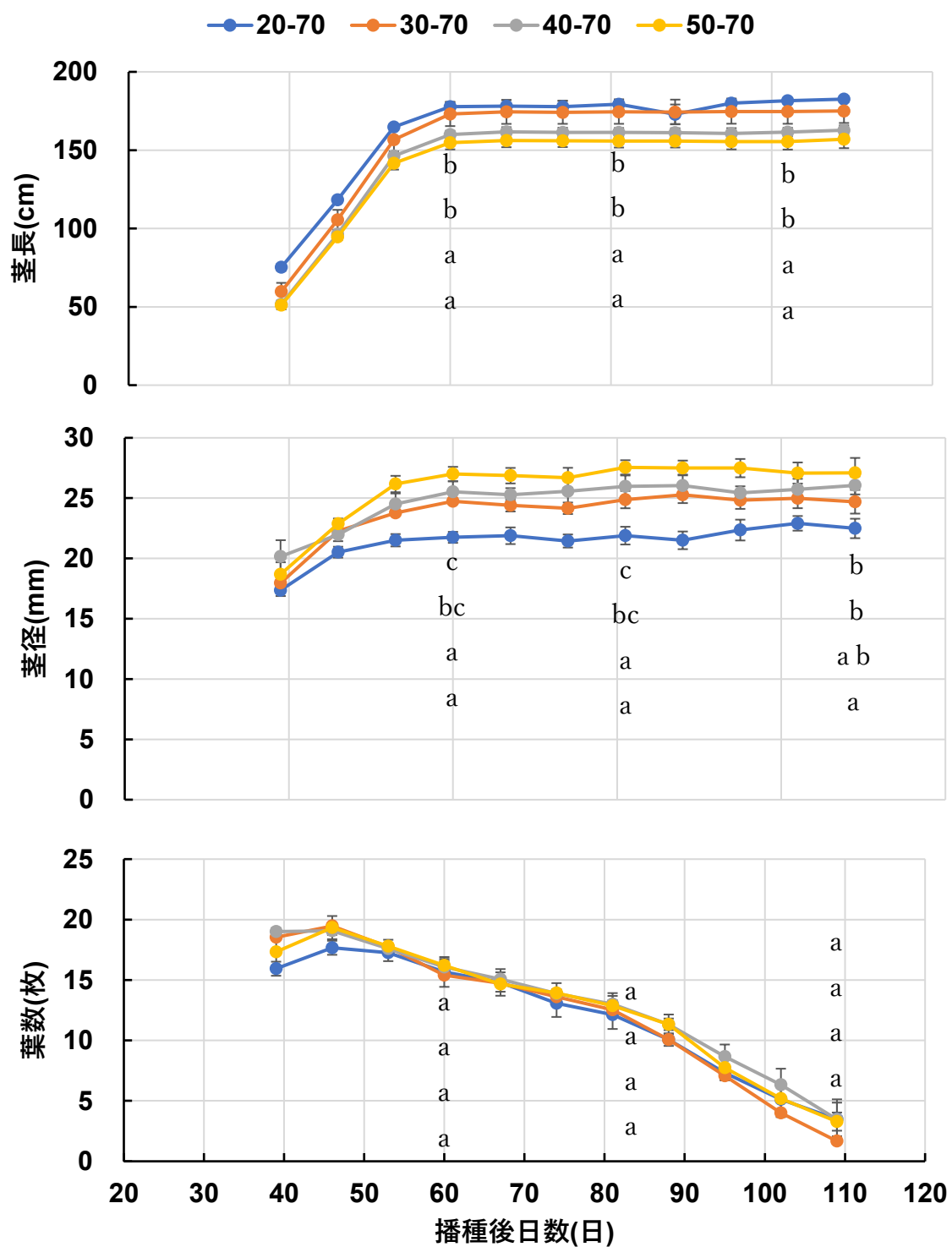


図 2-5 ヒマワリの生育 (2020 年) (上図：茎長, 中図：茎径, 下図：葉数)

凡例は栽植密度で株間 (cm) と条間 (cm) で表す。エラーバーは標準誤差を表す。

異なるアルファベットは Tukey-Kramer の多重比較法で試験区間に有意差あり

($p < 0.05$) を示す。

2.4.2 ヒマワリの子実及び茎の乾物質量

ヒマワリ茎の個体あたり乾物質量は栽植密度が高いほど小さく、その傾向は開花期より収穫期に強くなった。栽植密度から計算したヒマワリ茎の単位面積当たり乾物収量を表 2-2 に示す。茎の乾物質量は栽植密度が高いほど多く、採取時期別の単位面積当たり乾物収量を比較すると、採取時期が遅くなるほど栽植密度による乾物収量の差は小さくなった。子実収量に関して、両年のどの栽植密度でも茎と同程度であり、栽植密度を高くした方が、子実・茎両方の収量が高くなることが示された。図 2-6 に栽植密度及び茎と子実の単位面積当たり収量のプロットを示す。これにより、2019 年、2020 年の茎と子実共に栽植密度と強い相関関係があることが示され、単位面積当たりの収量を増やすためには栽植密度を高くして栽培することが望ましいと言える。金子(1997)はヒマワリの適正栽植密度は油糧用で 500~700 株 a^{-1} 、食品用では 400~500 株 a^{-1} 、森下ら(1994)はわい性品種ならば対倒伏性が低下することも考慮に入れて 800 株 a^{-1} が適正であると報告している。本研究における最大栽植密度は 7.1 株 m^{-2} であり、これらの報告と比較して問題ないと判断できる。但し、株間 20 cm と 30 cm の試験区では栽培後期に風雨による倒伏や茎折れが発生しており、実際に収集できる茎収量は表 2-2 の数値より少ない。風雨の影響が大きかった 2020 年の栽培で折れや倒伏を調査したところ、各試験区の連続調査 15 個体(5 個体×3 反復)のうち、20 cm 区で 4 個体、30 cm 区で 6 個体、40 cm 区で 1 個体、50 cm 区で 1 個体の被害が観察された。平山ら(2009)はヒマワリの早期播種によって生育と倒伏の抑制を示唆しており、寶川ら(2018)はヒマワリの発芽から開花までの有効積算温度は最高でも 1000~1100 $^{\circ}C$ であり、ハイブリッドサンフラワーは冷涼期において有効積算温度の上昇が穏やかな場合、短日条件と合わせて開花に至ると推察している。これより、ヒマワリの早期播種を行うことで、生育の抑制による倒伏のリスクを軽減できると考えられる。吉田ら(1994)は短稈種のヒマワリの密植(13000~16000 本 $10 a^{-1}$)によって子実質量および収油量の多収を得たと報告している。また、早期播種により収穫時期を早めることで台風による倒伏・損失のリスクも軽減できる。株間 50 cm 区の試験区では登熟期間中に乾物質量が増加する傾向が見られた。これは、葉

が枯れずに収穫期まで光合成を続けていたためと考えられた。

表 2-2 各試験区における採取期別の単位面積当たりの茎乾物収量

試験区	開花期		登熟期		収穫期	
	平均 (g m ⁻²)	SE	平均 (g m ⁻²)	SE	平均 (g m ⁻²)	SE
2019 年						
20-70	274.7 b	18.8	294.4 b	15.0	353.4 a	78.4
30-70	218.7 ab	3.7	210.2 a	3.7	265.8 a	20.4
40-70	168.0 a	0.8	212.4 a	5.8	212.8 a	9.3
50-70	177.8 a	9.6	171.1 a	8.2	233.8 a	34.6
2020 年						
20-70	381.2 c	18.1	401.9 b	28.8	406.0 b	61.1
30-70	253.4 b	13.5	279.3 a	15.8	280.6 a	14.0
40-70	235.6 b	8.8	255.8 a	37.7	262.3 a	23.8
50-70	177.5 a	12.1	209.7 a	24.4	248.4 a	33.9

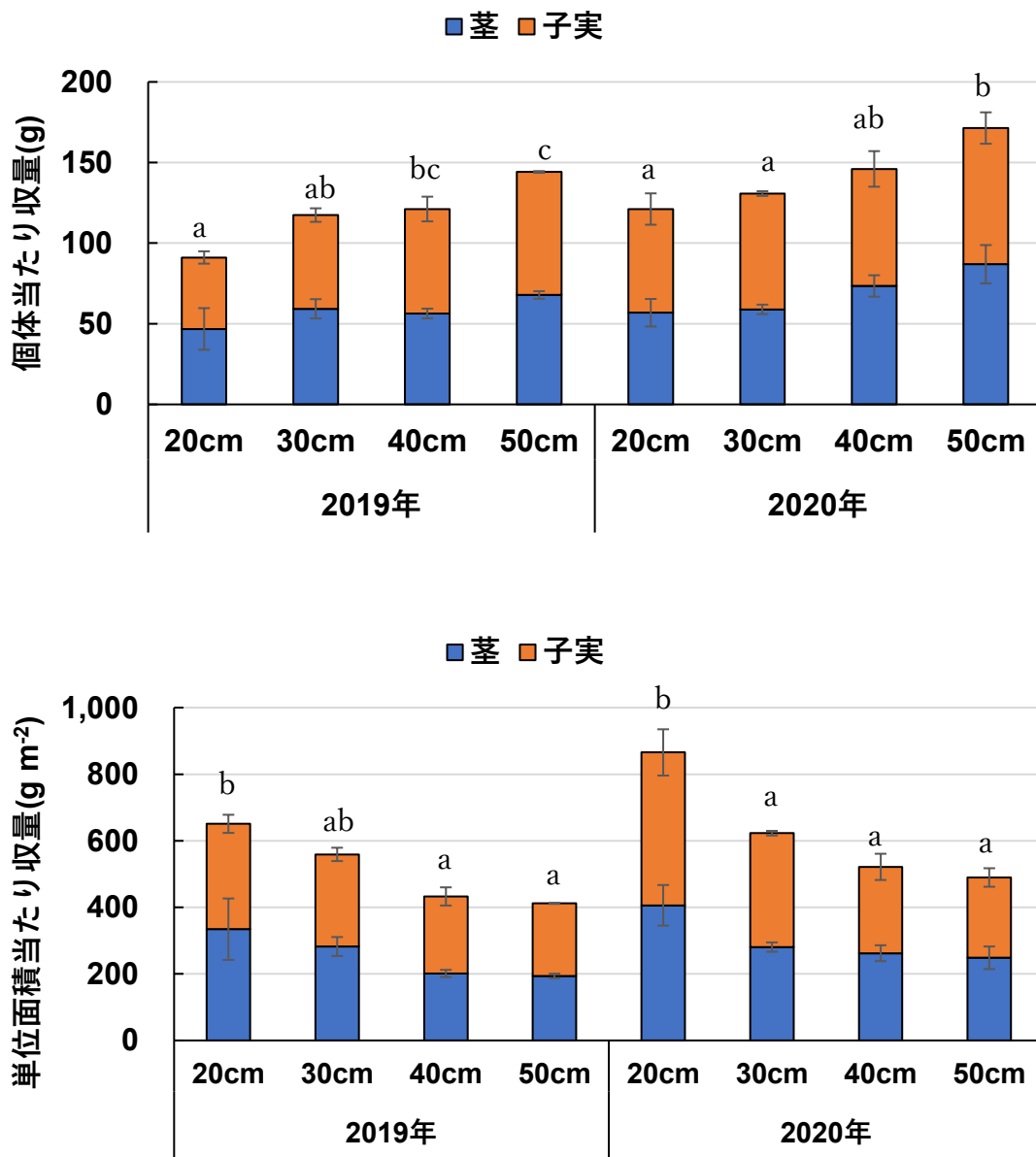


図 2-6 収穫期における茎と子実の収量

(上図：1 個体当たり収量，下図：単位面積当たり収量)

エラーバーは標準誤差を示す

異なるアルファベットは Tukey-Kramer の多重比較法で試験区間に有意差あり

($p < 0.05$) を示す.

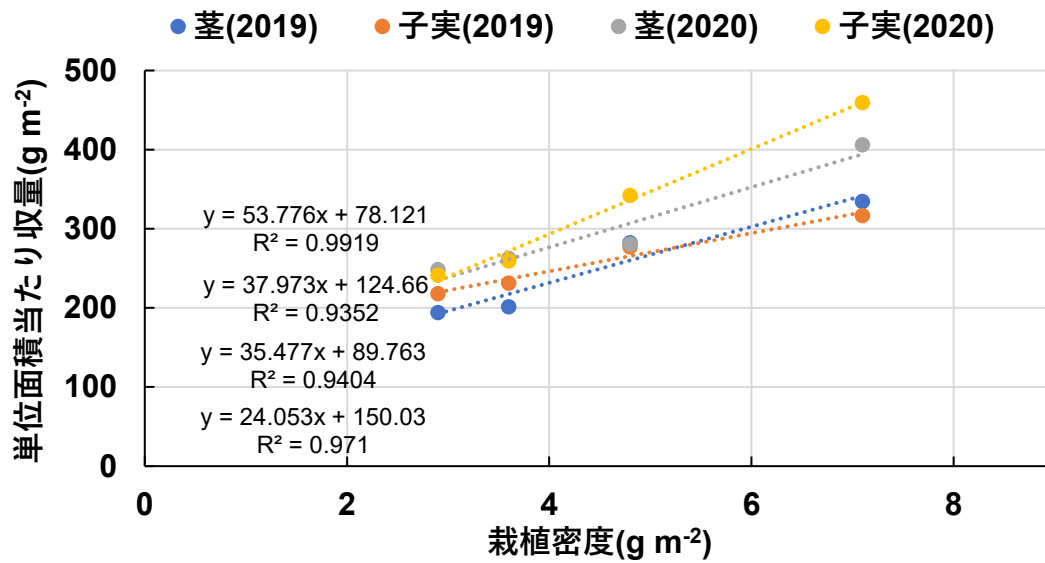


図 2-7 栽植密度及び茎と子実の単位面積当たり収量の関係

2.5 まとめ

栽植密度を高くして栽培すると光合成のための光の競合の影響で茎長が長くなり、茎径が細くなった。播種後 40~50 日目の開花期まで栄養生長によって増加したが、その後は生殖生長となって子実の登熟が始まるため生育調査の結果は横ばいとなった。

茎の 1 個体当たり乾物質量は栽植密度が低いほど大きくなるが、単位面積当たりでは栽植密度が高いほど大きくなることが示された。子実収量でも同様の傾向が示され、栽植密度と単位面積当たりの収量に強い相関関係があることが明らかになった。これより、栽植密度を高くして栽培するのが作物残渣の活用目的でも望ましいが、栽植密度を高くすると倒伏や茎折れのリスクも高くなる。しかし、矮性品種を栽培に供試することや、播種や収穫時期を前倒しするなどといった、栽培方法の工夫により対策が可能であるため、栽植密度を高くして栽培することが作物残渣の利用において最適であると考えられる。

第3章 加圧熱水処理が作物残渣の養分抽出に及ぼす影響

3.1 緒言

リグノセルロース系バイオマスからバイオエタノール原料となるセルロースを抽出する手法として加圧熱水処理法が開発されてきた。既往研究では固形分に着目したものが大半であり、バイオエタノールを生産するための酵素糖化における阻害物質の析出が起これない流水式が処理の主流であるため、液分は廃棄物として処理されている。ヒマワリ茎の主要成分はセルロース、ヘミセルロース及びリグニンで、その他に植物養分が含まれている。本章では、ヒマワリの茎からセルロースを抽出し、併せて、比較的高濃度で含まれる植物養分を取り出す手法として加圧熱水処理法を採用し、その適用条件について検討した。加圧熱水処理法は処理温度、圧力、保持時間によって、材料に及ぼす影響が異なることが知られている。そこで、本章では、加圧熱水処理法の加圧熱水条件がヒマワリ茎に含まれる植物養分の抽出に対して、どのような影響を及ぼすかを調べた。

本手法は、ヒマワリ茎に含まれるセルロースの抽出を主たる目的として採用するものであるが、同時に分離される植物養分も利用価値が高いことから、両者を満足する加圧熱水条件を選定する必要がある。鈴木ら(2016)は異なる植物を原料とした水熱処理実験から原料の特性が処理後に得られる生成物に及ぼす影響を報告しているが、形質の異なる同種の原料が加圧熱水処理に及ぼす影響に関しては明らかになっておらず、また、処理条件の違いが生成物にどのような影響を及ぼしているのかは明らかになっていない。そこで本章では、第2章で得られた形質の異なるヒマワリ茎を供試して、2つの実験からセルロースと植物養分の両方の成分分離に対する適用性を検討した。最初の実験では、異なる栽植条件で栽培した形質の異なるヒマワリ茎を供試して分離される成分について調べた。次の実験では、異なる加圧熱水条件が成分分離に及ぼす影響を調べて、成分分離に適する条件を考察した。その結果を元に作物残渣の利用に適した加圧熱水処理条件を検討し、2章の栽培試験の結果を考慮して圃場からどの程度の肥料養分が回収できるかを算出した。

3.2 材料および方法

3.2.1 実験 1：異なる原料での成分分離

異なる栽植密度で栽培し、異なる時期に採取したヒマワリ茎を供試して、材料の形質の違いが含有する植物養分の溶出に及ぼす影響を調べた。供試材料として、2019 年産の開花期（F 期と記載）、登熟期（R 期と記載）、収穫期（H 期と記載）に採取した 20 cm, 30 cm, 40 cm, 50 cm 区のヒマワリ茎を供試材料とした。材料は第 2 章で採取したヒマワリ茎に粉碎機（WB-1, 大阪ケミカル）を用いて、微粉碎したものを供試試料とした。使用した加圧熱水処理装置を図 3-1 に示す。容積 300 mL の耐圧反応容器（4766, Parr）に、風乾試料 1.0 g 当たり蒸留水 10 mL の割合で入れて密閉した後、容器のヘッドスペースに窒素ガスを設定圧力 3.0 MPa で充填した。ホットスターラの上に載せた容器内の溶液温度を熱電対で測定しながら、側方のマントルヒータで 180 °C まで加熱し、到達後 40 分間保持した。処理終了後、密閉を保ったまま容器を水冷した。取り出した試料を 0.25 mm 目ふるいにて固液分離し、固形分は 105 °C で 24 時間炉乾燥してから質量を測定した。液分は風乾試料 1.0 g 当たり 20 mL に定容して、分析に供試した。

