



**BUDAPESTI MŰSZAKI ÉS GAZDASÁGTUDOMÁNYI EGYETEM
VEGYÉSZMÉRNÖKI ÉS BIOMÉRNÖKI KAR
OLÁH GYÖRGY DOKTORI ISKOLA**

**KUKORICAROSTOT HASZNOSÍTÓ BIOFINOMÍTÓ
FOLYAMATOK VIZSGÁLATA**

Tézisfüzet

Fehér Csaba

Témavezető: Dr. Barta Zsolt
Adjunktus

Alkalmazott Biotechnológia és Élelmiszertudományi Tanszék

2015

BEVEZETÉS ÉS CÉLOK

A lignocellulóz hulladékok és melléktermékek rendkívüli jelentőséggel bírnak, mint olcsó, széles körben elérhető, megújuló szénforrások, melyekből a fosszilis nyersanyagok kiváltására üzemanyagok és értékes kémiai komponensek állíthatók elő. A biomassza nyersanyagok fenntartható módon történő, teljes körű feldolgozásának igénye hívta életre a biofinomítás fogalmát, mely fogalmat az olajfinomítók analógiájára alkottak meg. Biofinomítás során nyersanyagként biomasszát használunk fel, melyet különböző, integrált feldolgozási lépéseken keresztül számos értéknövelt terméké és energiává alakítunk. Biofinomítás során a biomassza minden komponense felhasználásra kerül. Különös jelentőséggel bír azonban a lignocellulóz nyersanyagok szénhidrát tartalma. A szénhidrátok hidrolízisével nyert monoszacharidokból számos értéknövelt komponens állítható elő mind kémiai szintézis, mind pedig fermentációs eljárások segítségével.

A kukoricarost a kukorica nedves őrléses feldolgozásából származó technológiai melléktermék, mely a kukoricaszem száraz tömegének 8–12%-át teszi ki. Jelenleg kis hozzáadott értékű állati takarmány alkotójaként értékesítik, vagy energianyeres céljából égetik. Nagy szénhidrát tartalma azonban alkalmas alapanyaggá teszi értéknövelt termékek biofinomításban való előállítására.

Doktori dolgozatom célja a kukoricarost biofinomító szemléletben történő, értéknövelt feldolgozásának vizsgálata volt. Munkám során bioetanol, biometán, xilit és arabinóz előállításának lehetőségeit vizsgáltam, melyhez folyamatmodellezést és laboratóriumi kísérleteket végeztem. Elkészítettem egy kukoricarost alapú, bioetanol, biometánt és xilitet előállító biofinomító üzem irodalmi adatokra épülő folyamatmodelljét, mely lehetővé tette a feltételezett biofinomító különböző konfigurációinak szimulációját és technológiai elemzését. Laboratóriumi kísérleteket végeztem, melyek során különböző biotechnológiai módszereket vizsgáltam kukoricarostból történő xilit és arabinóz előállításának céljából. A dolgozat részletes céljai a következők:

- Bioetanol, biometánt, xilitet, elektromos áramot és hőt előállító, kukoricarost alapú biofinomító folyamat konfigurációinak összehasonlítása energiahatékonyság és termék anyagáramok szempontjából.
- Arabinóz szelektív oldatba vitelének vizsgálata darált, keményítőmentesített kukoricarostból és ammóniás áztatással előkezelt, darált, keményítőmentesített kukoricarostból kereskedelmi enzimek alkalmazásával.
- Monoszacharidok és oligoszacharidok keletkezésének vizsgálata kukoricaroston és darált, keményítőmentesített kukoricaroston végzett enyhe kénsavas kezelések hatására, és az arabinóz szelektív kinyerésének szempontjából legkedvezőbb körülmények meghatározása.
- Modell tápoldaton és kukoricarost savas kezeléséből származó hemicellulóz hidrolizátumon történő arabinóz biotisztítás és xilit fermentáció vizsgálata.

IRODALMI HÁTTÉR

A biofinomítás egyik kulcs lépése a biomassza frakcionálása, mely lehetővé teszi minden komponens hatékony felhasználását. Biofinomítás során olyan integrált rendszert kell felépíteni, melyben az egyes technológiai lépések melléktermékei egy másik folyamat kiindulási anyagaként szolgálnak. Ily módon a biomassza minden komponense felhasználásra kerül, és nem keletkezik hulladék. A biofinomító folyamatok hőintegrációjának megvalósítása szintén fontos feladat, hisz általa az üzem energiaigénye jelentősen csökkenthető. Biofinomítás során arra kell törekedni, hogy az üzem hő- és villamosenergia igény szempontjából önellátó legyen.

Egy biofinomító folyamat számos technológiai lépést foglal magába úgy, mint a nyersanyag előkezelése, enzimes hidrolízise, fermentáció és tisztítási műveletek. Ezek egymásra gyakorolt hatásának pontos és részletes megértése elengedhetetlen ahhoz, hogy olyan biofinomító folyamatot tudjunk tervezni, mely gazdaságos és környezeti szempontból fenntartható módon képes üzemelni. Ennek megoldására kínál lehetőséget a számítógépes folyamat szimuláció, melynek segítségével hatékonyan vizsgálhatunk összetett rendszereket is. Folyamat szimulációs programok segítségével elvégezhető az egyes technológiai lépések kölcsönhatásának vizsgálata, különböző konfigurációk összehasonlítása, az energetikailag legkedvezőbb körülmények meghatározása, a folyamat szűk keresztmetszeteinek azonosítása és mindezek által a biofinomító technológia további fejlesztési irányainak kijelölése.

