

氏名(本籍)	きむ	み	じょん	美貞(韓国)
学位の種類	博士(農学)			
学位記番号	博甲第6523号			
学位授与年月日	平成25年3月25日			
学位授与の要件	学位規則第4条第1項該当			
審査研究科	生命環境科学研究科			
学位論文題目	<b>Bioenergy Conversion Efficiency in a Two-Stage H<sub>2</sub>/CH<sub>4</sub> Fermentation Process using Organic Waste</b> (有機性廃棄物を用いた水素・メタン二段発酵におけるバイオエネルギーの変換効率)			
主査	筑波大学教授	博士(農学)	張	振 亜
副査	筑波大学教授	農学博士	杉	浦 則 夫
副査	筑波大学准教授	博士(生物工学)	楊	英 男
副査	筑波大学准教授	工学博士	雷	中 方

### 論文の内容の要旨

日本の有機性バイオマス資源の賦存量のうち、農業由来のリグノセルロース系廃棄物である稲わらと下水処理場で発生する汚泥は乾燥重量ベースで約17%を占める。そのうち、稲わらの70%は農地還元、汚泥の約30%は焼却処分または埋め立て処分されており、有効利用されていないのが現状である。稲わらと下水汚泥は、水素やメタンなどのバイオエネルギーに変換可能で、資源としての利活用が望まれている。

リグノセルロース系廃棄物を基質とした純粋な水素生成菌によって、水素生産が可能であることが報告された。また、下水汚泥を種菌として水素発酵に使用する場合、汚泥中のメタン生成菌の活性を抑制するため、100℃での熱処理などの前処理が必要である。水素生成菌の培養や下水汚泥の前処理には莫大なコストがかかり、水素生産の実用化に制限要因となっている。本研究では、これらの問題を解決するため、汚泥の前処理を省略する手法の開発に取り組んだ。

まず、熱処理を行わない下水汚泥に、適切に稲わらを混合したものを水素発酵の基質とし、下水汚泥中の微生物群集を種菌として使用して、水素生産を試みた。この実験は、汚泥の熱処理を省略し、省エネルギーかつ低コストの水素生産法の実現を目的とした。さらに、水素だけではなく、水素発酵をメタン発酵の前処理技術として併用する可能性に着目し、その有効性を検討した。このような水素・メタン二段発酵による稲わらと下水汚泥から得られたバイオエネルギーの回収率を、単独なメタン発酵或いは単独な水素発酵と比較して評価した。

炭素源高含有の稲わら(炭素/窒素=40)及び窒素源高含有の下水汚泥(炭素/窒素=6)を実験に用いた。下水汚泥は、未処理及び熱処理汚泥(100℃、15分)を用いた。回分発酵による混合系水素発酵を55℃で10日間行い、水素生産への汚泥熱処理の影響を検討したところ、熱処理汚泥と比べ、未熱処理汚泥を用いた場合のバイオガス及び水素生産量の方が高い。また、汚泥(150 ml)に異なる量の稲わら(0.41g)を添加することで炭素/窒素比(6-30)及び固形物(total solids, TS)の濃度(2%-23%)に調整し、水素生産への影響を検討した。その結果、水素生産率は、未処理汚泥に稲わらを添加し、炭素/窒素比を25、固形物

の割合を 17% に調整した場合が最も高く、培養 1 日目から水素が活発に生産された他、発酵期間中はメタンの生産は検出されなかった。培養期間中の平均水素濃度は 58% に達し、発生した水素は稲わらに含まれる揮発性固形物 VS の 1g あたり 21ml であった。以上のことから、コストの高い前処理を行わず、未処理汚泥に適切な稲わらを添加することによって、効率的な混合系水素発酵が可能であることを明らかにした。

さらに、回分式による水素・メタン二段発酵及び単独メタン発酵における基質に含まれる VS の減少率はそれぞれ 60% (水素発酵 VS 減少率 13% + メタン発酵 VS 減少率 47%) と 44% であった。また、水素発酵残渣を用いたメタン発酵の場合、発酵 1 日目からメタンが活発に生産され、発酵期間中の平均メタン濃度は 75% -80% に達した。その結果、発生したメタンは基質 1-g VS あたり 266 ml であり、稲わらと汚泥の混合物を用いた単独メタン発酵から発生したメタン (171 ml/g-VS) に比べ、1.55 倍高かった。さらに、総バイオエネルギー収率は、稲わらと汚泥の混合物及びその水素発酵残渣を用いた水素・メタン二段発酵の場合 (8804 J/g-VS)、単独メタン発酵 (5518 J/g-VS) よりも 1.59 倍高く、可溶化された水素発酵残渣はメタン発酵の基質として効果的かつ好都合であり、水素発酵はメタン発酵の前処理として有効であることが明らかとなった。

## 審査の結果の要旨

本研究は、高窒素含有余剰汚泥と低窒素含有量の稲わらを用いて、省エネルギーかつ低コストのバイオエネルギー生産法の研究開発を行った。従来のメタン生成菌を抑制し、水素生成菌だけを残すための高温汚泥処理法に対し、汚泥の高温処理を行わず、未処理汚泥に最適な稲わらの量を添加することによって効率的な混合系水素発酵法を実現した。さらに、水素発酵残渣をメタン発酵の基質として利用し、VS の 1g 当たりのメタン収率は単独メタン発酵の場合より 1.55 倍高い結果が得られた。さらに、総エネルギー回収量を比較したところ、水素発酵 + メタン発酵の 2 相式の場合は単独メタン発酵より 1.59 倍高い。その結果、本研究により開発した 2 相式水素 + メタン発酵は、エネルギーの収率やスタートアップ時間の短縮等の面において、従来のメタン発酵リアクターより大きく改善された。また、発酵効率を向上させるために世界で初めて 17% 以上の TS 濃度の 2 相式発酵を実現した。本研究によって貴重な実験データが得られ、バイオエネルギー分野への応用に科学的かつ技術的助言が提供できた点は、オリジナリティに富む研究として高く評価できる。

平成 25 年 1 月 21 日、学位審査委員会において、審査委員全員出席のもとに論文の審査及び最終試験を行い、本論文について著者に説明を求め、関連事項について質疑応答を行った。その結果、審査委員全員によって合格と判断された。

よって、著者は博士 (農学) の学位を受けるに十分な資格を有するものと認める。