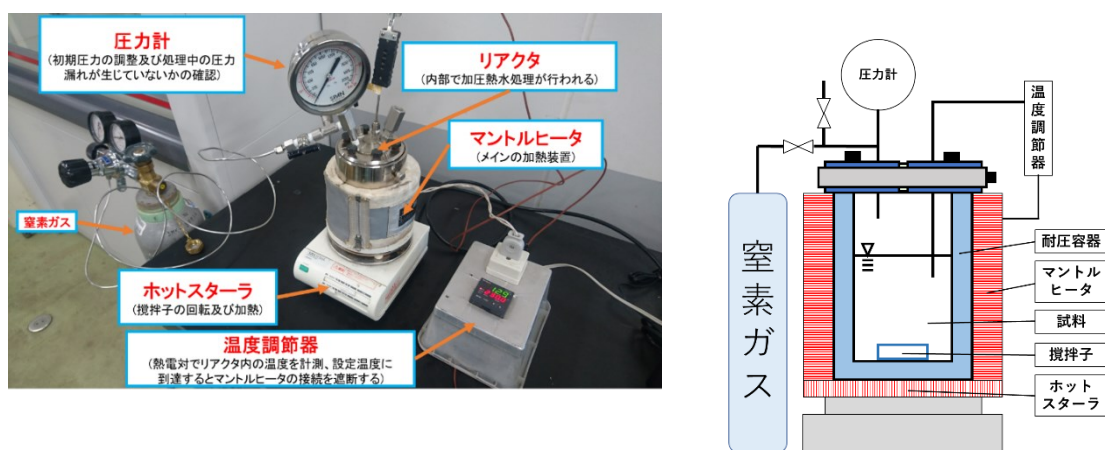


図 3-1 加圧熱水処理装置

3.2.2 実験 2：異なる加圧熱水条件での成分分離

加圧熱水処理条件がヒマワリ茎に含まれる植物養分の溶出に及ぼす影響を調べた。供試材料は 2020 年産で、収穫期に採取した 50cm 区 (H50 と記載) のヒマワリ茎であった。処理条件として反応容器内の処理温度を 130 °C, 155 °C, 180 °C, 205 °C, 230 °C の 5 条件、保持時間を 20 分, 40 分, 60 分の 3 条件とした。設定圧力条件と実験手順は実験 1 と同様である。実験反復は 3 とした。

3.2.3 成分分析

本章では、加圧熱水処理法で分離される固形分と液分に着目した。化学成分としては、炭素(C)、窒素(N)、リン(P)、カリウム(K)、カルシウム(Ca)、マグネシウム(Mg)の各元素とした。液分に含まれる化学成分の測定は液分の pH で変動することから、物質の収支を調べる上では固形分の分析が適当であると判断した。ここでは、分析試料としてヒマワリ茎の原材料と加圧熱水処理後の固形分を対象とした。

炭素と窒素の元素については、CN コーダ(MT-700, Yanako)を用いて、燃焼法により測定した。その他の元素については、栽培植物分析測定法(1975)に従い、試料を硝酸-過塩素酸によって湿式灰化を行った。風乾試料 1.0 g を 200 mL 容のケルダールフラスコに入れ、硝酸 20 mL を加え、ヒータにて 1 時間ほど加温した (図 3-2)。フラスコ内部の試料が分解され、内部の液が澄んだ辺りを硝酸分解の目安とした。冷却後、過塩素酸を 5 mL 加え、再度 1 時間ほど加温した。フラスコ内に白煙が充満した辺りを過塩素酸分解の目安とした。過塩素酸分解後、冷却時に過塩素酸カリウムの白色沈殿が生じる場合があるが、その場合は分解液に少量の蒸留水を加え、70°C で湯煎して溶解させた。得られた分解液を 100 mL に定容した後、土壤作物総合分析計(SPCA-6210, 島津製作所)を用いて、リンはバナドモリブデン酸法で分解液を呈色してから吸光光度法、カリウムは炎光光度法、カルシウムとマグネシウムは原子吸光法で測定した。

固形分残存率 R_s (g g^{-1}) は、加圧熱水処理後に得られる固形分乾物質量の原材料乾物質量

に対する割合と定義した。加圧熱水処理で得られる液分への各植物養分元素の溶出率 E (mol mol^{-1}) は固形分に含まれる植物養分元素を測定して、式(1)により算出した。

$$E = \frac{(1-R_s) \times S_s}{S_t} \quad (1)$$

ここで、 S_t : 材料乾物質量 1 g に含まれる各植物養分元素（窒素、リン、カリウム、カルシウム、マグネシウム）の含有量 (mmol g^{-1})、 S_s : 加圧熱水処理後の固形分乾物質量 1 g に含まれる各植物養分元素の含有量 (mmol g^{-1})、 R_s : 固形分残存率 (g g^{-1})である。

また、本論文で表記する植物養分元素総量 N_{UT} は今回測定した窒素、リン、カリウム、カルシウム及びマグネシウムの合計(mmol)とした。

加圧熱水処理で得られた液分中には有機酸が含まれていた。これらの有機酸濃度は有機酸分析用 HPLC (Prominence, 島津製作所) によって測定した。カラムは Shim-pack SPR-H, 移動相は $4\text{mM } p\text{-トルエンスルホン酸}$ 水溶液で、電気伝導度検出器を使用した。



図 3-2 湿式灰化の様子(硝酸分解)

3.3 結果及び考察

3.3.1 ヒマワリ茎部に含まれる植物養分元素

2019年産ヒマワリ茎の元素分析の結果を表3-1に示す。茎に含まれる元素濃度を乾物質当たりのもルで表している。開花期(F)、登熟期(R)、収穫期(H)の炭素はそれぞれ、32.6~34.3 mmol g⁻¹、31.5~33.8 mmol g⁻¹、31.9~33.4 mmol g⁻¹であった。窒素はそれぞれ1.6~1.9 mmol g⁻¹、1.1~1.5 mmol g⁻¹、1.0~1.3 mmol g⁻¹とわずかに減少し、カリウムは1.9~2.1 mmol g⁻¹、1.8~2.2 mmol g⁻¹、2.0~2.2 mmol g⁻¹とあまり変化はなく、リンは0.1~0.2 mmol g⁻¹、0.07~0.1 mmol g⁻¹、0.05~0.06 mmol g⁻¹とわずかに減少した。分散分析の結果、窒素、カルシウム、リンにおいて採取期による有意差 ($p < 0.05$) が認められた。

一般に、作物の性質はC/N比で表現される。本研究で栽培したヒマワリの茎は生育段階が進むと窒素量が減少し、C/N比が増加する結果が示された。そこで横軸にC/N比をとり、縦軸に植物養分の窒素、リン、カリウム、カルシウム、マグネシウムの元素総量 N_{UT} (mmol g⁻¹)を窒素量 N (mmol g⁻¹)で除した N_{UT}/N 比をとってプロットしたものを図3-3に示す。決定係数 $R^2 = 0.803$ と、この両者には強い直線関係がみられた。茎に蓄積する各植物養分元素量には個体のばらつきが大きいものの、養分の元素総量 N_{UT} は一定の範囲にあり、窒素量と密接な関係があることが分かった。開花期から収穫期にかけて茎中の窒素やリンは転流によって減少するが、カルシウムはそれを補うようにわずかに増加し、その変化量はC/N比と密接な関係にあった。このような関係性をもとにヒマワリ茎に蓄積される植物養分の総量を推測できるので、その利用性を検討しやすくなる。ただ、本関係は窒素の動態に依存していることから、施肥窒素量などを変えて、窒素の吸収量と植物養分の転流量を検証する必要がある。

異なる作物ではあるが養分吸収能に優れるトウモロコシで、原田ら(2001)は窒素とカリウムの相関を指摘していることから、ヒマワリでも検討したが、本研究のヒマワリの場合には、両者に強い相関は認められなかった。また、佐藤ら(2009)は、交換性塩基に着目して作物の養分吸収能を議論している。本研究でも養分蓄積指標として検討したが、ヒマワリ茎で

は明瞭な関係性は見いだせなかった。

表 3-1 各試験区のヒマワリ基の植物養分元素含有量と加圧熱水処理 (180°C, 40 分) による溶出率

試験区	原料乾物当たりの元素含有量 (mmol g ⁻¹)						元素の溶出率 (mol mol ⁻¹)					
	C	N	Ca	Mg	K	P	C	N	Ca	Mg	K	P
F20-70	33.03	1.76	0.35	0.44	1.93	0.174	0.39	0.80	0.45	0.89	0.95	0.77
F30-70	34.32	1.79	0.32	0.44	1.95	0.112	0.37	0.83	0.31	0.90	0.94	0.75
F40-70	32.64	1.94	0.43	0.42	2.11	0.199	0.35	0.80	0.47	0.84	0.90	0.68
F50-70	33.70	1.62	0.40	0.54	1.96	0.234	0.38	0.79	0.51	0.90	0.93	0.77
R20-70	32.57	1.34	0.54	0.41	2.20	0.081	0.38	0.82	0.50	0.93	0.95	0.76
R30-70	31.70	1.43	0.68	0.46	2.20	0.070	0.35	0.83	0.58	0.90	0.93	0.82
R40-70	31.53	1.53	0.53	0.53	1.96	0.096	0.37	0.85	0.56	0.92	0.92	0.77
R50-70	33.82	1.12	0.45	0.50	1.76	0.091	0.40	0.79	0.54	0.92	0.93	0.82
H20-70	33.41	1.17	0.54	0.34	2.02	0.060	0.32	0.79	0.54	0.88	0.93	0.68
H30-70	33.34	1.11	0.85	0.60	2.15	0.057	0.33	0.78	0.64	0.93	0.92	0.68
H40-70	31.90	1.26	0.66	0.69	2.12	0.045	0.33	0.80	0.51	0.94	0.94	0.58
H50-70	32.67	1.10	0.63	0.51	2.19	0.058	0.35	0.81	0.48	0.93	0.95	0.66

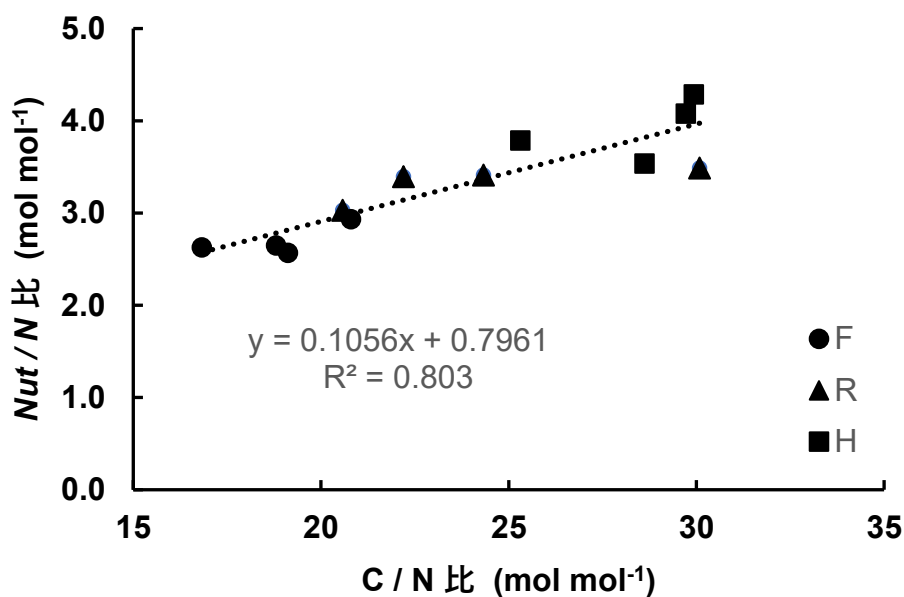


図 3-3 ヒマワリ茎に含まれる植物養分の Nut/N 比と C/N 比の関係

3.3.2 加圧熱水処理による植物養分の溶出

3.3.2.1 固形分の分離

処理温度 180 °C、保持時間 40 分の加圧熱水処理では、固形分残存率は 0.46~0.62 g g⁻¹であったが、材料の栽植密度と採取時期によりわずかながら差が生じた。図 3-4 及び図 3-5 に示すような各栽植密度と採取時期毎の固形分を観察したが、色や粒径などの見た目に大きな違いは見られなかった。開花期に採取した異なる栽植密度のヒマワリ茎の固形分残存率と原材料の C/N 比の関係を図 3-6(a)に、開花期、登熟期及び収穫期に採取したヒマワリ茎の固形分残存率と原材料の C/N 比の関係を図 3-6(b)に示す。開花期のヒマワリ茎の C/N 比と固形分残存率には比較的明瞭な関係が見られたものの、その傾向は登熟期と収穫期には見られなかった。このことから、開花期に採取するヒマワリ茎の場合、ヒマワリ茎から分離される固形分の質量は原料の C/N 比で予測できることが分かった。しかし、登熟期と収穫期で採取されるヒマワリ茎から分離される固形分の質量は原料の C/N 比からは予測できないことが判明した。

これは、開花期から収穫期にかけて有機窒素化合物が転流して窒素と炭素は減少した一

方で、セルロース由来の炭素はわずかに増えて炭素はほぼ同程度に維持されたため、収穫期の C/N 比は大きくなったと考察される。収穫期の炭素含有量のばらつきが少なく、固形分残存率も一定になるのに対して、窒素含有量のばらつきが相対的に大きいため、固形分残存率と C/N 比の関係を示す決定係数は小さくなり、関係は明瞭でなくなったと考えられる。

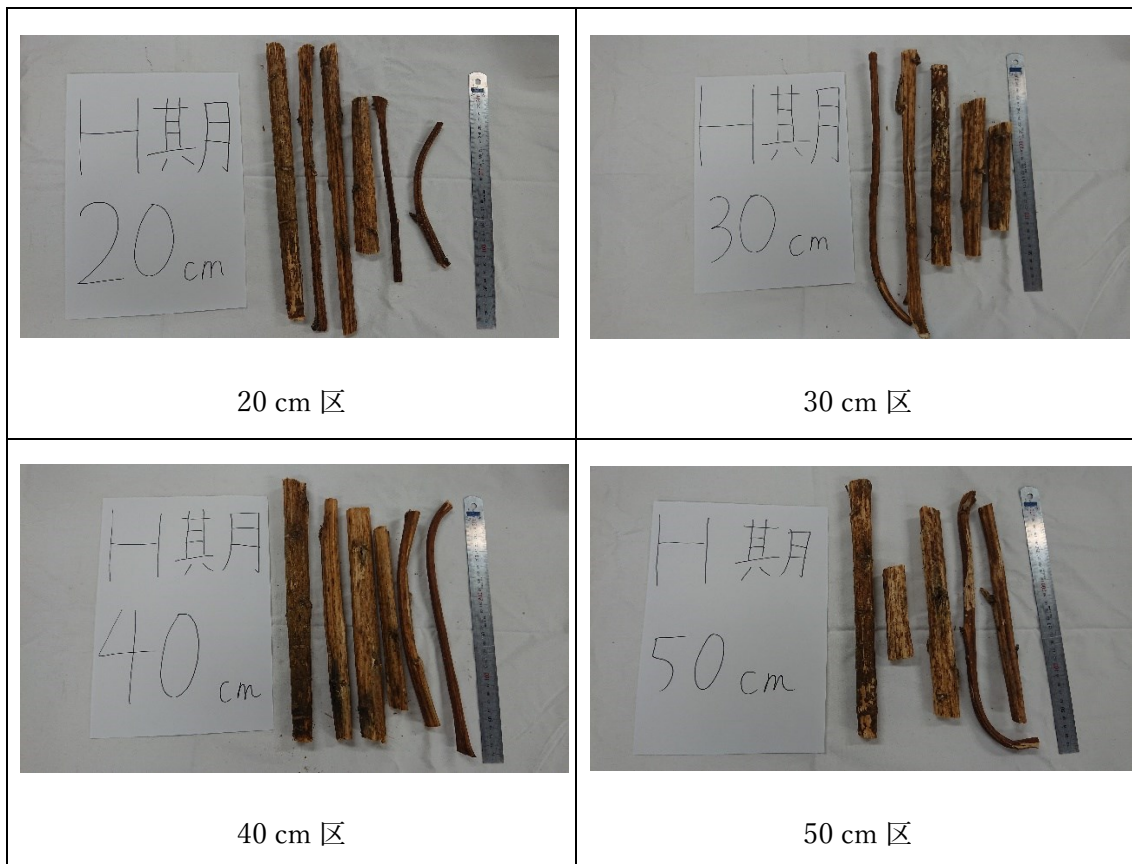


図 3-4 異なる栽植密度試験区のヒマワリ茎(2019 年度収穫期採取個体)