Az utóbbi évtizedek kutatásainak jelentős része az energiahordozókat előállító, lignocellulóz alapú biofinomítók fejlesztésre irányult. Ez esetben a fő cél a lignocellulóz nyersanyagban található cellulóz frakció feltárása és hidrolízise, melynek révén glükóz szabadul fel. A glükóz oldatot aztán fermentációs úton etanollá alakítják, melyet desztillációval nyernek ki. A megmaradó, főként lignint tartalmazó maradékot legtöbb esetben hő- és villamosenergia előállítás céljából elégetik. Az egyéb, szerves anyagban gazdag mellékáramok pedig (cellulóz hidrolízis maradék, desztillációs fenéktermék) anaerob erjesztés révén biogáz termelésre fordíthatóak.

Ezzel ellentétben, kevesebb figyelem irányult a lignocellulóz nyersanyagok hemicellulóz tartalmának hasznosítására. A gazdaságilag fontos gabonafélék, pászitfűfélék és energianövények jelentős hemicellulóz tartalommal bírnak, száraz tömegüknek hozzávetőleg 35%-a hemicellulóz. Ezen növények hemicellulóz tartalmát jellemzően arabinoxilán alkotja, melyből értékes D-xilóz és L-arabinóz állítható elő. Habár a D-xilóz és L-arabinóz ipari felhasználása jelenleg korlátozott, a jövőben fontos kiindulási anyagai lehetnek platform vegyületek és értéknövelt termékek előállításának. Szintén kevesebb figyelem irányult a pentóz specifikus mikrobiológiai átalakítások fejlesztésére, holott a hemicellulóz hatékony felhasználása és továbbalakítása nélkülözhetetlen a lignocellulóz biofinomítás gazdaságos megvalósításához. A hemicellulózból kinyerhető cukrokból, fermentációs úton számos értéknövelt piaci termék állítható elő, mint például xilit, etanol, 2,3-butándiol és tejsav.

A hemicellulóz elágazó szerkezetű heteropolimer, mely összetételét tekintve, legnagyobb részt pentózokból (xilóz, arabinóz), hexózokból (glükóz, mannóz, galaktóz) és cukorsavakból épül fel. A hemicellulóz hidrogén hidakkal kapcsolódik a cellulózhoz, míg a ligninnel kovalens kötések is kialakít. A hemicellulóz szerkezete és összetétele nagymértékben függ a növény típusától. Az egyik legösszetettebb hemicellulóz struktúra a kukoricarostban található.

A kukoricarost hemicellulóz frakciójának vázát egy homopolimer alkotja, melyben β -D-(1,4)-kötésekkel xilopiranoz egységek kapcsolódnak össze. Ehhez a xilán alapláncához különböző méretű oldalláncok kapcsolódnak, melyek a hemicellulóz egyéb komponenseit tartalmazzák.

Az α -L-arabinofuranozid egységek O-2 és O-3 pozícióban, az α -D-glükuronsav molekulák és azok metilezett származékai pedig O-2 pozícióban kapcsolódnak az alapláncához. Ezen felül megtalálhatóak az elágazásokban acetyl csoportok, galaktóz egységek, valamint ferulasav és p-kumársav is. A ferulasav és a p-kumársav gyakran dimer formában van jelen és észter kötéssel kapcsolódik az arabinóz alegységekhez O-5 pozícióban. A kukoricarost hemicellulóz átlagban 48–54% xilózt, 33–35% arabinózt, 5–11% galaktózt és 3–6% glükuronsavat tartalmaz száraz tömegére vonatkoztatva. Jelentős xilóz és arabinóz tartalma révén a kukoricarost alkalmas alapanyag lehet xilit és arabinóz ipari előállításának.

A xilit ipari előállítása napjainkban tiszta D-xilóz oldat katalitikus hidrogénezésével zajlik, melyet nyírfafa, vagy egyéb xilózban gazdag nyersanyag savas kezelésével és tisztításával állítanak elő. Alternatív módszerként egyre nagyobb érdeklődésre tesz szert a xilóz mikrobiológiai redukciója. Számos kutatás folyik a lignocellulóz melléktermékek (pl.: rizs szalma, kukoricacsutka, cukornád bagasz, kukoricaszár, árpa héj, kukoricarost) hemicellulóz tartalmából történő fermentációs xilit előállítás témájában.

Az L-arabinóz ipari előállítása napjainkban gumiarábikumból történik. A gumiarábikum savas kezelését követően összetett és drága tisztítási lépésekre van szükség a tiszta, kristályos arabinóz előállításához. A gumiarábikum korlátozott mennyisége és egyre növekvő felhasználása az arabinóz piaci árának folyamatos emelkedését vonja maga után. Ebből adódóan az arabinóz alternatív előállításának megvalósítását számos kutatás célozza meg napjainkban. Az alapanyag egyre növekvő árának problémáját a lignocellulóz illetve pektin tartalmú nyersanyagok feldolgozása jelentheti. Ilyen anyagok a különböző mezőgazdasági és agro-ipari melléktermékek, mint például a préselt cukorrépaszelet, a búzaborja és a kukorica maghéj. A lignocellulóz melléktermékekből történő arabinóz előállítás ígéretes módszerei a hígavas kezelés, az enzimes hidrolízis és a biotisztítás.