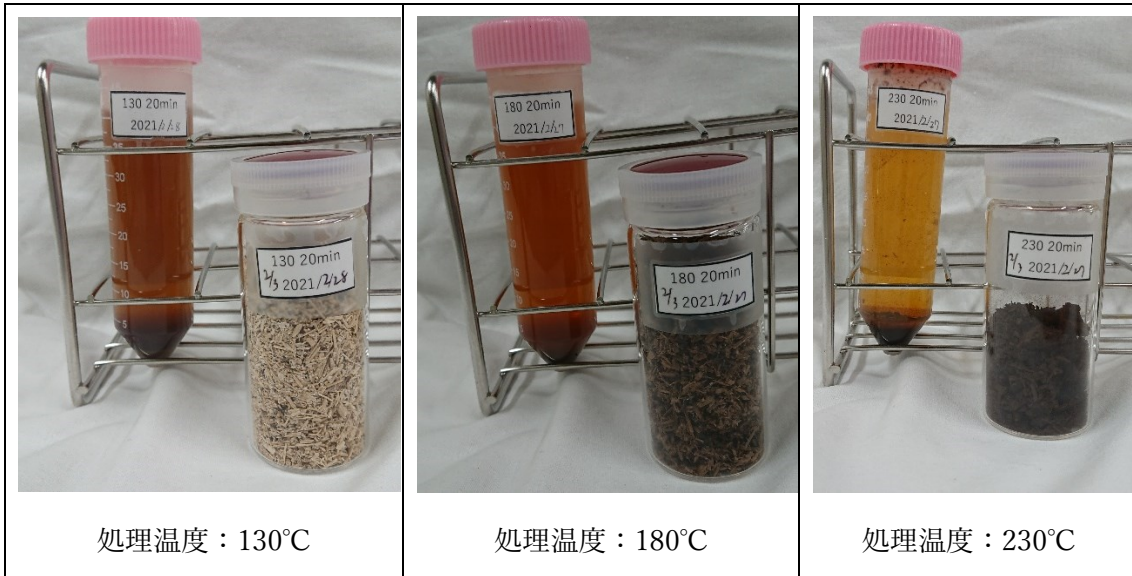
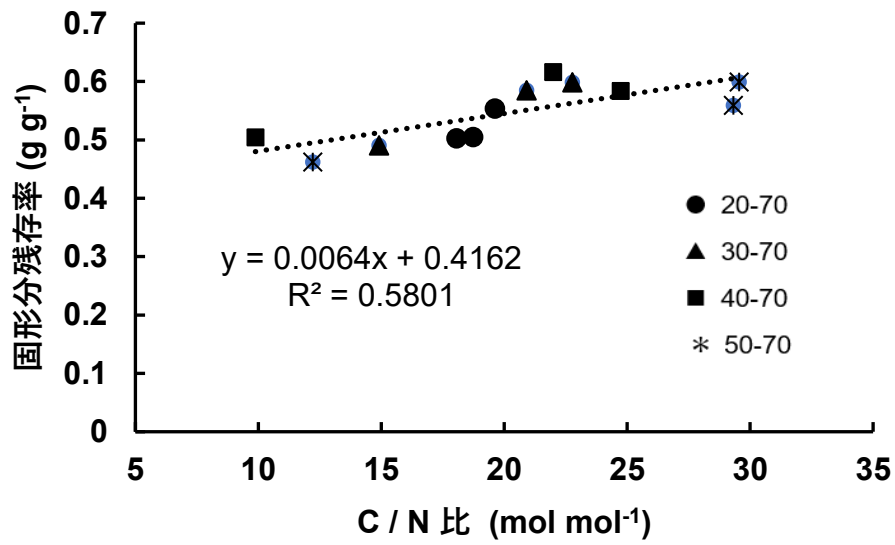
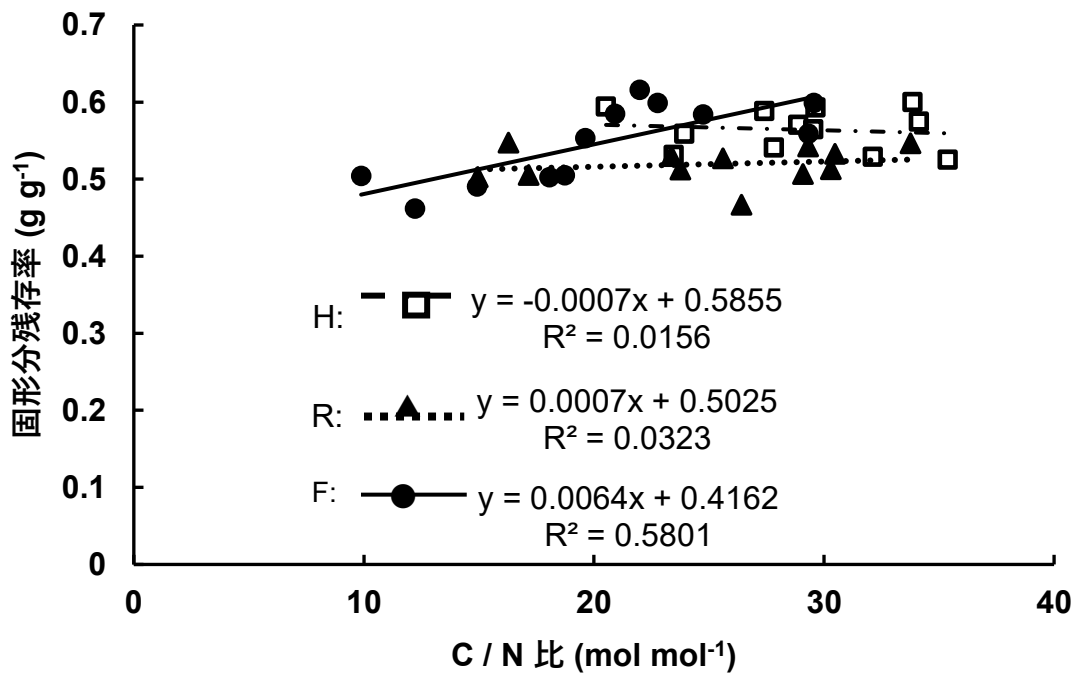


図 3-5 ヒマワリ茎から分離された固形分(保持時間：20 分)



(a) 栽植密度の異なる試験区の固形分残存率



(b) 採取時期別の固形分残存率

図 3-6 加圧熱水処理後の固形分残存率と原料 C/N 比の関係

(加圧熱水処理の処理温度 180°C, 保持時間 40 分)

3.3.2.2 植物養分の溶出

加圧熱水処理によって分離された液分に溶出する植物養分元素の溶出率を表 3-1 に示した。元素の溶出率は元素ごとに異なっており、カリウム 0.90~0.95, マグネシウム 0.84~0.94, 窒素 0.78~0.85, リン 0.58~0.82, カルシウム 0.31~0.64, 炭素 0.32~0.40 であった。元素溶出率と栽植密度あるいは採取時期との関係は明瞭ではなかった。

横軸に原材料の C/N 比を取り、縦軸に溶出した植物養分元素総量を窒素量で除した N_{UT}/N 比をとってプロットすると、図 3-7 が得られた。ヒマワリ茎に含まれる植物養分元素総量と窒素量の比は材料の C/N 比と密接な関係があったが、溶出する成分元素についても同様な関係が示された。材料の植物養分元素含有量とその溶出率は各元素で異なるものの、溶出する元素総量と窒素量の比は、原料 C/N 比と一定の関係にあることが判明した。原料の C と N だけを測定することで、本研究で得られた窒素の溶出率とこの関係式から、溶出する植物養分元素総量を推定できることになる。

本研究では液分に溶出した植物養分をイオンクロマトグラフでも測定したが、イオンは pH の影響を受けるため安定した精度の高い測定には難があった。そのため、固形分に残存する植物養分から溶出率を算出した。ただ、液分を作物の養分として利用する際は、栽培試験等によりその有効性を実験的に検証することが必要である。

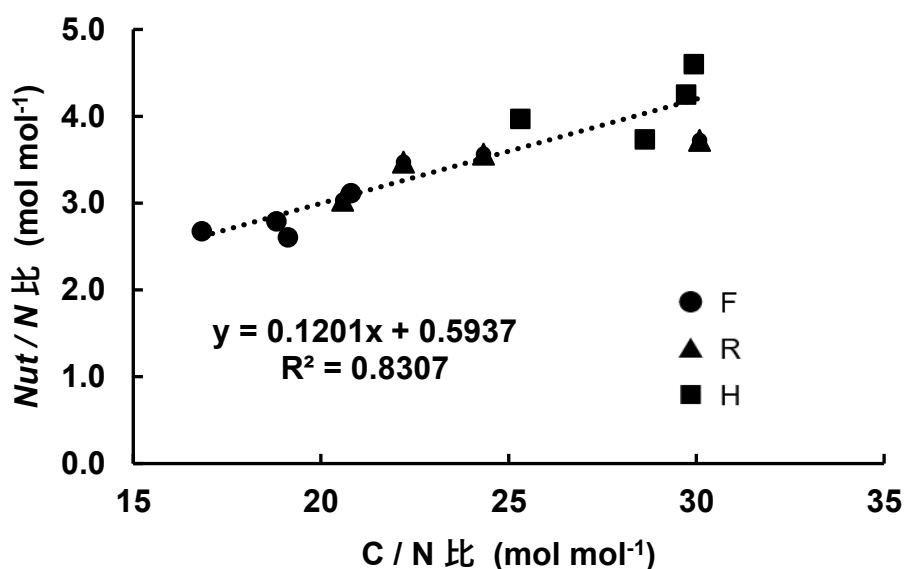


図 3-7 加圧熱水処理で溶出する植物養分の N_{UT}/N 比と原料 C/N 比の関係
(加圧熱水処理の処理温度 180°C, 保持時間 40 分)

3.3.3 加圧熱水処理条件の影響

3.3.3.1 原料の分解

加圧熱水処理条件の温度と保持時間を変えて処理したときの固形分残存率を図 3-8 に示した。固形分残存率は、処理温度の保持時間 20 分のとき、温度 130 °C, 180 °C, 230 °C でそれぞれ 0.73, 0.56, 0.43 となり、処理温度が上昇すると固形分残存率が低下した。Maria ら(2003)は固形分回収率において、温度条件が高いほど高い可溶率が得られたが、粒径の大きさに依存性は見られなかったと報告している。また、小倉ら(2013)はもみ殻と稲わらの加圧熱水処理から固形分のリグニン含量が多くなると処理残渣が多くなることを示している。保持時間を 40 分, 60 分に長くすると、わずかながら固形分残存率は低下する傾向であったが、保持時間より温度の影響が大きかった。

水野(1998)によれば、水のイオン積 $\log K_w$ は温度 135 °C, 180 °C, 235 °C で、それぞれ、-11.3, -10.6, -9.9 と計算される。水のイオン積の増大に応じてヒマワリ茎が加水分解し

て固形分残存率が減少し、反応が急速に進むため、反応の保持時間の影響は温度に比べて小さいことが確認された。

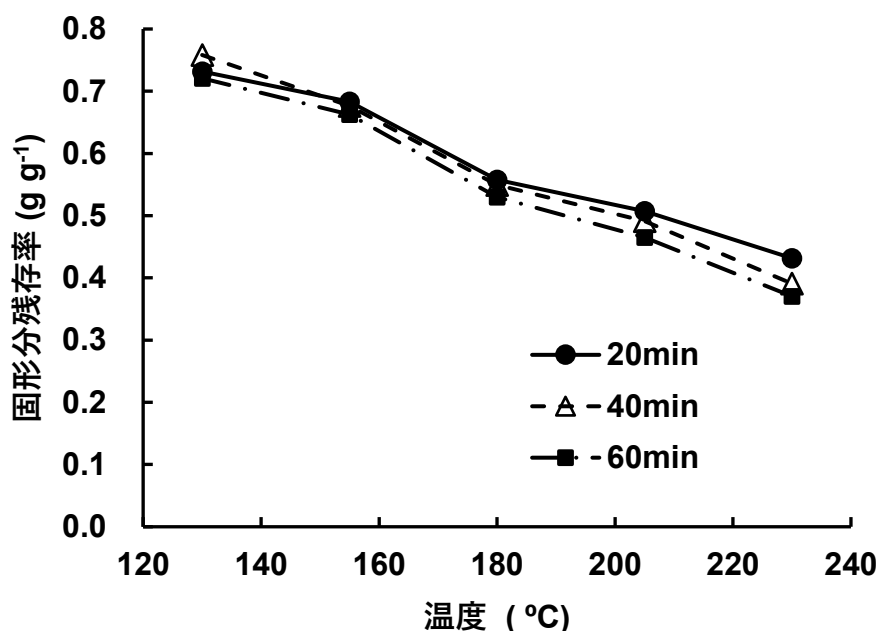


図 3-8 加圧熱水処理における処理温度及び保持時間と固形分残存率

3.3.3.2 植物養分の溶出

加圧熱水処理の処理温度（保持時間 20 分）を変えたときの元素の溶出率を図 3-9 に示す。保持時間 20 分のとき、処理温度を 130 °C、180 °C、230 °C と上昇すると、窒素の溶出率は 0.43、0.50、0.60 と増大した。保持時間を 40 分、60 分とすると、溶出率はわずかに大きくなるものの、大きな変化はなかった。窒素と同様にカリウム、カルシウム及びマグネシウムは温度上昇とともに溶出率が増大したが、リンの溶出率は逆に低下した。保持時間を長くしても、いずれの元素の溶出率はあまり変化しなかった。マグネシウムとカリウムの溶出率は処理温度に関わらず高かった。小倉ら(2013)と Phaiboonsilpa ら(2013)は稲わら及びもみ殻から 20°C で 10 MPa の 10 分間冷水抽出処理により Na, Cl, K が溶出し、230°C で

10 MPa の 10 分間の加圧熱水処理から Si が多く溶出し、Na, Mg, K, Ca が含まれていることを確認している。K の抽出率が高かったのは 20°C の冷水抽出で K が溶出していたことから加圧熱水処理の影響ではなく、K が水に溶けやすい形態で存在していることが理由であると考えられる。

植物養分の元素の溶出率が異なる理由としては次のように考えられる。作物に吸収された植物養分の中で、マグネシウムやカリウムは細胞内の細胞液に溶けて蓄積されている。また、カルシウムは細胞壁の構成成分として存在し、リンは核酸の主成分として同化されている。このような各成分の植物体内での存在形態が溶出率の違いに表れたものと考えられるが、さらなる検証が求められる。

処理温度とリンの溶出の関係では、他の元素とは異なる傾向が見られた。100 °C を超えた水への溶解のデータはないが、梶田ら (1967) は 100 °C までは温度が高いほどリンの浸出量は多いと報告している。リンの場合は、高温にしたとき反応容器内で溶出していたリンが冷却過程で固形分に付着して析出した可能性が考えられた。そこで、処理後に得られた固形分を 2 %クエン酸で 1 分間振盪浸出したところ、固形分に含まれるリンの 40.2% が溶出したことがわかった。このことから、温度を高くするほど溶出率が低下したのは、溶出したリンが反応容器の冷却時に固形分の表面に析出したためと確認された。

本実験の結果から、加圧熱水処理の保持時間を長くしても、植物養分の溶出においてあまり効果的でないことが示された。処理時間の短縮や投入エネルギーの低減を考慮すると、保持時間は 20 分が適当といえる。以上のことから、植物養分の抽出では、処理温度を高温にするほど多くの養分を溶出できることが分かったが、冷却時の養分元素の析出を避けるためには、加圧熱水処理を連続式にするなど液分の取り出し方の検討が必要である。

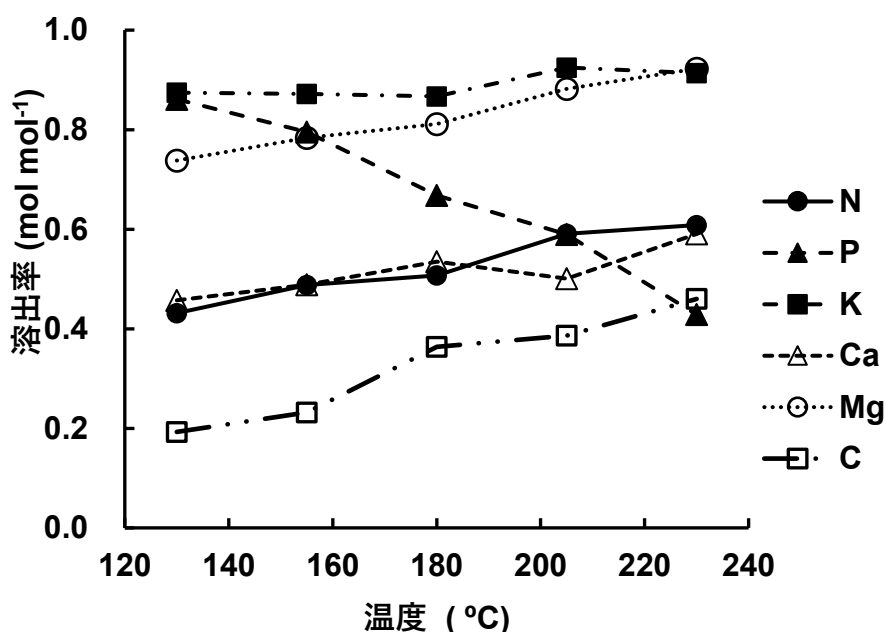


図 3-9 加圧熱水処理における処理温度（保持時間 20 分）と各植物養分元素の溶出率

3.3.4 加圧熱水処理の作物残渣への適用

3.3.4.1 加圧熱水処理で得られる植物養分量の推定

表 3-2 に前述のヒマワリ茎の収量と固形分残存率あるいは養分元素の溶出率から、得られる単位面積当たり抽出物量の計算結果を示した。ここでは、栽植密度とサンプル採取時期のデータが揃っている温度 180 °C、保持時間 40 分の加圧熱水処理で得られたデータを使用した。抽出物量はヒマワリ茎量に依存するので、栽植密度が高い試験区が多くなった。バイオエタノール原料としての利用が期待される固形分は開花期、登熟期、収穫期にそれぞれ 96~198 g m⁻²、108~208 g m⁻²、135~237 g m⁻²となった。一方、液分中に窒素は開花期、登熟期、収穫期にそれぞれ 3.2~7.5 g m⁻²、2.6~6.2 g m⁻²、3.1~5.2 g m⁻²であった。カリウムはそれぞれ 12.6~27.1 g m⁻²、13.4~32.8 g m⁻²、20.1~29.8 g m⁻²と施肥量以上の値となった。また、リンはそれぞれ 0.7~1.6 g m⁻²、0.5~0.8 g m⁻²、0.3~0.5 g m⁻²であった。肥料として施肥は行っていないカルシウムは 1.4~2.4 g m⁻²、2.0~4.3 g m⁻²、3.0~4.7 g m⁻²、マグネシウムは 2.1~3.6 g m⁻²、2.3~3.7 g m⁻²、2.8~4.1 g m⁻²となった。これらは計算値では

あるが、加圧熱水処理することで、収穫期のヒマワリ茎から窒素で投入肥料の 3 割程度が回収できることになる。また、栽植密度を高めてもヒマワリ茎からの養分抽出量は変わらないが、気象状況によって密植による折れや倒伏が発生するため、株間 30 cm～40 cm 試験区の栽植密度がよいと考えられる。図 3-10 に栽植密度ごとの加圧熱水処理による単位面積当たり養分抽出量の推定結果を示した。この図は GraphR によって作成した。この結果より、窒素は栽植密度及び処理温度療法が高いと抽出量が増加することが明らかになり、リンは栽植密度を高くして処理温度を低くすることにより抽出量が増加することが示された。カリウムは窒素やリンと異なり、処理温度の違いによる影響よりも栽植密度に抽出量を依存していることが示された。

表 3-2 単位面積当たり抽出物量

	(g m ⁻²)		
	開花期	登熟期	収穫期
C(固形分)	96～198	108～208	135～237
N	3.2～7.5	2.6～6.2	3.1～5.2
K	12.6～27.1	13.4～32.8	20.1～29.8
P	0.7～1.6	0.5～0.8	0.3～0.5
Ca	1.4～2.4	2.0～4.3	3.0～4.7
Mg	2.1～3.6	2.3～3.7	2.8～4.1

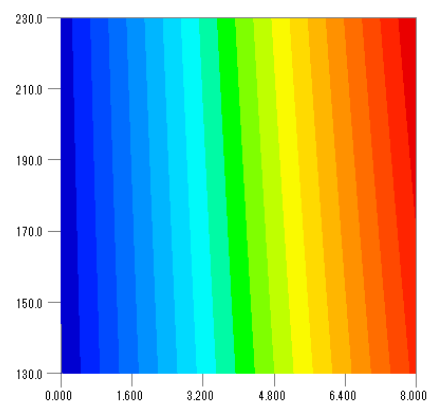
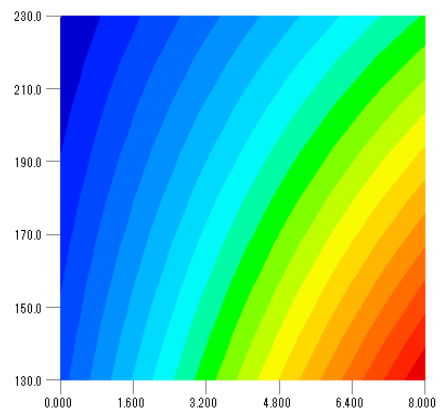
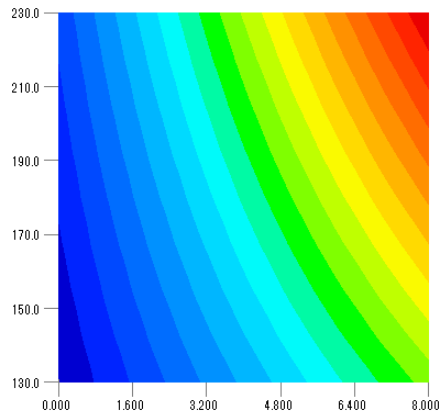


図 3-10 栽植密度ごとの加圧熱水処理による単位面積当たり養分抽出量の推定

縦軸：処理温度(°C)，横軸：栽植密度(g m⁻²)

上図：窒素，中図：リン，下図；カリウム

3.3.4.2 液分に溶出する有機酸への対応

加圧熱水処理で得られる液分に溶出した有機酸濃度を表 3-3 に示す。主な成分はクエン酸、ピルビン酸、リンゴ酸、コハク酸、乳酸、ギ酸、酢酸、プロピオン酸であった。処理温度が高くなるにしたがい、分子量の小さいギ酸と酢酸の濃度が増加した。これらの有機酸により、液分の pH は 4.5 まで低下していた。また、EC は 7.2~11.0 dS m⁻¹ であった。Maria ら(2003)は温度条件と pH の間には強い相関関係が見られなかったが、温度が高くなるほど脂肪酸の含有量が増加したことを示している。また、Lu ら(2009)は含まれているキシランがキシロース、キシロオリゴ糖、グルクロン酸、酢酸に分解され、リグニンが 150°C で分解されてアルデヒド類が生成されることを報告している。Yu ら(2010)は高い処理温度及び処理時間が長いほど酢酸の生成量が増加し、リグノセルロースの構造がより顕著に破壊されていたことが確認している。小倉ら(2013)はヘミセルロースの単糖類及びアセチル基由来の酢酸が得られたことを明らかにしている。

このように有機酸を含む液分を作物栽培用の養液と利用する上では、低 pH への対策が必要となる。大池ら(2017)は、チンゲンサイの土耕栽培において、pH の低い養液を定植 21 日前に施用した場合は作物への影響はないと報告している。定植 1 日前の施用では初期生育に遅れが見られたものの後半生育で成長が改善したと、低 pH は土壤に施用することで解決できることを述べている。

表 3-3 加圧熱水処理条件と有機酸の溶出

(mmol g⁻¹)

処理温度	保持時間	クエン酸	ピルピ ン酸	リンゴ 酸	コハク 酸	乳酸	ギ酸	酢酸	プロピ オン酸
130 °C	20 min	0.14	0.03	0.19	0.01	0.00	0.12	0.17	0.02
155 °C		0.14	0.04	0.20	0.03	0.03	0.12	0.13	0.02
180 °C		0.12	0.05	0.18	0.06	0.07	0.34	0.46	0.07
205 °C		0.01	0.03	0.15	0.04	0.09	0.39	0.68	0.06
230 °C		0.00	0.01	0.12	0.08	0.23	0.49	0.72	0.00
130 °C	40 min	0.08	0.03	0.17	0.02	0.09	0.08	0.15	0.05
155 °C		0.09	0.03	0.20	0.05	0.04	0.22	0.33	0.01
180 °C		0.06	0.04	0.18	0.02	0.07	0.38	0.70	0.00
205 °C		0.02	0.02	0.16	0.06	0.09	0.58	0.95	0.00
230 °C		0.00	0.01	0.13	0.14	0.84	0.90	1.39	0.00
130 °C	60 min	0.16	0.02	0.19	0.02	0.04	0.09	0.10	0.03
155 °C		0.07	0.02	0.16	0.03	0.05	0.22	0.28	0.08
180 °C		0.08	0.02	0.15	0.02	0.04	0.37	0.59	0.00
205 °C		0.00	0.01	0.13	0.05	0.09	0.44	0.73	0.01
230 °C		0.00	0.01	0.06	0.07	0.31	0.52	0.83	0.01

3.3.4.3 作物残渣への利用に最適な加圧熱水処理条件の検討

上述した結果及び考察より，作物残渣の利用に向けた最適な加圧熱水処理条件の検討を行う。処理温度が高くなるとリンを除く植物養分の溶出率が高くなり，多量に抽出できるようになるが，その一方でエタノール生成に用いられる炭素成分を含む固形分の残存率が低下，固形分の分解による有機酸の生成による液分の pH の低下が問題となる。固形分及び液分の双方の生成量を最大とするためには温度条件を高くしすぎない方が望ましいが，温度が十分に高くないと液分中の養分含量が小さくなり，エタノール生成の阻害物質の分離が行えず，固形分及び液分の十分な利用が行えないと考えられる。そこで，本実験での温度帯における中温帯での処理が望ましく，Yu ら(2010)は加圧熱水処理した稲わらの酵素加水分解によるグルコース収率は，30 分の前処理で 180°C 以上，10 分では 200°C 以上で 85% 以上となることを報告しており，糖の回収率や阻害物質の生成などを考慮した際に 180°C が最

も効率的であると結論で述べていることから 180°Cが最適であると考えられる。

3.4 まとめ

本研究によって、ヒマワリ茎のような作物残渣を対象にする場合は、比較的低温の 135 °C ~235 °C、保持時間 20 分~60 分の加圧熱水処理で、セルロース原料となる固形分だけでなく、植物養分の抽出が可能であることが示された。加圧熱水処理によって得られる固形分及び液分の双方が最大となるのは 180°Cで 20 分の加圧熱水処理であり、これにより得られる固形分の質量及び含量と液分中に含まれる養分含量から作物残渣への利用に最適な加圧熱水処理条件である。加圧熱水処理で得られる植物養分の元素量は各元素の含有量と溶出率に依存しているので、得られた溶液をそのまま作物栽培液とすることは適切でない場合もある。栽培する作物に合った肥料とするためには、不足する成分を加えて調節する必要がある。また、溶液の低 pH に対応するためには、栽培前に溶液を土壌中に施用して土壌微生物の代謝を利用して有機酸を消費することで pH を中性化し、その影響を取り除くことも求められる。加圧熱水処理は作物残渣から多くの植物養分を抽出でき、多様な作物に対応できる技術であることから、ヒマワリ茎以外の残渣でも養分抽出データの蓄積が期待される。

3.5 摘要

(1) 異なる栽植密度のヒマワリ茎には単位質量当たりの元素含有量に明確な違いは見られなかった。採取時期が収穫期に進むにつれて窒素とリンが減少し、カルシウムが増加することがわかった。窒素、リン、カリウム、カルシウム、マグネシウムの元素総量 N_{UT} (mmol g^{-1}) を窒素量 N (mmol g^{-1}) で除した N_{UT}/N と C/N 比には強い直線関係が見られた。

(2) 加圧熱水処理により液分に分離できる元素の溶出率は元素ごとに異なっており、ヒマワリの栽植密度あるいは採取時期との関係は明瞭ではなかった。液分に溶出する植物養分元素総量と窒素量の比 N_{UT}/N は原料の C/N 比と密接な関係があった。作物残渣に含まれる C と N を測定することで溶出する植物養分元素総量を推定できることが示された。

(3) 加圧熱水処理による成分分離は保持時間より処理温度の条件に強く依存していた。処理温度が高くなると固形分残存率は低下し、リン以外の元素の溶出率が増加した。また、処理温度が増加すると液分に溶出した有機酸のうち、分子量の小さいギ酸と酢酸の濃度が増加した。

4.1 緒言

第 3 章において、加圧熱水処理によって植物養分を液分として抽出できたことから、本章では、液分の栽培利用について検討した。異なる栽植密度栽培のヒマワリ茎から得られた液分と異なる採取時期のヒマワリ茎から得られた液分を養液としてコマツナを栽培し、それらがコマツナの成長、収量及び含有成分へ及ぼす影響を検討した。

4.2 実験方法

4.2.1 材料

市販の珪砂（豊浦砂）を土壌として、1/10000 a（アール）の底部排水栓付きプラスチック製ポットを用いて栽培試験を実施した。ポットの底面は常時ゴム栓をして底部から水の排水がないようにした。ポットに充填する珪砂は 1 L とした。栽培作物はコマツナ（照彩，トーホク）で、基肥とする液体肥料（以降、液肥と記載）は大塚ハウス 1 号（OAT アグリオ）とした。栽培試験に供試した加圧熱水処理の液分（以降、抽出液と記載）は、2020 年に栽培したヒマワリで、開花期に採取した株間 20 cm の試験区（F20 と記載）と株間 50 cm の試験区（F50 と記載）、収穫期に採取した株間 20 cm の試験区（H20 と記載）のヒマワリ茎を、加圧熱水条件として温度 180 °C で保持時間 40 分の処理で得られた液分であった。栽培試験に供した抽出液は、投入試料 1.0 g (FW) に対して蒸留水 20 mL の割合で定容したものである。

4.2.2 栽培条件

栽培試験は東京農工大学農学部 8 号館で植物工場用直管形 LED 照明（芝川製作所，PFL013L）を常時点灯させて実施した。栽培の様子を図 4-1 に示した。室温はエアコンで 25 °C に調節した。栽培棚にポットを置き、棚天面に取り付けた LED とポットの間隔を 20 cm とした。灌水は 2 日に 1 回、最大容水量の 60 % まで灌水した。供試した珪砂の最大容水量は土壌環境分析法（1997）に基づいて計測した。その結果、最大容水量は 0.24 g g⁻¹ とな

った。灌水後はポットの設置位置による生育の影響をなくすため、位置をローテーションした。



図 4-1 LED 照明下でのコマツナ栽培の様子

4.2.3 試験区の設定

試験区は抽出液を市販の養液と混合して施用する養液栽培区と、抽出液を少量施用する蒸発区を設けた。試験区の一覧及び反復数を表 4-1 に示す。ここでは主に養液栽培区について、記述する。

試験に供試した抽出液に含まれる主要な植物養分のイオン濃度を表 4-2 に示した。硝酸イオンは市販液肥と同程度の濃度であったが、リン酸イオンは市販液肥の 3~4 倍、カリウムイオンは数倍~10 倍程多かった。また、抽出液には有機酸が 30~60 mmol L⁻¹含まれていた。養液栽培試験区は、各抽出液(F20, F50, H20)を液肥に混合した養液を施用した試験区である。硝酸イオンの窒素量を基準として、各抽出液の混合割合を 100 %, 50 %, 25 % とし、対照区は液肥のみとした。栽培ポット数は 5 反復とし、準備した抽出液の量の都合で、H20 の試験区は 3 反復とした。

表 4-1 試験区概要及び反復数

抽出液の割合 (%)	抽出液の種類		
	F20	F50	H20
100	5	5	3
50	5	5	5
25	5	5	3
0(対照区)	5	0	0

表 4-2 養液に用いた抽出液の成分割合

(mmol L⁻¹)

	NO ₃ ⁻	PO ₄ ⁻	K ⁺	Ca ²⁺	Mg ²⁺	Na ⁺	SO ₄ ²⁻	Cl ⁻	有機酸
F20	6.2	7.7	65.7	2.1	3.3	1.1	1.6	7.1	37.4
F50	5.7	9.5	64.6	2.4	3.6	1.5	1.6	6.4	29.9
H20	4.5	17.0	128.0	3.5	6.7	2.8	1.6	22.0	65.6

有機酸はクエン酸, ピルビン酸, リンゴ酸, コハク酸, 乳酸, ギ酸, プロピオン酸の総量

4.2.4 栽培暦

栽培期間は2020年12月11日から2021年1月20日までの40日間で、播種は12月11日であった。均等に16穴を開けた播種板を作成し、深さ1cmの穴を開けて、1穴に1粒播種した。播種後発芽するまでは土壌表面の乾燥を防ぐためラップで覆った。全体の90%以上が発芽した播種後5日目までは蒸留水を灌水し、以降は養液の灌水に切り替えた。間引きは2回で、1回目は本葉が1枚以上生え揃った播種後13日目に行い、間引き後に1ポット当たり4株とした。2回目の間引きは本葉が4~5枚になった試験区から行い、播種後

25 日目と 31 日目の 2 回に分けて実施した。間引き後は 1 ポット当たり 1 株とした。収穫は播種後 40 日目に行った。

表 4-3 栽培暦

日付	播種後日数	作業内容
2020 年 12 月 11 日	—	播種
12 月 16 日	5	灌水開始
12 月 24 日	13	間引き(一回目)・第一回葉面散布
12 月 26 日	15	第一回生育調査
12 月 30 日	19	第二回生育調査
2021 年 1 月 3 日	23	第三回生育調査・第二回葉面散布
1 月 5 日	25	第二回間引き①, 断水試験開始
1 月 7 日	27	第 4 回生育調査
1 月 11 日	31	第五回生育調査・第二回間引き②
1 月 13 日	33	第三回葉面散布
1 月 15 日	35	第六回生育調査
1 月 19 日	39	第七回生育調査
1 月 20 日	40	収穫

4.2.5 生育調査及び収量調査

栽培試験の測定項目として灌水量と最大葉長を設定した。灌水量の計測は 2 日に 1 回、灌水時にポット質量を計測し、質量の減少量を記録する方法で行った。最大葉長の計測は播種後 13 日目以降、4 日に 1 回とした。最大葉長は葉柄の根本から葉先までの長さとした。

収穫後は生体質量と乾燥質量を測定し、その後、成分分析した。乾燥質量は、収穫後に 1～2 日間フリーズドライしたコマツナの質量とした。成分分析は乾燥したコマツナを用いて、第 3 章と同様の手法で行った。

4.2.6 ポット内の土壌水分

作物栽培期間における土壌水分の状態を調べるためにテンシオメータ(大起理化工業, DIK-3187)を用いて pF を計測した。計測データは 5 分毎に, データロガー(大起理化工業, DIK-9610)に記録した。計測対象ポットは pF 計測用のポットで, コマツナを対照区と同様に栽培しながら計測した。

栽培期間中の pF の推移を図 4-3 に示した。pF は規則的に推移しその周期は約 2 日であった。これは 2 日に 1 回実施した灌水の影響で, 1 月 23 日と 29 日付近は灌水できなかったことによる。また, コマツナの成長に伴い pF のピークが高くなった, これはコマツナへの給水量が増加したためと考えられる。一般に, 成長阻害水分点は pF3 前後とされていることから, 本研究ではコマツナに十分な量の水が供給されていたと考えられる。



図 4-2 pF 計測の様子

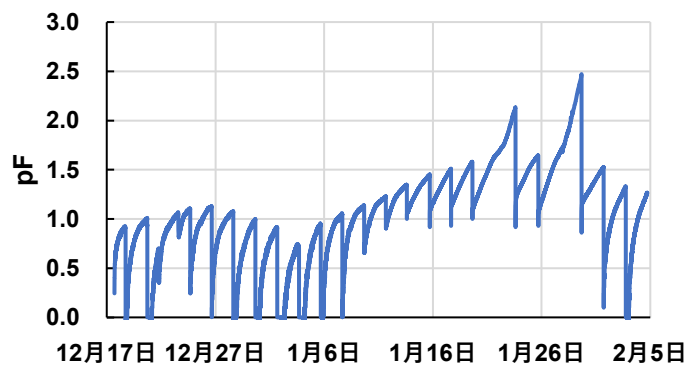


図 4-3 栽培期間中の土中水 pF の推移

4.2.7 栽培棚における温度及び相対湿度の推移

栽培棚における温度と相対湿度を温湿度センサ(OMRON, ES2-THB-N)で計測した。計測は 1 秒毎に, データロガー(GRAPHTEC, GL840)に記録した。記録した温度と相対湿度のデータを図 4-4 に示す。温度は 1 月 3 日から上昇しているが, これは室温調節のためにエアコンの風量を強くした影響である。1 月 4 日以降の温度は 25 °C前後で推移し, 相対湿

度は 15 % から 40 % で推移した。

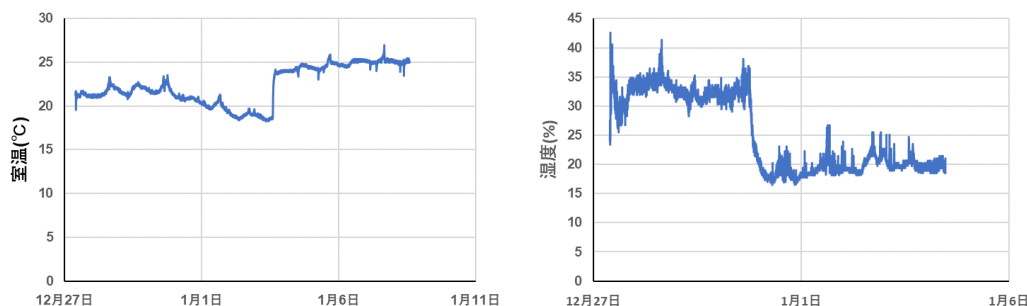


図 4-4 栽培棚の温度及び相対湿度

4.3 実験結果及び考察

4.3.1 コマツナの生育

4.3.1.1 抽出液の混合割合がコマツナの生育に及ぼす影響

栽培期間中の積算灌水量の変化を図 4-5 に示した。抽出液の種類に関わらず、抽出液の混合割合が少ないほど灌水量が増加した。灌水量の増加幅は F20、F50 と比べて H20 は少なかった。これは H20 の抽出液 100 % 試験区と 50 % 試験区の個体がすべて枯死したため、作物の吸水がなく、ポットからの蒸発水のみ減少となったことによる。宮田ら (2005) は、養液土耕栽培における養液中の Na や Cl 濃度の上昇により、土壤中の EC の上昇及び Na や Cl の集積による塩類障害が発生することを推測している。本栽培試験でも用いた養液は市販液肥と比較した際に Na や Cl の含有量が高く、それらが集積したことで塩類障害が発生し、生育障害の原因になったと考えられる。対照区と比較すると、播種後 10 日目辺りから灌水量に差が見られ始めた。抽出液の灌水は播種後 4 日目から行ったため、抽出液の灌水によって生育が抑制され始めたものと考えられる。最大葉長の変化を図 4-6 に示した。最大葉長は抽出液の種類に関わらず、抽出液の混合割合が少ないほど大きくなった。堂本ら (2019) は、水熱処理抽出液の植物生育障害作用は濃度依存的であると報告しているため、これらの結果は抽出液の比率を下げて液肥の割合を増やすことで抽出液中に