Megfelelően enyhe körülmények között végzett hígavas kezelése során a hemicellulózban található arabinóz tartalom jelentős része oldatba vihető a hemicellulóz frakció teljes hidrolízise nélkül. Ennek ellenére a szakirodalomban kevés információ érhető el az arabinóz hígavas kinyerésével kapcsolatban, kiváltképp a hidrolízis során megjelenő egyéb termékek tekintetében.

A hemicellulóz enzimes hidrolízisének előnye a nagyfokú szelektivitás, melynek következtében a hidrolizátum arabinóz tisztasága a monomer cukrok tekintetében nagy. A témában végzett kutatások azonban javarészt oldható, tisztított hemicellulóz szubsztrátot alkalmaztak, a hidrolízist pedig tisztított enzimekkel végezték (arabinázok, arabinofuranozidázok), melyek előállítása költséges és összetett feladat. Ezen túlmenően a kristályos arabinóz kinyerését nagyban nehezíti, hogy a szubsztrátként használt heteroxilán szintén oldott formában van jelen.

Biotisztítás során arabinózban gazdag hemicellulóz hidrolizátumot használnak fel, melyből megfelelő mikroorganizmusok segítségével az arabinóz mellett jelenlévő, egyéb cukrokat eltávolítják. A biotisztítás olcsó és egyszerű módszer, mely az ipari megvalósíthatóság szempontjából kiemelten fontos. Hátránya, hogy az egyéb cukrok értéknövelt termékekkel való átalakítására nincs lehetőség, emellett a melléktermékként keletkező sejtömeg hasznosítása is megoldandó feladat.

ANYAGOK ÉS MÓDSZEREK

Szimulációs szoftver

A kukoricarost alapú biofinomító folyamat anyag- és energiamérlegeinek megoldását Aspen Plus v7.3 (Aspen Tech Inc, Cambridge, MA, USA) folyamattervező szoftver segítségével végeztem. A biofinomítóban megjelenő kémiai komponensek jellemzői a program beépített adatbázisaiból és a National Renewable Energy Laboratory (NREL, Golden, CO) biomassza adatbázisából származnak.

Nyersanyag, enzimek, mikroorganizmusok

A nyersanyagként felhasznált kukoricarostot a Hungrana Keményítő- és Izocukorgyártó és Forgalmazó Kft. (Szabadegyháza, Magyarország) bocsátotta rendelkezésemre. Xylanase NS22083, Enzyme complex NS22119, Hemicellulase NS22002 és Cellic CTec2 enzimek a Novozymes A/S cég (Bagsvaerd, Dánia) termékei. *Candida boidinii* NCAIM Y.01308, *Candida parapsilosis* NCAIM Y.01011, *Candida guilliermondii* NCAIM Y.01050, *Hansenula anomala* Y.01499 élesztők a Mezőgazdasági és Ipari Mikroorganizmusok Nemzeti Gyűjteményéből (Budapest, Magyarország) származnak.

Enzimaktivitás meghatározás, enzimes hidrolízis

Xilanáz aktivitás meghatározása vízdoldható nyírfa xilán szubsztráton, 50°C-on, 5 perc reakcióidővel zajlott. A reakcióelegy redukáló cukor tartalmát 3,5-dinitroszalicilsavas reagens segítségével határoztam meg. Arabinoxilán-arabinofuranohidroláz aktivitás meghatározása vízben oldhatatlan búza arabinoxilán szubsztráton, 50°C-on, 1 órás reakcióidővel történt. A felülúszó arabinóz tartalmát nagyteljesítményű folyadékkromatográfia segítségével határoztam meg. A darált, keményítőmentes kukoricarost valamint a darált, keményítőmentes, ammóniás áztatással előkezelt kukoricarost enzimes hidrolízisét Hemicellulase NS22002 enzimekkel (0,02 g enzimek/g szárazanyag) 3% (m/m) szárazanyag tartalom mellett 4 napon át végzettem rázó inkubátorban (175 rpm) 50°C-on.

Kénsavas kezelés

A kukoricarost és a darált, keményítőmentes kukoricarost kénsavas kezeléseire 3% (m/m) és 10% (m/m) szárazanyag tartalom mellett kevertetés nélkül vízfürdőben (90°C) vagy autoklávban (120°C, 140°C) zajlottak. A kezeléseket különböző reakcióidő (5–75 perc) és a kénsav koncentráció (0,25–5% (m/m)) alkalmazásával kísérleti tervek alapján végeztem.

Biotisztítás

Modell tápoldatból (10 g/l élesztő kivonat, 15 g/l KH_2PO_4 , 1 g/l $\text{MgSO}_4 \times 7\text{H}_2\text{O}$, 3 g/l $(\text{NH}_4)_2\text{HPO}_4$, 15 g/l arabinóz, 7,5 g/l xilóz és 7,5 g/l galaktóz), vagy a kukoricarost savas kezeléséből származó glükózban és arabinózban gazdag folyadék frakcióból pH állítást követően (pH 6) 20 ml-t töltöttem 100 ml-es Erlenmeyer lombikba. A biotisztítási kísérletek 30°C-on rázó inkubátorban (220 rpm) 4 napig zajlottak.