含まれる有機酸を主とする生育障害物質の濃度が下がり生育の抑制が抑えられたためであると考えられる。また、松丸ら(2005)は砂質土の水分保持力の低さから土壤水分中の塩類濃度が一般的な土壌である黒ボク土に比べて高くなりやすいことが生育障害としての影響を大きくしていると推測しており、本実験では珪砂を用いた試験であることから水分の蒸散による影響が考えられる。

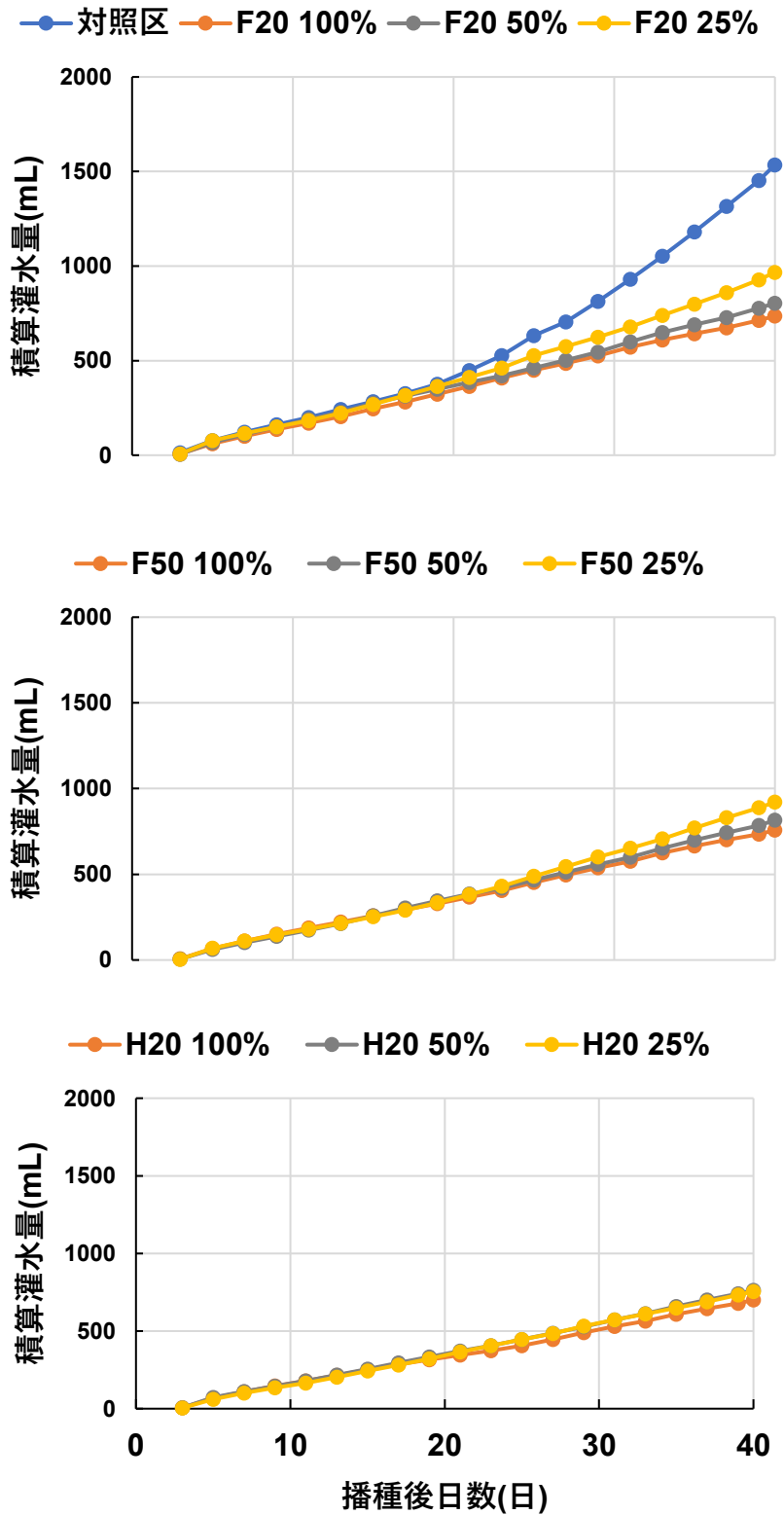


図 4-5 抽出液の混合割合が灌水量に及ぼす影響

(上図：F20，中図：F50，下図：H20)

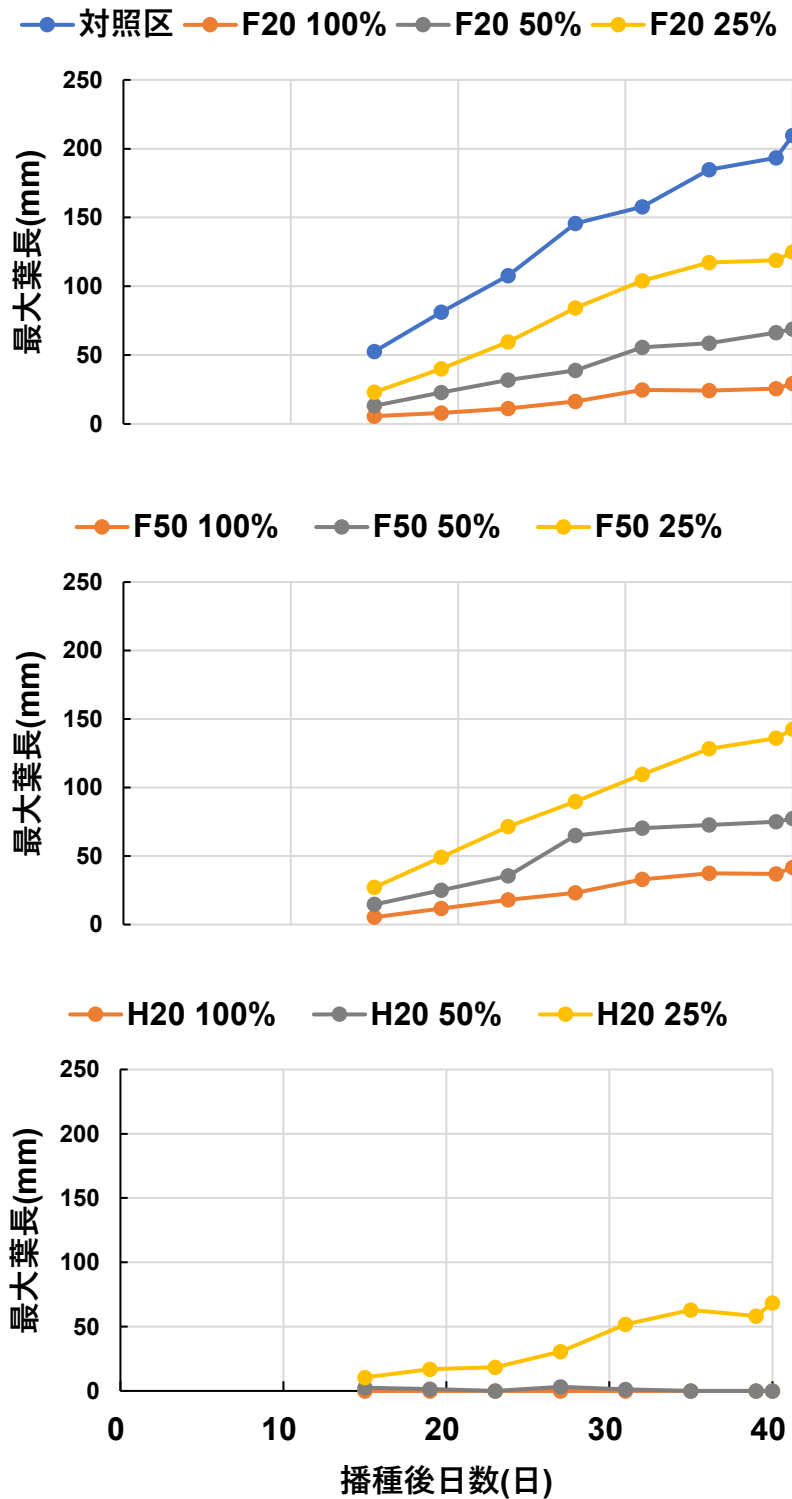


図 4-6 抽出液の混合割合が最大葉長に及ぼす影響

(上図：F20，中図：F50，下図：H20)

4.3.1.2 抽出液の種類が生育に及ぼす影響

灌水量の変化及び最大葉長の変化を図 4-7 及び図 4-8 に示した。灌水量は F20, F50, H20 の順に多い結果となった。それに対して、最大葉長は F50, F20, H20 の順に大きくなった。これより、F50 は F20 よりも単位灌水量当たりの伸長が大きかった。また、F20-F50 間の差よりも F20-H20 間の差の方が灌水量、最大葉長ともに大きくなった。これらの差は抽出液中に含まれる有機酸含量の差であると考えられる。抽出液による肥料焼けとみられるポット表面の様子を図 4-9 に示した。抽出液の違いによる成長の様子を図 4-10～図 4-12 に示した。これらから、供試したヒマワリ茎の採取時期の違いがコマツナの成長に影響したことが分かった。

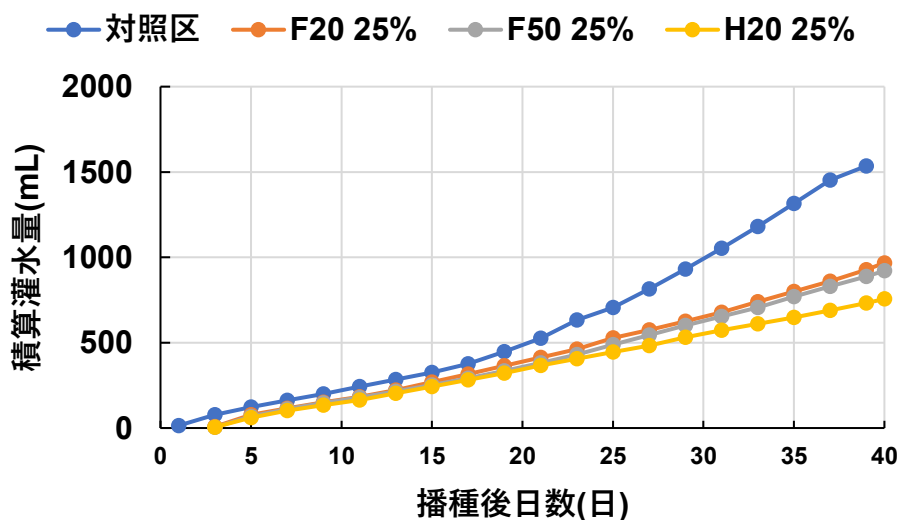


図 4-7 抽出液の種類が灌水量に及ぼす影響

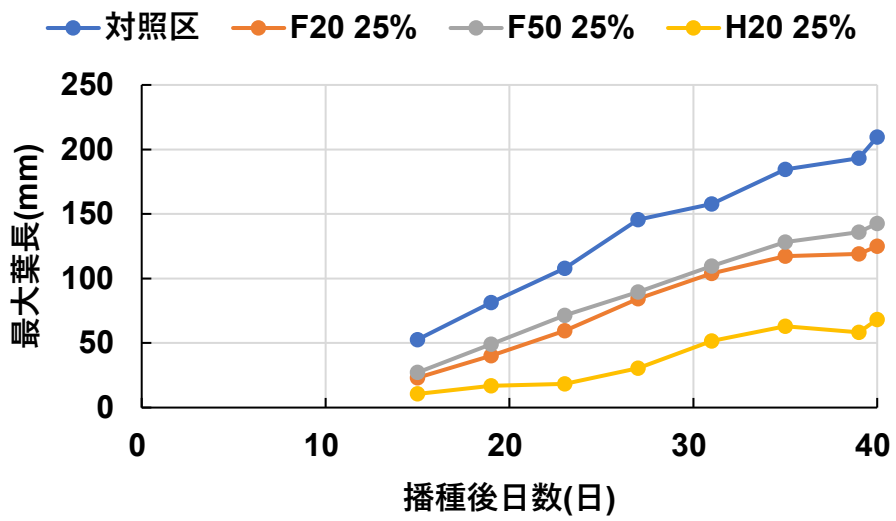


図 4-8 抽出液の種類が最大葉長に及ぼす影響

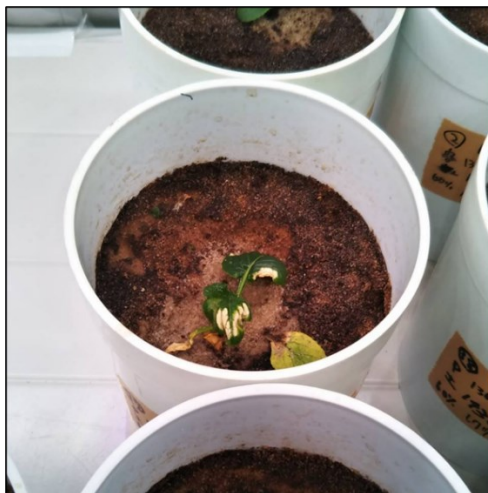


図 4-9 コマツナの肥料焼け

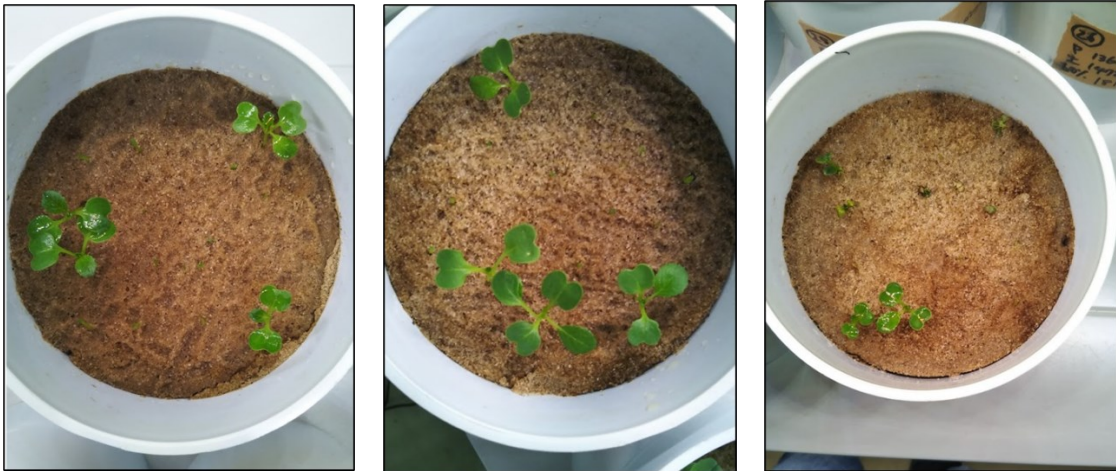


図 4-10 第 1 回目間引き後の様子

(左 : F20-25%, 中 : F50-25%, 右 : H20-25%)



図 4-11 第 2 回目間引き後の様子

(左 : F20-25%, 中 : F50-25%, 右 : H20-25%)

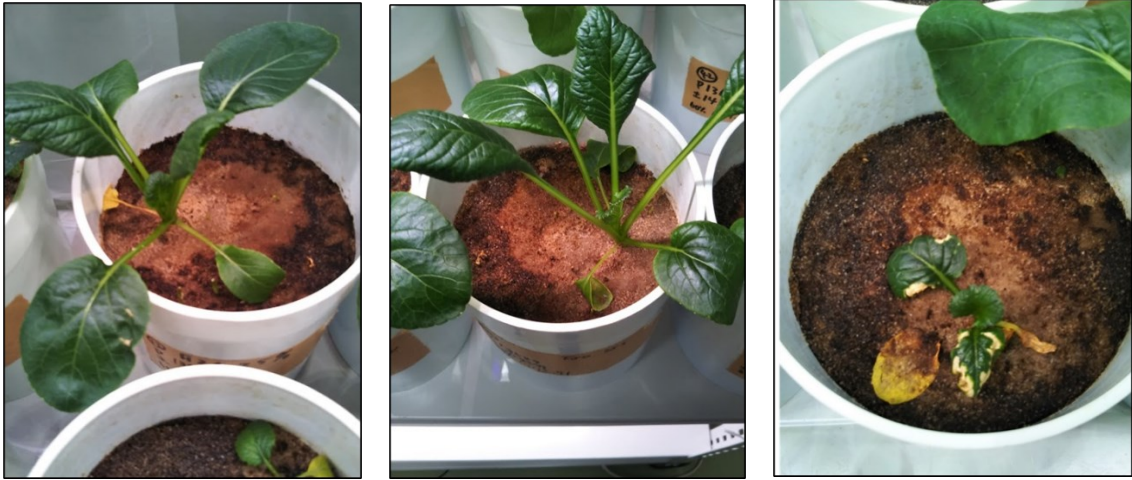


図 4-12 収穫時の様子

(左 : F20-25%, 中 : F50-25%, 右 : H20-25%)

4.3.1.3 まとめ

抽出液の施用は灌水量とコマツナの生育の両方に影響を及ぼし、抽出液の混合割合が多くなるほど養液中の有機酸の比率が減少し、生育を抑制する方向に働いた。また、栽植密度よりも採取時期の違いの方がコマツナの生育に影響を及ぼした。

植物は細胞内外の浸透圧の差を利用して吸水している。抽出液の成分を市販液肥の硝酸イオン濃度が等しくなるように希釈したが、リンやカリウム等の他の成分は市販液肥よりも多く含まれており、土壤に塩類集積が発生して生育障害の原因となったと可能性がある。したがって、土壤に抽出液を多量に施用した場合、植物細胞内外の浸透圧の差が小さくなり、吸水の抑制に繋がったと考えられる。図 4-9 に見られたように、抽出液を灌水した試験区で作物に肥料焼けの症状が見られた。また、作物によっては生育に最適な土壤 pH が異なることが知られており、コマツナは pH が 5.5~6.5 の弱酸性の土壤が適しているとされている。しかし、抽出液の pH は 4.3 程度と適切な範囲より低かったため、コマツナの生育が抑制されたと考えられる。

4.3.2 コマツナの乾燥質量及び成分

4.3.2.1 コマツナの乾燥質量

各試験区のコマツナ生体質量と乾燥質量を表 4-4 に示した，乾燥質量は対照区が最も大きくなり，抽出液の混合割合が高くなるほど乾燥質量は減少した．また抽出液の種類による差異は H20 で見られ，他の 2 種類の抽出液よりも乾燥質量が小さくなった．試験区ごとの乾燥質量の違いは葉長や灌水量と傾向がおおむね同じであった．また，施用した養液に含まれる窒素とカリウムの比である N/K 比とコマツナ乾燥質量を図 4-13 に示す．これらの間に高い相関関係が見られ，土屋(1990)はカリウムの過剰施肥が正常な窒素吸収の抑制に繋がることを報告していることから，本栽培試験で用いた養液に含まれるカリウムが窒素の量に対して多くなることで窒素の吸収を阻害に繋がり，生育に影響を及ぼしたと考えられる．

表 4-4 各試験区の生体質量と乾燥質量

	生体質量(g)	乾燥質量(g)
対照区	23.2	2.0
F 20-100%	0.39	0.043
F 20-50%	1.00	0.14
F 20-25%	5.30	0.63
F 50-100%	0.52	0.06
F 50-50%	1.90	0.27
F 50-25%	5.70	0.55
H20-100%	0.0	0.0
H20-50%	0.0	0.0
H20-25%	1.10	0.13

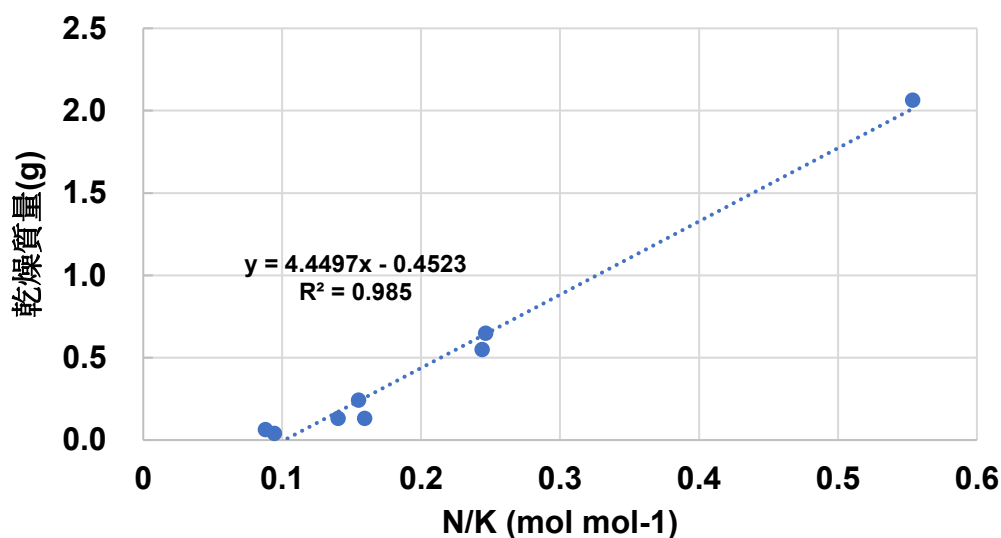


図 4-13 抽出液中の N/K 比と乾燥質量の関係

4.3.2.2 コマツナの成分

コマツナの炭素、窒素、リン、カリウム、マグネシウム、カルシウムの含有率を表 4-5 に示した。炭素、窒素とその他の元素では分析に必要なコマツナの量が異なるため、一部元素分析できなかった試験区があった。

肥料成分としては窒素が最も多く含まれていた。窒素はクロロフィルやタンパク質といった植物細胞を構成する物質の主成分であるため他の養分よりも多く含まれていたと考えられる。植物細胞を構成する物質であるセルロースを主成分とする炭素も窒素と同様にコマツナ中の成分割合が高い。

試験区間の成分の差を比較すると、表 4-5 から分かるように、炭素は試験区間であまり大きな差は見られなかったが、対照区よりも抽出液を施用した区で炭素含有率がわずかに高くなった。窒素は炭素と比較すると試験区間で差が大きく、施用量の多少にかかわらず抽出液の施用区では対照区に比べて窒素含有率が小さくなった。また、抽出液の混合割合が高いほど窒素含有率が小さくなった。養液栽培区の F50-100 %試験区は他の区と比べて窒素含有率が高くなっているが、反復が少ないため引き続き調査する必要がある。抽出液の施用

によって窒素含有率が減少したことから、抽出液はコマツナの窒素吸収を阻害する効果があるか、あるいはコマツナの成分を変化させて少ない窒素量でコマツナを生育させる効果があると考えられる。その他の栄養成分に関して、カリウムは抽出液の施用区と対照区との差は大きくなかった。リン、マグネシウム、カルシウムは抽出液の施用区は対照区よりも含有率が小さくなった。表 4-2 で示したように抽出液中のカリウムイオンは液肥と比較すると非常に多いため、コマツナ中にもカリウムが多くなったと考えられる。カリウムが過剰にある場合、養分の拮抗作用によってカルシウムとマグネシウムの吸収が抑制されることが知られている (Kayser and Isselstein, 2005)。よってカルシウム、マグネシウムの含有率が抽出液の施用区で低くなったと考えられる。

表 4-5 コマツナの成分分析結果

(C と N は(mmol g⁻¹), Ca, Mg, K, P は(μ mol g⁻¹))

		C	N	Ca	Mg	K	P
	対照区	29.9	4.6	0.81	3.49	28.59	4.32
F20	50%	30.8	2.2				
	25%	32.7	2.6	0.49	2.22	29.36	2.95
	100%	33.7	3.5				
F50	50%	32.6	2.3				
	25%	29.8	2.7	0.64	2.34	31.39	3.16
H20	25%	31.0	3.6				

4.3.3 コマツナの水利用効率

収穫したコマツナの乾燥質量と灌水量から、各試験区のコマツナ水利用効率(WUE)を求めた。水利用効率は作物の蒸散量(L)に対する作物の質量増加量(g)を表したもので、計算に式(4-1)を使用した。

$$WUE = M/(I - E) \quad \dots(\text{式 4-1})$$

ここで、 WUE : 水利用効率(g L^{-1})、 M : コマツナの乾燥質量(g)、 I : 各試験区の灌水量(L)、 E : 蒸発量(L)。

式(4.1)で算出した水利用効率では、養液栽培区の水利用効率がマイナスあるいは対照区よりも大きくなった。これは抽出液を散布した区の蒸発量が対照区よりも少なくなったからと考えられた。コマツナ収穫後の土壌では抽出液の成分が表面に付着し、図 4-14 のようなクラストが形成されていた。これが蓋の役割となって蒸発量を減少させていたと考えられる。坂井ら(2020)は土壌クラストの影響で積算蒸発量および蒸発速度がクラストのない土壌より低下したことを報告している。H20 の抽出液割合 100 %試験区の総灌水量を蒸発量と仮定すると、液肥を灌水した場合と比べて蒸発量が 10 %以上減少した。

そこで、他にも使用例がある式(4-2)で、水利用効率を算出した。

$$WUE = M/I \quad \dots(\text{式 4-2})$$

式 4-2 で算出した水利用効率を図 4-15 に示した。抽出液の混合割合が 25%の F25-50%区と F50-25%区の水利用効率は対照区の 5 割程度で、混合割合が高くなるほど水利用効率は減少したことが示された。



図 4-14 抽出液の散布によってできた土壌表面のクラスト

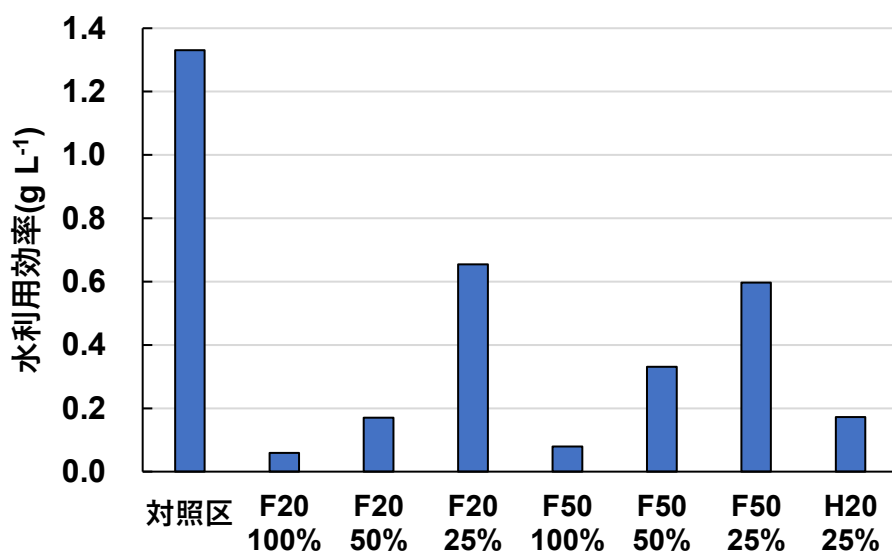


図 4-15 各試験区の水利用効率

4.3.4 コマツナの窒素利用

4.3.4.1 窒素回収率

コマツナの窒素利用に関する指標として窒素回収率及び窒素利用効率を算出した。投入した窒素量がどの程度作物の成長に使われているか、窒素回収率 NRR を用いて比較した。窒素回収率の算出は式(4-3)とした。

$$NRR = Nc/Nt \quad \dots(\text{式 } 4-3)$$

ここで、 NRR : 窒素回収率(mg mg^{-1})、 Nc : コマツナ中に含まれている窒素量(mg)、 Nt : 投入した窒素量(mg)。

各試験区の窒素回収率を図 4-16 に示した。窒素回収率は対照区で 0.8 以上となり、養液栽培区で 0.4 未満と、窒素回収率に 2 倍以上の差が生じた。土屋(1990)は、カリウムの過剰が正常な窒素吸収を抑制することを述べており、本実験で用いた抽出液は窒素やリンと比較してカリウムの濃度が非常に高かったため、カリウムによる窒素吸収が生じたと考えられる。また養液栽培区では抽出液の割合が低いほど窒素回収率は上昇した。栽培試験ではワグネルポット底部に栄養分が貯まっていたと考えられる。対照区では図 4-17 のように根が長く伸び、ワグネルポットの底部まで伸長していたため、投入した窒素を十分に利用できていた。一方で、抽出液の施用区では図 4-18 のように根が短く、ワグネルポット底部まで到達しなかったため、底部に貯まっていた養分を十分に利用できなかったと考えられ、瀧嶋ら(1960)はイネの水耕栽培時に酢酸が根の生育阻害が生じさせることを報告している。また、抽出液を施用した試験区でコマツナ中の窒素含有率が少なかったことも窒素回収率が低下する原因であった。

窒素回収率を向上させるためにはポットの高さを低くしたり、栽培日数を長くしたりしてポット底部まで十分に根が伸長できるようにするといった方法が挙げられる。また、抽出液の施用区では、施肥量を減らすことも窒素回収率の向上へとつながる。

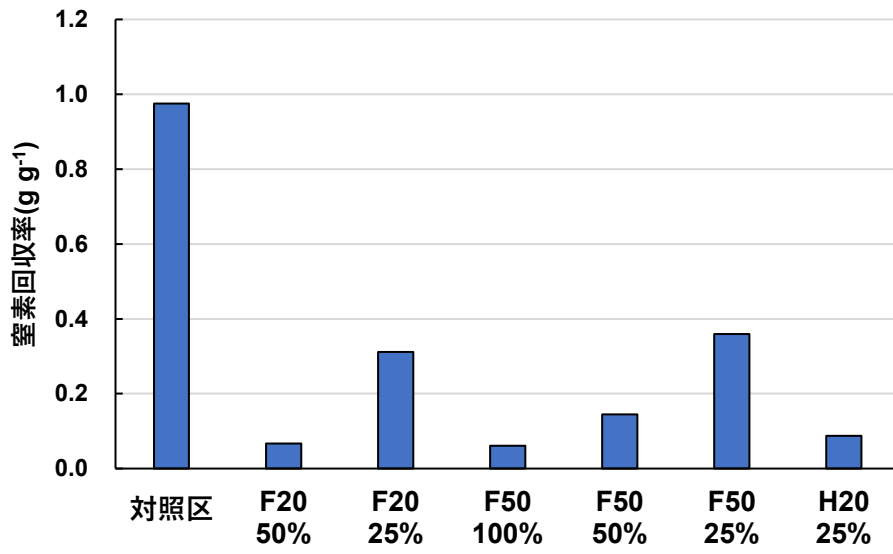


図 4-16 各試験区の窒素回収率

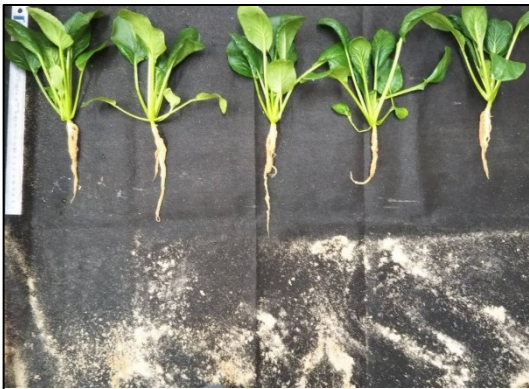


図 4-17 对照区の根



図 4-18 抽出液施用区の根

4.3.4.2 窒素利用効率

コマツナが吸収した窒素量に対する成長量を窒素利用効率 *NUE* で比較した。窒素利用

効率の算出方法は式(4-4)とした。なお、コマツナの窒素吸収量はコマツナの窒素含有量とした。

$$NUE = M/Nu \quad \dots(\text{式 } 4-4)$$

ここで、 NUE : 窒素利用効率(g g^{-1})、 M : コマツナの乾燥質量(g)、 Nu : コマツナの窒素吸収量(g)。

各試験区の窒素利用効率を図 4-19 に示した。抽出液の施用区は対照区よりも窒素利用効率が高かった。特に、抽出液割合 50%区では対照区と比較して窒素利用効率が 2 倍近く上昇した。抽出液の施用によって少ない施肥量でも収量が増加した。ただし、前述したように抽出液施用区の窒素回収率は低かったため、作物を実際に育てるときには窒素回収率が高くなるような栽培方法の改善が必要である。

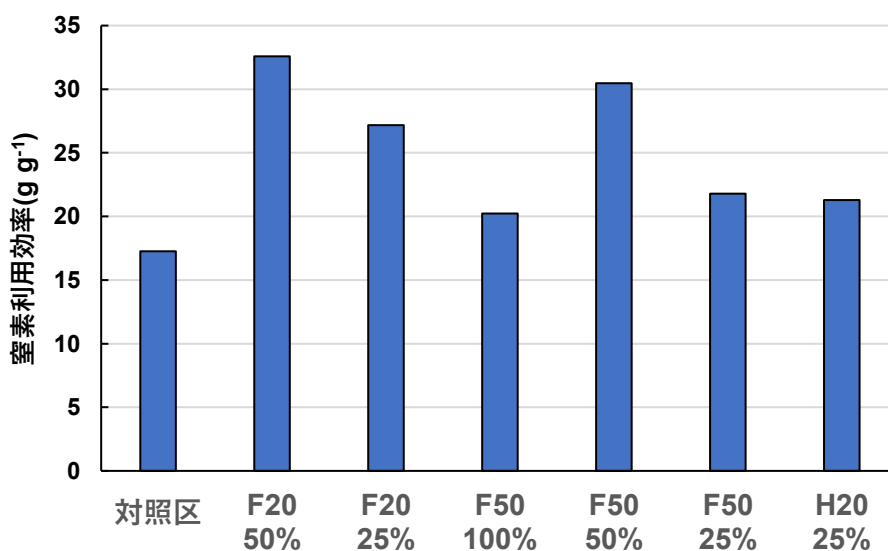


図 4-19 各試験区の窒素利用効率

4.4 加圧熱水抽出液の栽培利用に向けた改善案

本栽培試験の結果より、抽出液を栽培に利用すると窒素利用効率は向上するものの、収量の低下や水利用効率の減少など、改善点も見られた。荒木ら(2007)はトマトの養液土耕栽培において減肥した養液の給液回数を変えて施肥した結果より、1日1回の給液より3回に分けて給液した試験区のほうが多収となったことを報告しており、吉田ら(2011)は養液土耕栽培において少量ずつ高頻度な灌水により根の周辺の水分移動を多くすることや根周辺の肥料成分濃度を高く維持することで給水が促進されると推測している。また、有水ら(2018)は高EC水を用いたコマツナの養液土耕栽培において灌水頻度を変更したところ、1日5回の高頻度灌水区において草丈と地下部乾物量が大きくなる傾向が見られ、1日1回の低頻度灌水区よりも平均体積含水率が高く維持されたことを報告している。そこから根域を湿潤状態で維持できると推測し、節水に効果があると述べている。北野ら(2008)は養液栽培において環境ストレスの制御が容易であることに着目し、根だけに短期間のストレスを与えて高品質で付加価値の高い野菜の生産に有効であることを確認している。以上より、抽出液の改質以外にも養液の給液方法や期間を工夫することで本栽培試験より効果的な利用となることが考えられる。

4.5 抽出液の利用による窒素フロー

本論文で行ってきた実験における窒素のフローを図4-20に示した。これは2章及び3章の結論として述べた作物残渣の利用における効率的な栽培方法及び加圧熱水処理条件によって得られる生産物などを図示したものである。栽植密度 7.1 株 m^{-2} で10a栽培したH期のヒマワリを収穫し、 $180 \text{ }^{\circ}\text{C}$ で20分間保持する加圧熱水処理を行い、得られた液分を25%利用してコマツナの栽培に用いる一連の流れによる窒素のフロー及び各系における生産物を推定した。ヒマワリを10a栽培することで土壤中から 1049 mol の窒素がヒマワリに吸収され、その内 391 mol が 334 kg のヒマワリ茎に、 658 mol が 317 kg の子実に転流され収穫される。ヒマワリ茎に蓄積された 391 mol の窒素のうち 309 mol の窒素が加圧熱水処理