Xilit fermentáció

Xilit fermentációt modell tápoldaton (10 g/l élesztő kivonat, 15 g/l KH_2PO_4 , 1 g/l $\text{MgSO}_4 \times 7\text{H}_2\text{O}$, 3 g/l $(\text{NH}_4)_2\text{HPO}_4$, 30 g/l vagy 70 g/l xilóz) és a kukoricarostból savas kezeléséből származó xilózban gazdag folyadék frakción végeztem. Utóbbit aktív szenes kezelés és pH állítás (pH 6) után használtam fel. A fermentációk 30°C-on rázatott lombikban (100 ml Erlenmeyer) 4 napig folytak különböző reakció térfogat (25–65 ml) és rázatási sebesség (125, 220 rpm) mellett.

EREDMÉNYEK

Kukoricarost alapú biofinomító technológiai modellezése

Kukoricarost alapú biofinomító két alapesetét modelleztem (alapeset A és B), melyeken belül különböző konfigurációkat hasonlítottam össze energiahatékonyság vagy termékáramok tekintetében. Az A alapesetben bioetanol, biometán és néhány esetben távhő előállítására került sor. Azok az esetek, melyekben a cellulóz hidrolízis maradéka közvetlen égetésre került, nagyobb energiahatékonysággal bírtak, mint a hidrolízis maradékát anaerob erjesztésben hasznosító esetek. A szennyvíz iszap égetésének megvalósítása jelentősen növelte az energiahatékonyságot. Az égetés során keletkező füstgáz kondenzációja segítségével megvalósított távhő előállítás szintén jelentősen növelte az esetek energiahatékonyságát. A legnagyobb energiahatékonysággal (73%) bíró esetben a cellulóz enzimes hidrolízis maradékának égetése, iszap égetés és távhő előállítás történt. A bioetanolt biometánt és távhőt előállító biofinomító alapeset egyes lépéseinek energiaigényét vizsgálva, a legtöbb energiát felhasználó lépéseknek a kukoricarost frakcionálás és az etanol desztilláció adódtak. A biofinomító B alapesete bioetanol, biometán és kristályos xilit előállítását tette lehetővé. A különböző esetek összehasonlítása termék anyagáramok alapján történt, hisz a xilit nem energiahordozóként kerül értékesítésre. A biofinomító üzem teljes energiaigényének fedezése érdekében a hemicellulóz frakciót tartalmazó anyagáramot a xilit előállítás és a biogáz termelés útvonala között meg kell osztani. A hemicellulóz frakció felét xilit fermentációra, felét pedig anaerob erjesztésre vezetve a biofinomító üzem, 95000 tonna száraz kukoricarostból 4208 tonna xilitet, 5599 tonna biometánt és 15089 tonna etanolt képes előállítani évente. Az előállított xilit és biometán mennyisége a hemicellulóz frakció megosztásának arányával változtatható.

Kukoricarost enzimes hidrolízise

Meghatároztam négy, kereskedelmi enzimek készítmény (Xylanase NS22083, Enzyme complex NS22119, Hemicellulase NS22002 és Cellic CTec2) xilanáz és arabinoxilán-arabinofuranohidroláz aktivitásának profilját pH 3 és 10 közötti tartományban. Hemicellulase NS22002 enzimek készítmény arabinoxilán-arabinofuranohidroláz aktivitása nagyobb, míg xilanáz aktivitása kisebbnek adódott a többi vizsgált enzimek készítményénél. Hemicellulase NS22002 enzimek készítmény arabinoxilán-arabinofuranohidroláz aktivitásának pH optimumán (pH 4) kis xilanáz aktivitás volt tapasztalható. Ezen eredmények alapján a Hemicellulase NS22002 enzimek készítményt választottam a keményítőmentesített, darált kukoricarostból történő, szelektív arabinóz kinyerés vizsgálatára. A kukoricarost enzimes hidrolízise előtti ammóniás áztatás megfelelő előkezelésnek bizonyult a hemicellulóz frakció hozzáférhetőségének javítására. Négyes és hatos kémhatású környezetben végzett enzimes hidrolízis során az arabinóz tartalom jelentős hányada monomerként jelent meg a felülúszóban, azonban a hemicellulóz frakció nagy része is oldatba került főként oligomer cukrok formájában. Ammóniás áztatással előkezelt, darált, keményítőmentesített kukoricarost Hemicellulase NS22002 készítménnyel pH 6-on végzett hidrolízise során 2 nap alatt a hemicellulóz frakció több, mint 80%-a, míg a cellulóz frakció 13%-a került oldott formába. Ezek alapján az enzimes hidrolízis alkalmas a hemicellulóz frakció oldatba vitelére, szelektív arabinóz kinyerés tekintetében viszont nem megfelelő.

Kukoricarost kénsavas kezelése

Az arabinóz tartalom szelektív kinyerése céljából savas kezeléseket végeztem kukoricaroston és darált, keményítőmentesített kukoricaroston különböző hőmérsékleten a sav koncentrációt és a kezelési időt kísérleti terv alapján változtatva. A 120°C-on és 140°C-on végzett savas kezelése nagy arabinóz hozamokat eredményeztek, azonban a hemicellulózban található, egyéb cukrok jelentős részének oldatba kerülésével a hidrolízis szelektivitása nem volt kielégítő. Darált, keményítőmentesített kukoricarostot 90°C-on, 5% (m/m) kénsav