によって 6685 L の液分に抽出され、187 kg の固形分には 82 mol の窒素が残存する。得られた抽出液を市販液肥に 25% 配合してコマツナ栽培に用いることで 9 kg のコマツナの収穫が見込め、279 mol の窒素が残存・揮発すると計算され、本論文で行った作物残渣の利用形態において土壌中から吸収した窒素の約 75% が利用できることが示された。コマツナ栽培の際に化成肥料として窒素を 927 mol 投入しており、それを考慮すると最終的に 1206 mol の窒素が残存することがわかり、この窒素を含んだ土壌の再利用方法の検討が必要となる。

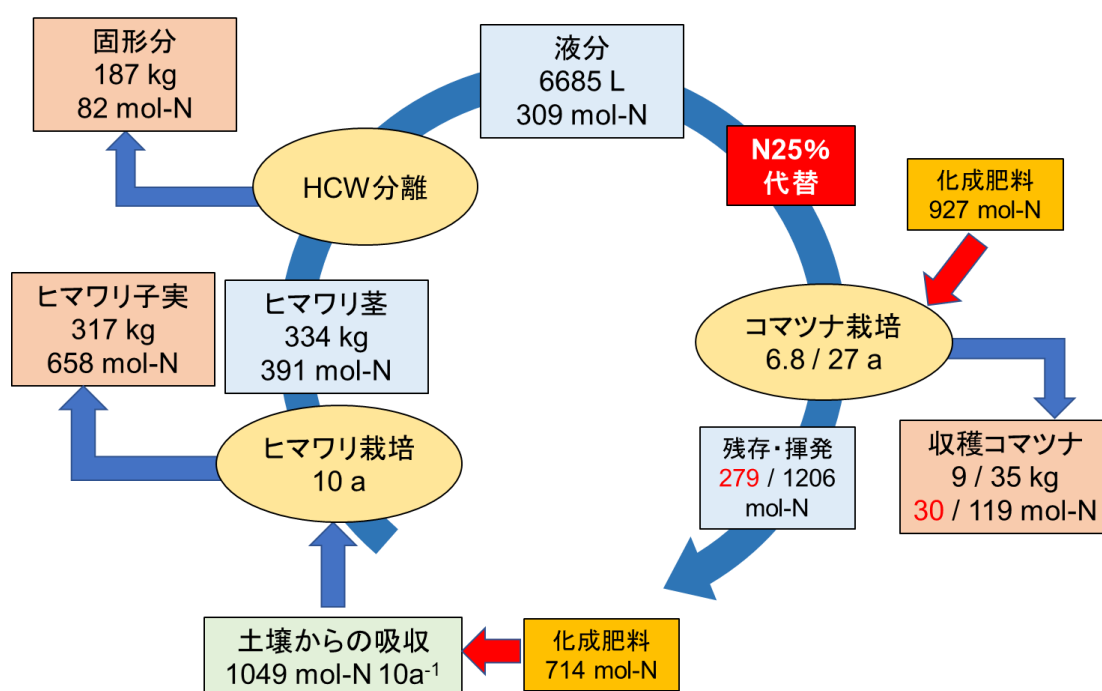


図 4-20 H 期の抽出液を用いたときの窒素フロー

4.6 まとめ

抽出液を多量に施用すると、コマツナの生育を抑制する結果となった。一方で、窒素利用効率は抽出液の施用区が高いことも示された。今回供試した抽出液にはカリウムが多く含まれていて、カリウムが過多であったことも成長が抑制された一因と考えられる。

抽出液を少量混合することで、水利用効率は高まることが分かった。抽出液がバイオスティミュラントとして利用できる可能性も示唆された。水資源が貴重な乾燥地域での節水

栽培も期待される。加圧熱水抽出液には多様な有機酸が含まれていて、pHが低いことは栽培上の難点である。ただし、それらの有機酸がコマツナに乾燥耐性をもたらす可能性もあり、今後の検討課題として挙げられる。

第5章 総括

5.1 緒言

本論文では 2 章にて、株間を変えることで変化する栽植密度が作物の栽培において子実と残渣に対し、どのような影響が出るかを調べ、子実と残渣双方が最大となるような栽培条件を明らかにした。3 章では、2 章にて栽培したヒマワリ茎に加圧熱水処理を施し、茎に含まれる成分の分離に及ぼす影響を 2 つの実験から明らかにした。1 つ目は供試したヒマワリ茎の栽植密度と採取時期を変更する異なる原料での加圧熱水処理実験、2 つ目は加圧熱水処理における処理温度と保持時間を変更した加圧熱水処理条件である。供試した原料と得られた固形分の成分分析から加圧熱水処理前後の物質収支を算出した。4 章では得られた加圧熱水処理液を用いてコマツナの栽培試験を行い、加圧熱水処理液の利用法について検討した。本章では、これまでに得られた結果から、作物残渣に加圧熱水処理を施して得られる固形分と液分、および作物栽培によって得られる子実の収量、3 項目を考慮した際に総和が最大となる栽培条件及び加圧熱水処理条件を論じていく。

5.2 作物の発生特性

2 章より、倒伏や折れのリスクを考慮しても栽植密度が高くなるほどヒマワリ茎と子実の収量が高くなる、という結果が得られた。3 章にて行ったヒマワリ茎の成分分析の結果より、栽植密度の違いによる差は見られなかったことから単位面積当たりの各成分の含量と作物残渣量の積を栽植密度でプロットしたものを図 5-1 に示す。栽植密度が高くなると単位面積当たりの元素含有量は大きくなる傾向が得られた。その中でも、炭素、窒素、リン、カリウムにて強い相関が見られた。今後は栽培面積を拡大し、データをさらに収集することで栽植密度と元素量に関するモデル式の作成が可能になると思われる。また、加圧熱水処理による成分溶出は原料に影響されるので、成分の含量が多くなるよう、高い栽植密度、すなわち株間 20 cm で栽培した残渣を加圧熱水処理に供試するのが望ましいと言える。得られた子実は搾油して油を取り、残渣である搾油かすは有機質の肥料として活用できる。既往研究に

においても播種密度は油糧用品種で5~8株 m²が適正であると述べられており、本研究で設定した最大播種密度は7.1株 m²であることから播種密度は高い方が良い。子実に関しても、栽植密度が高くなる程収量が増加することからも栽植密度を高くして栽培すべきである。倒伏のリスクはあるものの、短稈種の栽培や早期播種など、栽培手法の工夫で対策できると考えられる。

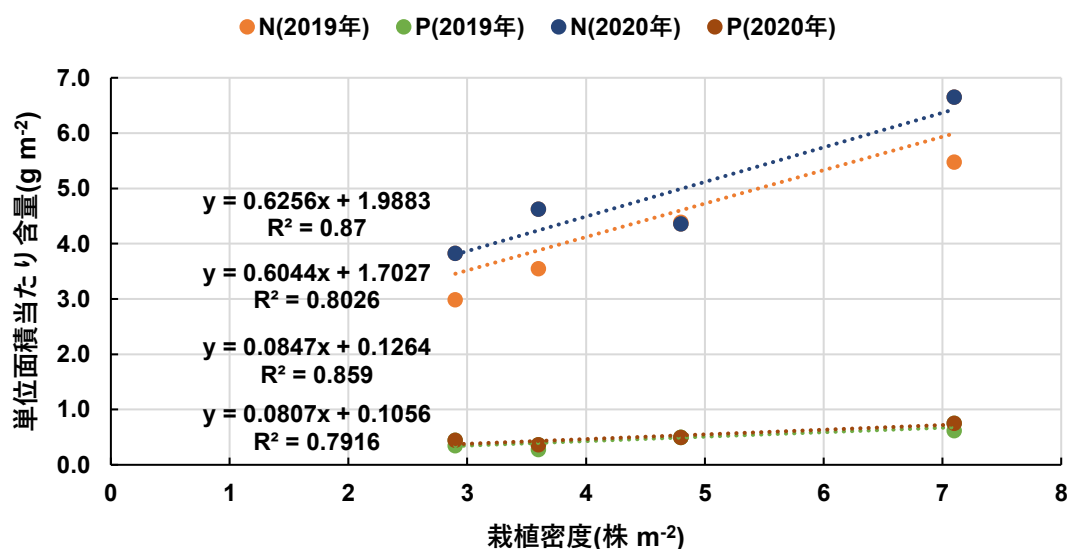
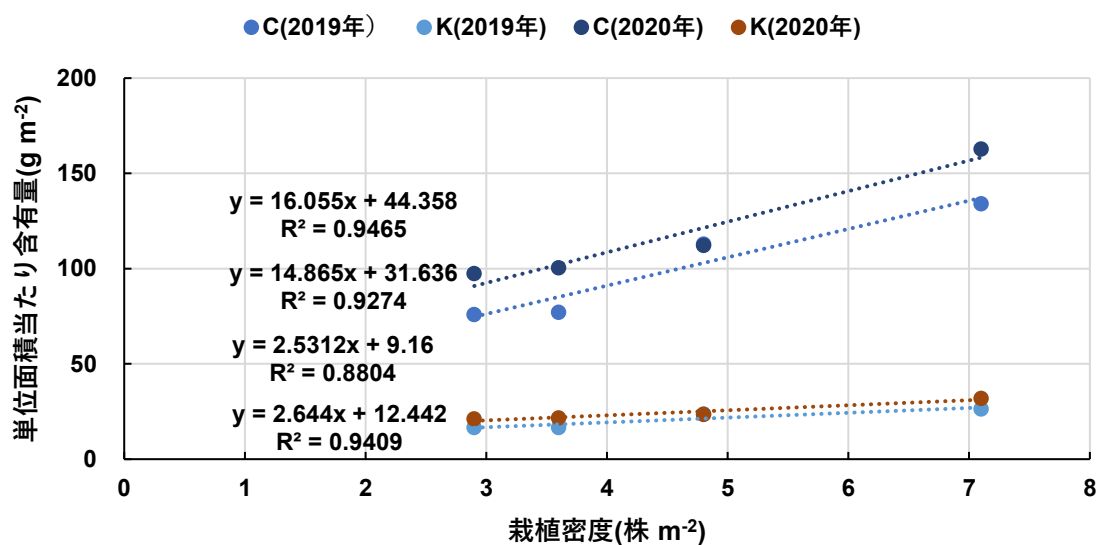


図 5-1 栽植密度の違いによる元素含量

(上図：炭素，カリウム 下図：窒素，リン)

5.3 加圧熱水処理による作物残渣からの養分抽出

原料を変更した加圧熱水処理実験の結果から、加圧熱水処理条件が一定の場合、元素の溶出率はほぼ一定であり、供試する原料の元素含量に影響を受けることが分かった。よって加圧熱水処理を行う際に、できる限り元素含量が多くなるような原料を供試することが望ましい。よって、5-2.項で述べたように単位面積当たりの養分元素含量が多くなることから、株間 20 cm 区のヒマワリ茎を加圧熱水処理に供試するのが望ましいと言える。

処理条件を変更した加圧熱水処理実験の結果から、処理温度を高くすると分解能の増大により、元素の溶出率が高くなることが明らかになった。しかし、液分中により多くの成分を抽出させるために処理温度を高くすると分解能の増大から、固形分の残存率も低下してしまう。固形分は主にセルロースを中心とした炭素成分であり、バイオエタノールなどのエネルギーに転換できるため、液分だけでなく固形分も含めた全体的に考慮する必要がある。保持時間は増加させても溶出率に大きな変化が見られないため、投入するエネルギー量の観点から 20 分が望ましい。以上より、処理温度毎に溶出する養分元素及び固形分に残存する炭素成分を算出し、表 5-2 に示す。この計算は 2019 年度の 20 cm 区個体を供試し、保持時間は 20 分の想定で行っている。単位質量当たりの元素総量は 130°C で最大となり、炭素を除く液分中に含まれる元素総量は 230°C で最大となった。元素総量のみで検討した場合、130°C での処理が得られる物質量が最大になるが、加圧熱水処理によって得られる固形分、すなわち炭素成分は糖化発酵によるエタノールへの転換が主流である。しかし、リグノセルロース系バイオマスに含まれるリグニンやヘミセルロースが発酵を阻害することが知られている。安藤ら(2000)は、リグニン系芳香族成分が 120~140 °C、ヘミセルロースが 140~150 °C、水溶性の酸可溶性のリグニンが 180 °C 程度で分解・抽出されることを報告しており、130 °C 及び 155 °C では発酵が阻害される恐れがある。よって 180 °C 以上の処理で得られる固形分を考慮し、180 °C が元素総量で最大となるため最適の処理温度であると言える。栽植密度毎に加圧熱水処理で回収できる単位面積当たりの養分抽出量を推定した結果、窒素は栽植密度と処理温度が高いほど抽出量が増加し、リンは栽植密度を高くして処理温度

を低くすると抽出量が増加する傾向が得られた。カリウムは処理温度の影響にあまり差はなく、栽植密度が高いほど抽出量が大きくなることが示された。

表 5-2 処理温度の違いによって得られる元素量

	C	N	Ca	Mg	K	P	総量
130°C	26.9	0.51	0.23	0.25	1.77	0.051	29.8
155°C	25.7	0.57	0.25	0.27	1.77	0.047	28.6
180°C	21.3	0.60	0.27	0.28	1.76	0.039	24.2
205°C	20.5	0.68	0.26	0.30	1.87	0.035	23.6
230°C	18.0	0.71	0.31	0.31	1.87	0.026	21.3

(mmol g⁻¹)

5.4 栽培試験を通じた加圧熱水処理液の利用手法

加圧熱水処理にて得られた抽出液をコマツナの栽培に使用した結果、抽出液の多量施用が肥料やけを起こすなど、生育を抑制することが分かった。しかし、その一方で作物の窒素利用効率を向上させる効果が明らかになった。また、抽出液が土壌表面を覆い、クラストを形成することで土壌からの水分蒸発量を減少させる可能性があり、灌水量を減らす節水効果が期待される。本研究では市販の液肥と比較して生育を抑制する結果となってしまったが、灌水の頻度を増やし、根の周辺の水分移動を多くすることで給水を促進することや、バイオスティミュラントとして生育初期のストレスを付与する資材として利用することで品質の向上に用いるなど灌水方法や利用方法に工夫をすることで改善が期待される。

本研究では栽培したヒマワリの収穫残渣に蓄積された成分を加圧熱水処理によって成分分離し、液分に抽出された成分をコマツナの栽培試験に用いる物質循環系を構築している。その中で、窒素に着目した循環フローを作成したところ、本循環系において、土壌から吸収

した窒素のうち約 75%が利用されていることが明らかになった。利用された窒素の約 60%はヒマワリの子実と同化し、茎に蓄積された窒素のうち約 25%は加圧熱水処理の固形残渣や液分としてコマツナに利用されている。これは土壌から吸収した窒素だけを焦点にしているが、コマツナの栽培にて用いる化成肥料に含まれる窒素も考慮した場合、土壌から吸収した量と同等の窒素が循環系に残存することも示された。今後はこの循環系に残存する窒素の再利用方法の検討も行っていく必要がある。

5.5 結論

本研究では作物生産時に生じる作物残渣に対し、加圧熱水処理を施すことで生じる成分分離によって可溶性の成分がどのように抽出されるかを明らかにすることと、得られた固形分と液分を最大限の利用ができる条件を明らかにすることを目的としてきた。本研究の結論として、固形分に含まれる炭素成分の転換が見込め、液分に抽出される養分含量との総和が最大となりうる 180 °C、20 分の加圧熱水処理が作物残渣の利用に対して最適であると判断した。また、成分の溶出は原料の含量に影響されるため、供試する原料には含まれる単位面積当たり植物養分元素が多くなるように、栽植密度を高くして栽培するのが望ましい。作物残渣だけでなく、子実の収量も増加することからも栽植密度を高くした方が良い。得られた子実は搾油して油を取り、残渣となる搾油かすは有機質肥料として利用できる。加圧熱水処理によって得られた抽出液は多量に施用すると生育障害の原因となってしまうが、その一方で窒素利用効率を向上させる効果も確認された。本研究における循環系の窒素フローを作成した結果、土壌から吸収した窒素の約 75%が生産物などに利用されていることが明らかになった。

5.6.今後の課題

加圧熱水処理後の冷却過程でリンなどの液分中に溶出した物質が固形分に付着して析出していることが確認されたため、連続式の実験系での検証が求められる。また、植物養分が

植物体内においてどのような存在形態で同化されているかを明らかにし、加圧熱水処理が与える影響を調べる必要がある。得られた固形分に関して、詳細な成分分析を行い、セルロースなど、エタノール生成に関わる成分の分析を行うことが望ましい。また、抽出液を栽培に用いた際、生育を抑制した原因を明らかにし、改質を行って液肥として利用できるようなことが課題となる。今回行った栽培、加圧熱水処理、溶液栽培の一連の流れで投入されるエネルギーと発生する環境負荷をLCA解析で明らかにして、環境負荷が低減されるような利用モデルを構築することが期待される。

引用文献

- Akiya Naoko, Phillip E. Savage, 2002. Roles of Water for Chemical Reactions in High Temperature Water. *Chemical Reviews*, 102, 2725-2750.
- A. Kruse, E. Dinjus, 2006. Hot compressed water as reaction medium and reactant : 2. Degradation reactions. *The Journal of Supercritical Fluids*, 41(3), 361-379.
- A. K. Pandey, A. K. Singh, A. Kumar, S. K. Singh, 2013. Effect of Drip Irrigation, Spacing and Nitrogen Fertigation on Productivity of Chilli (*Capsicum annuum* L.). *Environmental and Ecology*, 31(1), 139-142.
- Niels P. R. Anten, Raquel Casado - Garcia, and Hisae Nagashima, Effects of mechanical stress and plant density on mechanical characteristics, growth, and lifetime reproduction of tobacco plants. *The American Naturalist*, 166, 650-660.
- 荒木陽一, 2007. 多頻度給液方式による養液土耕栽培の減肥効果の向上. *農業および園芸*, 82(4), 475-481.
- 有原丈二, 2001. 転作全書 3 雑穀. 農山漁村文化協会.
- 朝倉邦造, 2004. 作物学辞典. 朝倉書店.
- Cornu JY, Bakoto R, Bonnard O, Bussière S, Coriou C, Sirguey C, Sterckeman T, Thunot S, Visse MI, Nguyen C. 2016. Cadmium uptake and partitioning during the vegetative growth of sunflower exposed to low Cd²⁺ concentrations in hydroponics. *Plant and Soil*, 404, 263-275.
- 堂本晶子, 原正之, 吉田誠, 藤原俊六郎, 2019. 食品廃棄物水熱分解物を用いたイチゴ用培土の開発. *日本土壤肥料化学雑誌*, 90(2), 153-157.
- FAO STAT, 2019. Production.
- 藤本真司, 井上宏之, 矢野伸一, 坂木剛, 美濃輪智朗, 遠藤貴志, 澤山茂樹, 坂西欣也, 2008. リグノセルロース系バイオマスからの非硫酸バイオエタノール製造法の開発ーメカ

- ノケミカル前処理・酵素糖化法－. *Journal of the Japan Petroleum Institute*, 51 (5), 264- 273.
- 原田久富美, 須永義人, 畠中哲哉, 2001. トウモロコシ (*Zea mays* L.) の養分濃度の品種間差異. *Grassland Science*, 47(3), 289-295.
- 針谷将吾, 石井一英, 佐藤昌宏, 藤山淳史, 古市 徹, 2016. 家庭用木質ペレットストーブにおける稲わら燃料利用に関する研究－稲わら・木質混合ペレットによる燃焼阻害改善－. *土木学会論文集 G (環境)*, 72(6), II_15- II_21.
- 平山孝, 松葉隆幸, 引地力男, 2009. 油糧用ヒマワリの栽培と収益性. *東北農業研究*, 62, 49-50.
- 林康人, 新妻成一, 久保省三, 2003. 灌水施肥(養液土耕)栽培の肥効は高いのか : 施肥量を段階的に変えた場合のトマトの施肥窒素利用率. *日本土壤肥料科学雑誌*, 74(2), 175-182.
- IPCC(気候変動に関する政府間パネル), 2007. 第4次報告書
- J. Werthera, M. Saenger, E.-U. Hartge, T. Ogada, Z. Siagi, 2000. Combustion of agricultural residues. *Progress in Energy and Combustion Science*, 20(1), 1-27.
- 梶田武俊, 三宅桂子, 菅木和美, 高田厚子, 岸田典子, 長谷川千鶴, 1967. 茶の浸出条件とカリウム・ナトリウム・リン溶出量との関係. *日本食品工業学会誌*, 14 (9), 381-385.
- 金子幸司, 1997. 加除式農業技術体系. 作物編 7 基 19.
- Kayser, M. and Isselstein, J, 2005. Potassium cycling and losses in grassland systems: a review. *Grass and Forage Science*, 60(3), 213-224.
- 北野雅治, 日高功太, 圖師一文, 荒木卓哉, 2008. 養液栽培における根への環境ストレスの応用による野菜の高付加価値化. *植物環境工学*, 20(4), 210-218.
- 小林将啓, 2015. ヒマワリ茎部の加圧熱水前処理条件が抽出成分に及ぼす影響. 東京農工大学地域生態システム学科卒業論文.
- 久保田豊, 位田晴久, 東順正, 中原光久, 2001. 養液イオン濃度調製プログラムを使用し

たキュウリの栽培. 植物工場学会誌, 13(2), 104-109.