koncentráció mellett 5 percig kezelve a felülúszóban 82,3% arabinóz hozam érhető el jó szelektivitással, így egy arabinózban gazdag folyadék frakció állítható elő. Darálatlan kukoricarost 90°C-os, savas kezelésének vizsgálata során a keményítőmentesítés lépését elhagytam. A kísérleti terv során kapott eredményeket D-függvény (desirability function) optimalás módszerével elemeztem, és ennek segítségével az arabinóz hozam és a hidrolízis szelektivitása szempontjából legjobb kísérleti körülményt meghatároztam. Kukoricarostot 1,1% (m/m) kénsavval, 51 percig kezelve (első hidrolízis) 75,9% arabinóz hozamot értem el, a keményítő tartalom pedig közel teljes mértékben oldatba került. Az így nyert hidrolizátum főként oligomer cukrokat tartalmazott. Az oligomerek hidrolízisét (120°C, 1,1% (m/m) kénsav, 30 perc) követően egy glükózban és arabinózban gazdag folyadék frakciót kaptam. Az első hidrolízisből származó szilárd maradékból második savas hidrolízis (120°C, 1,1% (m/m) kénsav, 30 perc, 10% (m/m) szárazanyag) hatására xilózban gazdag folyadék frakciót és cellulózban gazdag szilárd maradékot állítottam elő. A két savas kezelést magába foglaló eljárást a kukoricarost savas frakcionálásaként jelölöm a továbbiakban.

Arabinóz biotisztítás és xilit fermentáció modell tápoldaton

Négy élesztő törzs (*C. boidinii*, *C. guilliermondii*, *C. parapsilosis* és *H. anomala*) vizsgálatát végeztem el arabinóz biotisztítás szempontjából xilózt, arabinózt és galaktózt tartalmazó modell szénforráson aerob fermentáció során. *C. guilliermondii*, *C. parapsilosis* és *H. anomala* élesztők mindhárom szénforrást egyszerre használták fel, ezzel szemben a *C. boidinii* az arabinózt nem metabolizálta. *C. boidinii*-vel végzett aerob biotisztítás során a modell tápoldatban 97%-os arabinóz tisztaságot értem el.

Xilóz szénforrást tartalmazó modell tápoldaton, *C. boidinii*-vel végzett xilit fermentációs kísérletekben a maximális oxigénátadási sebesség (OTR), a kiindulás xilóz koncentráció, a kiindulási sejt koncentráció és kofaktor adagolás (metanol) hatását vizsgáltam az elérhető xilit hozam és produktivitás szempontjából. Öt g/l kiindulási sejt koncentráció, 30 g/l kiindulás xilóz koncentráció és 2,8 mmol/(l×h) OTR alkalmazásával a maximális xilit hozam – az elméleti hozam százalékában kifejezve – 58%-nak adódott. A xilit térfogati produktivitás 0,73 g/(l×h) volt.

Integrált arabinóz biotisztítás és xilit fermentáció megvalósítása a kukoricarost savas frakcionálásából származó hidrolizátumokon

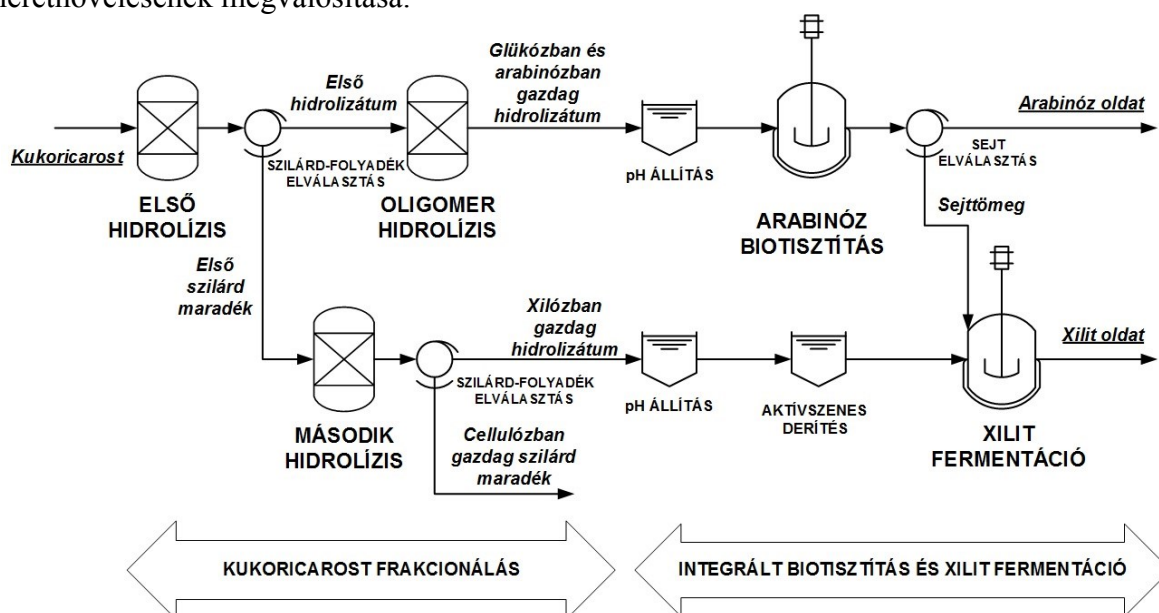
Mivel a *C. boidinii* az arabinóz biotisztítás mellett a xilit fermentációban is alkalmazhatónak bizonyult, a biotisztítás során, melléktermékként keletkezett sejtömeg felhasználható a xilit fermentációban, ahol a xilit hozam szempontjából előnyös a nagy kezdeti sejtkoncentráció alkalmazása. A xilit fermentáció és arabinóz biotisztítás integrálása révén nincs szükség a xilit fermentációt megelőző sejtszaporításra, mely a xilózban gazdag frakcióban a xilit előállításra fordítható xilóz mennyiségét csökkentené. A kukoricarost frakcionálásából származó glükózban és arabinózban gazdag hidrolizátumon végzett arabinóz biotisztítás során nyert folyadék frakció 9,2 g/l arabinózt és 1 g/l galaktózt tartalmazott, mely 90%-os arabinóz tisztaságnak felel meg. A keletkezett sejtömeget aktív szénrel detoxikált, xilózban gazdag hidrolizátumon történő xilit fermentációban felhasználva 10,4 g/l xilit koncentrációt értem el a fermentáció 72. órájában, mely 0,14 g/(l×h) produktivitásnak felel meg.