熊谷聡, 林信行, 坂木 剛, 中田正夫, 柴田昌男, 2004. 加圧熱水2段階昇温による籾殻中のセルロース, ヘミセルロースの成分分離と糖化. 日本エネルギー学会誌, 83 (10), 776-781.

熊谷聡, 山田 則行, 坂木 剛, 林 信行, 2007. 種々のリグノセルロース系バイオマスの水熱分解・糖化特性, および得られた水熱処理残渣の酵素糖化. 日本エネルギー学会誌, 86(9), 712-717.

熊谷聡, 2018. 種々のリグノセルロース系バイオマスの水熱炭化处理による均質化固体燃料生産. 木質炭化学会誌, 15(2), 56-63.

Kumagai S, Ota M, Nakano S, Hayashi N, Sakaki T, Kaida Y , 2008. Elution behavior of metals during hydrothermal decomposition of lignocellulosic biomass. Japan Journal of Food Engineering, 9 (2), 109-113.

Lal R, 2005. World crop residues production and implications of its use as a biofuel. Environment International, 31, 575-584.

Liaw SB, Nazeri G, Yu Y, Wu H, 2016. Differences in leaching characteristics of Mg and Ca from various biomass components of mallee tree in hot-compressed water. Energy Fuels, 30 (10), 7851-7857.

Liu Chaogang, 2005, Partial flow of compressed-hot water through corn storver to enhance hemicelluloses sugar recovery and enzymatic digestibility of cellulose, Bioresource Technology, 96, 1978-1985.

Xin Lu, Kazuchika Yamauchi, Natthanon Phaiboonsilpa, Shiro Saka, 2009. Two-step hydrolysis of Japanese beech as treated by semi-flow hot-compressed water. J Wood Sci, 55, 367-375.

V.Marechal, L.Rigal, 1999. Characterization of by-products of sunflower culture – commercial applications for stalks and heads. Industrial Crops and Products, 10(3), 185-

200.

Maria José Negro, Paloma Manzanares, Ignacio Ballesteros, Jose Miguel Oliva, Araceli Cabañas, Mercedes Ballesteros, 2003. Hydrothermal Pretreatment Conditions to Enhance Ethanol Production from Poplar Biomass. *Biochemistry and Biotechnology*, 105, 87-100.

松丸恒夫, 真行寺孝, 2005. 牛糞炭化物中リン酸, カリの肥料効果: 特にコマツナに対する多量施用の影響. *日本土壌肥料学雑誌*, 76(1), 53-57.

松本朋子, 新田唯, 竹尾圭祐, 保田昌秀, 2014. バイオエタノール生産のための草本系リグノセルロースのアンモニアガス前処理 (LMAA) の走査電子顕微鏡による評価, *宮崎大学工学部紀要*, 43, 21-26.

Matsumura Y, Minowa T, Yamamoto H, 2005. Amount, availability, and potential use of rice straw (agricultural residue) biomass as an energy resource in Japan. *Biomass and Bioenergy*, 29, 347-354.

松崎守夫, 2009. 油糧作物としてのヒマワリについて. *特産種苗*, 5, 16-19.

Minami E, Saka S, 2005. Biomass resources present in Japan—annual quantities grown, unused and wasted. *Biomass and Bioenergy*, 29, 310-320.

宮田尚稔, 池田英男, 小島敬良, 2005. メタン発酵消化液が養液土耕, やしがら耕, ロックウール耕および水耕におけるトマトの生育に及ぼす影響. *日本土壌肥料学雑誌*, 76(5), 619-627.

三浦憲蔵, 1997. 土壌環境分析法. *日本土壌肥料学会*.

水野孝之 (1998): 超臨界水の物性と活用, *Zairyoto-Kankyo* 47; 298-305.

森下敏和, 酒井真次, 1994. 団地におけるヒマワリの特性第2報. *九州農業研究*, 56, 52.

永嶋 良薦, 熊谷 聡, Yuliansyah Ahmad T, 笹木 圭子, 平島 剛, 2010. 回分式および半回分式処理によるバイオマスの水熱分解性比較. *日本エネルギー学会大会講演要旨集*,

(19), 186-187.

中野明正, 上原洋一, 山内章, 2001. 養液土耕法による根圏ストレス軽減がトマトの尻腐れ果発生を抑制する. 日本土壤肥料科学雑誌, 72(3), 385-393.

長友誠, 上之藺茂, 2001. 促成ピーマンの灌水施肥による減肥栽培. 日本土壤肥料科学雑誌, 72(5), 694-697

N.El Bassaam, 2004, エネルギー作物の事典. 恒星社厚生閣

農林水産省, 2016. バイオマス活用推進基本計画.

<https://www.maff.go.jp/j/shokusan/biomass/attach/pdf/index-4.pdf> (最終閲覧日 2021/11/30)

農林水産省, 2021. バイオマスの活用をめぐる 状況.

<https://www.maff.go.jp/j/shokusan/biomass/attach/pdf/index-121.pdf> (最終閲覧日 2021/11/30)

小川和夫, 竹内豊, 片山雅弘, 1988. 北海道の耕草地におけるバイオマス生産量及び作物による無機成分吸収量. 北海道農業試験場研究報告, 149, 57-91.

小倉舞, バイブーンシルバナッタノン, 山内一慶, 坂志朗, 2013. 半流通型 2 段階加圧熱水処理による稲わらの分解挙動. 日本エネルギー学会誌, 92(4), 319-326.

大橋優二, 佐藤龍夫, 2007. 周期の作物残渣のすき込みが畑地からの亜酸化窒素(N₂O)発生に及ぼす影響. 北海道立農業試験場集報, 91, 51-58.

大池新二郎, 七夕小百合, 鈴木千夏, 小沢 聖, 藤原俊六郎, 2017. 青梗菜栽培による水熱分解液肥の作物生育に及ぼす効果と阻害の特性評. Eco-Engineering, 29 (1), 1-10.

Natthanon Phaiboonsilpa, Mai Ogura, Kazuchika Yamauchi, Harifara

Rabemanolontsoa, Shiro Saka, 2013. Two-step hydrolysis of rice (*Oryza sativa*) husk as treated by semi-flow hot-compressed water. Industrial Crops and Products, 49, 484-491.

坂井勝, 今井翔馬, 2020. 蒸発法による土壌クラスト層の不飽和水分移動特性の推定. 土

壤物理学大会講演要旨集. SP62. 51~52.

坂木剛, 柴田昌男, 三木敏晴, 安田誠二, 廣末英晴, 林信行, 1998. セルロース系バイオマスの加圧熱水による糖化およびアルコール発酵. 日本エネルギー学会誌, 77(3), 241-247.

阪本龍司, 尾崎嘉彦, 2014. 食品系未利用バイオマスの高度利用化の現状と可能性. 化学と生物, 52 (1), 33-39.

Saqib Sohail Toora, Lasse Rosendahl, Andreas Rudolf, 2011. Hydrothermal liquefaction of biomass: A review of subcritical water technologies. Energy, 36(5), 2328-2342.

佐藤拓実, 高橋朋子, 横澤将美, 2009. 土壌養分が飼料作物の成分組成に及ぼす影響. 群馬県畜産試験場研究報告, 16, 115-122.

Siti Machmudah, Wahyudiono, Hideki Kanda, Mitsuru Sasaki, Motonobu Goto, 2015. Hot Compressed Water Extraction of Lignin by Using a Flow-Through Reactor. Engineering Journal, 19(4), 25-44.

Song B, Buendia-Kandi F, Yu Y, Dufour A, Wu H, 2019. Importance of lignin removal in enhancing biomass hydrolysis in hot compressed water. Bioresource Technology, 288, 121522.

鈴木 千夏, 藤原 俊六郎, 朽本 信彦, 玉置 雅彦, 2016. 水熱分解反応を利用した農作物非食用部分の有機液肥化: 原料の特性が処理産物に及ぼす影響. 日本土壌肥料学雑誌, 87 (3), 177-183.

寶川拓生, 藪田伸, 渡邊健太, 川満芳信, 2018. 沖縄地域における播種期の違いがヒマワリ6品種の生長および収量特性に与える影響. 日本作物學會紀事, 87(3), 223-232.

建部雅子, 岡崎圭毅, 鍵下恵太, 唐澤敏彦, 2006. ホウレンソウの硝酸イオン含有率低減に対する養液土耕栽培の効果. 日本土壌肥料学雑誌, 77(1), 9-16.

瀧嶋康夫, 塩島光洲, 有田裕, 1960. 水田土壌中の有機酸代謝と水稻生育阻害性に関する

- 研究(第2報)：有機酸の根生長並に養分吸収阻害．日本土壤肥料化学雑誌，
31(SpecialSpecial)，441-446.
- 竹内妙子，宇田川雄二，1994.養液栽培におけるトマト青枯病の発生生態と防除．千葉県農業試験場研究報告，35，89-99.
- 東城清秀，帖佐直，須永薫子，2018．ヒマワリ生育過程における炭素及び窒素の蓄積特性と作物残渣の利用．農作業研究，53(2)，87-94.
- 土屋一成，1990．野菜および畑作物の要素過剰の実態：農薬資材多投に伴う作物栄養学的諸問題1．日本土壤肥料学雑誌，61(1)，98-103.
- 有水賢吾，澁澤栄，岩崎泰永，2018．高電気伝導度養液土耕における灌水頻度のコマツナへの影響．植物環境工学，30(1)，28-35.
- Vjekoslav TANASKOVIK, Ordan CUKALIEV, Davor ROMIĆ, Gabrijel ONDRAŠEK.
2011. The Influence of Drip Fertigation on Water Use Efficiency in Tomato Crop
Production. *Agriculturae Conspectus Scientificus*, 76(1), 57-63
- 吉田千恵，岩崎泰永，牧野周，池田英男，2011.養液土耕における灌水管の使い方がトマトの生育および収量に及ぼす影響．園芸学研究，10(3)，325-331.
- 吉田俊幸，梶山努，1994．短稈ヒマワリの畦畔，栽植密度および窒素施肥量．平成6年度普及奨励並びに指導参考事項，91.
- https://www.hro.or.jp/list/agricultural/center/kenkyuseika/seikajoho/h06s_joho/h0600010.htm (最終閲覧日：2021/11/30)
- Guoce Yu, Shinichi Yano, Hiroyuki Inoue, Seiichi Inoue, Takashi Endo, Shigeki Sawayama, 2010. Pretreatment of Rice Straw by a Hot-Compressed Water Process for Enzymatic Hydrolysis. *Biochemistry and Biotechnology*, 160, 539-551

Summary

The purpose of this study was to investigate the extraction of plant nutrients from crop residues by hot-compressed water treatment and their effective utilization in sunflower, which is produced as an oilseed crop and cultivated for various other purposes. Since crop residues contain high quality cellulose and relatively high concentrations of plant nutrients, and hot-compressed water treatment can selectively separate the substances depending on the treatment conditions, the treatment conditions that maximize the total amount of both solid fraction and liquid fraction were investigated. The characteristics of the plant nutrients separated by hot-compressed water treatment were clarified, and the effective conditions for their utilization were discussed through a test of soil cultivation of Komatsuna using LED lighting in order to construct a method for the beneficial recycling of these plant nutrients.

In Chapter 1, the background and purpose of the study are described. Crop residues, a kind of unused biomass, have been attracting attention as an energy resource with low environmental impact because of its carbon-neutral characteristics. However, crop residues are difficult to utilize because of their low density, high ash content, and low calorific value. Sunflower, which has a large amount of crop residue, is cultivated worldwide because of its resistance to arid climate and relatively short growing period. Because of its excellent nutrient absorption capacity, the plant nutrients accumulated in the crop residues can be recovered and reused. Hot-compressed water treatment adopted in this study is a biomass decomposition technology that maintains the liquid state of water under high temperature and pressure conditions, and utilizes the increased ionic product. Hot-compressed water treatment, which has been studied as a raw material processing technology for bioethanol, can extract cellulose from lignocellulosic biomass

and separate lignin, a fermentation inhibitor. This chapter describes the application of hot-compressed water treatment focusing on the separation and extraction of plant nutrients accumulated in crop residues.

In Chapter 2, the cultivation of sunflower and the characteristics of crop residues generation were described.

To discuss the effect of plant density on the amount and traits of crop residues, sunflower was cultivated by different plant densities, and the relationship between seed yields and crop residues amount was examined while observing the changes in the shape of the stems that become crop residues. The results showed that the higher the plant density, the longer the stem length and the smaller the stem diameter. Crop residues tended to increase with increasing plant density, and seed yields are also similar. It was also shown that the risk of stems snap off and lodging increased with increasing plant density.

In Chapter 3, the effect of the treatment conditions of hot-compressed water treatment on the extraction of plant nutrients from sunflower stems was described. In Experiment 1, sunflower stems were collected at different plant densities and at flowering, ripening, and harvesting periods, and the characteristics of the components separated from stems with different traits were investigated. In Experiment 2, the effects of different hot-compressed water treatment conditions on the separation and extraction of plant nutrients were investigated by applying hot-compressed water treatment with different temperatures conditions and retention times. The results showed that the elution rate of each plant nutrients was different for each element and depended on the content of the raw material. However, the total amount of plant nutrients was closely related to the C/N ratio of the material, and the total amount of plant nutrients eluted into the liquid fractions could be estimated from the C/N ratio of the material. The elution rate of plant nutrients other than phosphorus increased as the

treatment temperature of hot-compressed water treatment increased, but the solids residual rate, mainly cellulose, decreased. The temperature range of about 180 °C, where cellulose decomposition does not proceed and fermentation inhibitors can be removed, was found to be the treatment temperature at which both solid fractions and plant nutrients obtained were maximized.

In Chapter 4, the utilization of plant nutrients obtained by hot-compressed water treatment was investigated in soil cultivation of Komatsuna cultivated under LED lighting. The results showed that the application of the extract liquid affected both the amount of irrigation and the growth of Komatsuna, and the growth of Komatsuna was suppressed as the amount of the extract liquid increased. It was also shown that the extracts liquid affected the growth of Komatsuna depending on the crop residues on the time of collection. The application of the extract liquid inhibited the growth of Komatsuna, but increased the relative amount of carbon fixation, resulting in higher nitrogen use efficiency. Excess potassium was thought to be a factor in the growth disturbance. From the nitrogen flow from the use of the extract liquid, it was found that the use of sunflower stems during the harvesting season was suitable for the cyclic use of plant nutrients, based on the total amount of nitrogen absorption and utilization from the soil, and the total amount of products such as seeds.

In Chapter 5, the study is summarized and the remaining issues are discussed. In future studies, the amount of crop residues and their components showed in this study should be used in a recycling model to increase the options for crop residue utilization. It is expected that the energy input and the environmental load generated by the pressurized hydrothermal treatment will be clarified by LCA analysis, and a utilization model will be developed to reduce the environmental load.

謝辞

本論文をまとめるにあたり，東京農工大学大学院農学研究院 東城清秀教授には主指導教員として終始懇切かつ丁寧なご指導，ご協力を賜りました。この場をもってお礼申し上げます。

また，本研究を進めるにあたり，適切なるご指導をいただきました東京農工大学大学院農学研究院 帖佐直准教授，茨城大学農学部 小松崎将一教授両氏には副指導教員および学位論文審査員としてご指導，ご協力に対し，心より敬意と感謝を申し上げます。

さらに，学位論文審査員として東京農工大学農学研究院 酒井憲司教授，宇都宮大学農学部 池口厚男教授には，貴重なご助言と論文のご校閲を賜り，深くお礼申し上げます。

そしてヒマワリの栽培に関して，圃場の管理をしてくださった東京農工大学農学部附属 広域都市圏フィールドサイエンスセンターの坂本真一様，ヒマワリ栽培の作業を手伝って下さった中村泰彰氏には心からの感謝を申し上げます。

最後に，ご協力，ご助言並びに励ましを頂きましたエネルギー利用学研究室および生産環境制御学研究室の皆様にお礼申し上げます。