ÚJ TUDOMÁNYOS EREDMÉNYEK (TÉZISEK)

1. Kimutattam, hogy a bioetanolt és biometánt előállító, kukoricarost alapú biofinomító folyamat energiahatékonysága jelentősen növelhető iszap égetés és távhő előállítás megvalósítása során (I. közlemény).
2. Megállapítottam, hogy a bioetanolt és biometánt előállító, kukoricarost alapú biofinomító fő energia-felhasználó lépései a nyersanyag frakcionálása és az etanol desztilláció (I. közlemény).
3. Eredményeim alapján levonható a következtetés, hogy a darált, keményítőmentesített kukoricarost ammóniás áztatása megfelelő előkezelés a hemicellulóz frakció Hemicellulase NS22002 (Novozymes) enzimekészítménnyel történő, szelektív hidrolízisének szempontjából (II. közlemény).
4. Kimutattam, hogy a darált, keményítőmentesített kukoricarost enyhe körülmények között végzett kénsavas kezelése arabinózban gazdag felülúszót eredményez, melyben az arabinóz főként monomer formában, míg az egyéb hemicellulóz cukrok főként oligomer formában vannak jelen (III. közlemény).
5. Eredményeim alapján levonható a következtetés, mely szerint a kukoricarost kénsavas kezelésével nyert felülúszóból glükózban és arabinózban gazdag folyadék frakció nyerhető oligomer hidrolízist követően. A szilárd maradék további kénsavas kezelése xilózban gazdag felülúszó előállítását teszi lehetővé (III. és IV. közlemény).
6. Megállapítottam, hogy a *C. boidinii* NCAIM Y.01308 alkalmas kukoricarostból nyert, glükózban és arabinózban gazdag folyadék frakció aerob biotisztítására, mely során – a cukrok tekintetében – tiszta arabinóz oldat állítható elő. Továbbá rámutattam, hogy a *C. boidinii* NCAIM Y.01308 alkalmas xilit fermentatív előállítására 2,8 mmol/(l×h) maximális oxigénátadási sebességgel jellemzett rendszerben kukoricarostból nyert, aktív szénrel detoxikált, xilózban gazdag folyadék frakción (IV. közlemény).

KÖVETKEZTETÉS, ALKALMAZÁSI LEHETŐSÉGEK

A munkám során elért eredmények alapot szolgáltatnak egy kukoricarostot hasznosító, arabinózt és xilit előállító biofinomító folyamat megvalósításához, mely a kukoricarost kétlépcsős savas frakcionálásán és a kapott frakciók *C. boidinii*-vel történő átalakításán alapul (1. ábra). A kétlépcsős savas frakcionálás során arabinózban és glükózban gazdag és xilózban gazdag folyadék frakciók állíthatók elő, valamint egy cellulózban gazdag szilárd maradék. A glükózban és arabinózban gazdag hidrolizátumot, pH állítást követően aerob biotisztításra vezetve tiszta arabinóz oldat nyerhető. A xilózban gazdag hidrolizátum aktív szén kezelés és pH állítást követően mikroaerob xilit fermentációban hasznosítható, melynek elvégzésére alkalmas a biotisztításban keletkezett sejtömeg. A biofinomító folyamat jövőbeli fejlesztésének fő területei: a cellulózban gazdag frakció hasznosítása, az elérhető arabinóz és xilit koncentrációk növelése, az arabinóz és xilit kinyerés vizsgálata, valamint a folyamat méretnövelésének megvalósítása.



1. ábra: Kukoricarost alapú biofinomító folyamat

KÖZLEMÉNYEK

Az értekezés alapját képező folyóiratcikkek

- I. **Csaba Fehér**, Zsolt Barta, Katalin Réczey. (2012) Process considerations of a biorefinery producing value-added products from corn fibre. *Periodica Polytechnica Chemical Engineering*. 56 (1), 9-19. IF: 0.27
- II. **Csaba Fehér**, Boglárka Gál, Anikó Fehér, Zsolt Barta, Kati Réczey. (2015) Investigation of commercial enzyme preparations for selective release of arabinose from corn fibre. *Journal of Chemical Technology and Biotechnology*. 90 (7), 1329–1337. IF: 2.494
- III. **Csaba Fehér**, Zita Gázsó, Patomwat Tatijarern, Máté Molnár, Zsolt Barta and Kati Réczey. (2015) Investigation of selective arabinose release from corn fibre by acid hydrolysis under mild conditions. *Journal of Chemical Technology and Biotechnology* 90 (5), 896-906. IF: 2.494
- IV. **Csaba Fehér**, Zita Gázsó, Boglárka Gál, Anett Kontra, Zsolt Barta, Kati Réczey. Integrated process of arabinose biopurification and xylitol fermentation based on the diverse action of *Candida boidinii*. *Chemical and Biochemical Engineering Quarterly* (accepted, 05. 03. 2015.) IF: 0.911

Egyéb folyóiratcikkek

Fehér Csaba, Barta Zsolt, Réczey Istvánné. (2014) Az L-arabinóz felhasználásának lehetőségei és az arabinanolitikus enzimek tulajdonságai. (Possible utilisations of L-arabinose and properties of arabinanases.) *Magyar Kémikusok Lapja* 69 (1), 7-12.

Mareczky Zoltán, **Fehér Csaba**, Barta Zsolt, Réczey Istvánné. (2014) Xilit fermentációs előállítása lignocellulózokból. (Fermentative production of xylitol from lignocelluloses.) *Magyar Kémikusok Lapja* 69 (3), 74-78.

István Wagner, Zsombor Kristóf Nagy, Panna Vass, **Csaba Fehér**, Zsolt Barta, Tamás Vigh, Péter Lajos Sóti, Anna Helga Harasztos, Hajnalka Pataki, Geert Verreck, Ivo Van Assche, György Marosi. Stable Formulation of Protein-type Drug in Electrospun Polymeric Fiber Followed by Tableting and Scaling-Up Experiments. *Polymers for Advanced Technologies* (accepted, 06. 05. 2015.) IF: 1.964

Zoltán Mareczky, Anikó Fehér, **Csaba Fehér**, Zsolt Barta, Katalin Réczey. Effects of pH and aeration conditions on xylitol production by *Candida* and *Hansenula* yeasts. *Periodica Polytechnica Chemical Engineering*. (accepted, 30. 06. 2015.) IF: 0.296

Szóbeli előadások

Fehér Csaba, Barta Zsolt, Réczey Istvánné. Kukorica maghéjat feldolgozó, integrált technológiák modellezése és vizsgálata. (Modelling and investigation of integrated processes utilising corn fibre.) 344. *Tudományos Kollokvium*. Budapest, Hungary, September 30, 2011.

Fehér Csaba, Barta Zsolt, Réczey Istvánné. A biofinomító koncepció és egy lehetséges technológia számítógépes szimulációja. (The concept of biorefining and simulation of a possible process.) XXXIV. *Kémiai Előadói Napok*. Szeged, Hungary, November 3, 2011.

Csaba Fehér, Zita Gázsó, Boglárka Gál, Anikó Fehér, Zsolt Barta, Kati Réczey. Arabinose hydrolysis by chemical or biochemical methods in context of a corn-fibre-based biorefinery. 1st *EuCheMS Congress on Green and Sustainable Chemistry*. Budapest, Hungary, October 13–15, 2013.

Fehér Csaba, Gázsó Zita, Molnár Máté, Barta Zsolt, Réczey Istvánné. Kukoricarost biofinomító szemléletű feldolgozása arabinóz és xilit előállítása céljából. (Processing of corn fibre in biorefinery approach to produce arabinose and xylitol.) XXXVI. *Kémiai Előadói Napok*. Szeged, Hungary, October 30, 2013.

Csaba Fehér, Zita Gázsó, Zsolt Barta, Kati Réczey. Arabinose, xylitol and ethanol production from corn fibre in a biorefinery process based on the diverse action of *Candida boidinii*. 10th *International Conference on Renewable Resources and Biorefineries*. Valladolid, Spain, June 4–6, 2014.

Poszter előadások

Csaba Fehér, Zsolt Barta, Tibor Szabó, Zsolt Fábian, Castro Eulogio, Manzanares Paloma, Negro Maria Jose, Ballesteros Mercedes, Kati Réczey. Techno-economic analysis of different process configurations for bioethanol production from pretreated olive pruning biomass. 34th *Symposium on Biotechnology for Fuels and Chemicals*. New Orleans, LA, USA, April 30 – May 3, 2012.

Zsolt Barta, **Csaba Fehér**, Kati Réczey. Techno-economic analysis of a corn-fibre-based biorefinery. *Advanced Biofuels in a Biorefinery Approach*. Copenhagen, Denmark, February 28 – March 1, 2012.

Csaba Fehér, Zsolt Barta, Kati Réczey. Process-simulation-aided experiments to develop corn-fibre-based biorefinery concept. *Advanced Biofuels in a Biorefinery Approach*. Copenhagen, Denmark, February 28 – March 1, 2012.

Csaba Fehér, Zita Gázsó, Boglárka Gál, Zsolt Barta, Kati Réczey. Selective arabinose hydrolysis in a corn-fibre-based biorefinery concept. *The II Iberoamerican Congress on Biorefineries*. Jaén, Spain, April 10–12, 2013.

Zoltán Mareczky, **Csaba Fehér**, Hassan Hanan, Máté Kuna, Zsolt Barta, Kati Réczey. The influence of glucose and xylose concentrations and aeration conditions on xylitol production by *Candida* yeasts. *The II Iberoamerican Congress on Biorefineries*. Jaén, Spain, April 10–12, 2013.

Attila Bagdi, Ferenc Lovász, Anna Harasztos, Zsófia Pólai, **Csaba Fehér**, Zsolt Barta, Nándor Barabás, Sándor Tömösközi. Optimizing the harvesting time of sweet sorghum cultivars in order to reach high sugar production in an integrated agricultural production system. *Cereals & Europe Spring Meeting 2013*. Leuven, Belgium, May 29–31, 2013.

Zoltán Mareczky, **Csaba Fehér**, Balázs Dauner, Máté Mihályi, Zsolt Barta, Kati Réczey. Enhancement of xylitol yield with different buffer solutions and inoculation conditions during fermentation of *Candida* yeasts. *1st EuCheMS Congress on Green and Sustainable Chemistry*. Budapest, Hungary, October 13–15, 2013.

Anikó Fehér, **Csaba Fehér**, Zsolt Barta, Kati Réczey. Development of cellulose and hemicellulose hydrolysis in integrated ethanol fermentation of corn fibre. *1st EuCheMS Congress on Green and Sustainable Chemistry*. Budapest, Hungary, October 13–15, 2013.

Krisztina Gubicza, Ismael U. Nieves, **Csaba Fehér**, Zhuoli Tian, Lonnie O. Ingram, Zsolt Barta. Techno-economic analysis of ethanol production from sugarcane bagasse at the Stan Mayfield Biorefinery. *36th Symposium on Biotechnology for Fuels and Chemicals* Hilton Clearwater Beach Resort Clearwater, FL, United States, April 28 – May 1, 2014.

Csaba Fehér, Boglárka Gál, Zita Gázsó, Anikó, Fehér, Zsolt Barta. Complex utilisation of corn fibre. *5th Cereals & Europe Spring Meeting*, Budapest, Hungary, April 27–29, 2015.

Juan Miguel Romero-García, **Csaba Fehér**, Encarnación Ruiz-Ramos, Cristóbal Cara, Zsolt Barta, Eulogio Castro. Xylitol production from pretreated olive stones. *37th Symposium on Biotechnology for Fuels and Chemicals*. San Diego, CA, USA, April 27–30, 2015.

Ádám Túri, Boglárka Gál, Zoltán Mareczky, **Csaba Fehér**, Zsolt Barta. Fermentative production of xylitol in a pilot fermentor. *37th Symposium on Biotechnology for Fuels and Chemicals*. San Diego, CA, USA, April 27–30, 2015.

Csaba Fehér, Boglárka Gál, Zita Gázsó, Anikó Fehér, Zsolt Barta. Yeast-mediated biopurification of arabinose and fermentation of xylitol. *11th International Conference on Renewable Resources & Biorefineries*. York, UK, June 3–5, 2015.

Konferenciakiadványok

Fehér Csaba, Barta Zsolt, Réczey Istvánné. A biofinomító koncepció és egy lehetséges technológia számítógépes szimulációja. (The concept of biorefining and simulation of a possible process.) *XXXIV. Kémiai Előadói Napok Konferenciakiadvány* (ISBN: 978-963-315-062-7) 139-141 (2011)

Mareczky Zoltán, **Fehér Csaba**, Barta Zsolt, Réczey Istvánné. Egy fontos cukoralkohol: a xilit. (Xylitol, an important sugar alcohol.) *Környezettudományi Doktori Iskolák Konferenciakiadvány* (ISBN: 978-963-284-242-4) 228-235 (2012)

Zsolt Barta, **Csaba Fehér**, Róbert Gerhát, Ágoston Tolnai, Castro Eulogio, Negro Maria Jose, Ballesteros Mercedes. Process design and economic analysis of bioethanol production from olive tree pruning. *Libro de II Congreso Iberoamericano sobre Biorrefinerías* (ISBN: 978-84-92876-21-1) 619-626 (2013)

Gaszó Zita, **Fehér Csaba**, Barta Zsolt, Réczey Istvánné. Integrált arabinóz biotisztítás és xilit fermentáció lignocellulóz alapú biofinomítás során. (Integrated process of arabinose biopurification and xylitol fermentation in lignocellulose based biorefining.) *Műszaki Kémiai Napok 2013 Konferenciakiadvány*. (ISBN: 978-615-5044-79-3) (2013)

Fehér Anikó, **Fehér Csaba**, Barta Zsolt, Réczey Istvánné. Integrált etanol fermentáció fejlesztése kukoricarost biofinomítása során. (Development of integrated ethanol fermentation in corn-fibre-based biorefinery.) *Műszaki Kémiai Napok 2013 Konferenciakiadvány*. (ISBN: 978-615-5044-79-3) (2013)

Fehér Csaba, Gaszó Zita, Molnár Máté, Barta Zsolt, Réczey Istvánné. Kukoricarost biofinomító szemléletű feldolgozása arabinóz és xilit előállítására céljából. (Processing of corn fibre in biorefinery approach to produce arabinose and xylitol.) *XXXVI. Kémiai Előadói Napok Konferenciakiadvány* (ISBN: 978-963-315-145-7) 262-266 (2013)

Mareczky Zoltán, **Fehér Csaba**, Barta Zsolt, Mihály Máté, Dauner Balázs, Réczey Istvánné. A levegőztetés és a pH hatása a *Candida* törzsekre a xilit fermentatív előállítására során. (The influence of pH and aeration on the fermentative production of xylitol by *Candida* yeasts.) *XXXVI. Kémiai Előadói Napok Konferenciakiadvány* (ISBN: 978-963-315-145-7) 275-278 (2013)