

氏名（本籍）	李 慧芳
学位の種類	博 士（環境学）
学位記番号	博 甲 第 7376 号
学位授与年月日	平成 27 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	Synthesis of Ag-AgCl/ZnO Photocatalyst and Its Application for Biomass Reclamation (Ag-AgCl/ZnO 光触媒の合成及びバイオマス再資源化への応用)

主査	筑波大学教授	博士（農学）	張 振亜
副査	筑波大学准教授	工学博士	雷 中方
副査	筑波大学准教授	博士（工学）	山路 恵子
副査	筑波大学准教授	博士（学術）	水野谷 剛

論 文 の 要 旨

化石燃料の過剰消費に起因し、さまざまな環境問題が生じ、バイオマスエネルギー変換技術の研究開発は急務となっている。特にリグノセルロース系バイオマスは年間発生量が 1720 億トンに上り、組成としては 40-50 %セルロース、10-25 %ヘミセルロース、25-40 %リグニンから成る。リグノセルロース系バイオマスの生物学的利用性を高めるためには、リグニン分解技術としての前処理技術について多くの研究開発がされている。光触媒分解法は強酸、強アルカリ蒸煮法などと比べ、環境に優しい、低コストかつ省エネルギー前処理技術として考えられている。本研究は、マイクロ波支援化学沈殿法及び沈着沈殿光還元法を用いた太陽光利用可能な Ag-AgCl/ZnO 光触媒を合成し、合成した光触媒材料の物性の評価、可視光の下でのリグニンの分解や稲わらの生物学的利用性の向上、光触媒前処理したリグノセルロース系のバイオガス生産性の向上について検討したものである。

まずは合成したナノスケールの Ag-AgCl/ZnO に対し、XRD、SEM、EDS、PL、DRS を用いてその物性を評価した。その結果、結晶の AgCl に ZnO と Ag の顆粒が結合していることが観察された。SEM での観察では、合成した光触媒は規則的なナノ棒あるいは棒のような粒子であることが観察された。最適合成条件である蒸留水 pH9、UV 照射光還元時間 40 分で作製した Ag₄₀-AgCl/ZnO を用いて、メチルオレンジ (8 mg L⁻¹) を分解する実験では、可視光の下、開始 30 分では、分解率が 91.5 %に達した。さらに、Ag₄₀-AgCl/ZnO を可視光の下で用いてリグニンの分解実験を行い、リグニンの分解物のメタン発酵を行った。リグニンの初期濃度、触媒の投入量、リグニン溶液の初期 pH の影響も検討した結果、光触媒投入量 4 g L⁻¹、pH11 の条件ではリグニンの分解率が最も高かった。・OH 種はリグニンの分解過程において重要な役割を果たしていると考えられる。また、光触媒の再利用については、合成した光触媒で 7 サイクルのリグニンの分解を行った後にも、安定的なリグニン分解性能を示していた。

さらに、120 分間のリグニン分解液を用いて回分式メタン発酵を行った結果、それぞれのバイオガス収率とメタンガス収率は 184 mL/g-TOC removed と 325 mL/g-TOC removed が得られた。前処理なしのコントロールと比べ、バイオガスの収率とメタンの収率はそれぞれ 10.9 % と 23.1 % 向上したことになる。この研

究で合成した触媒を用いてリグニンの生物学的利用性が向上し、メタン発酵の前処理法として有効であることが示唆された。

さらに稲わらのメタン発酵の前処理法として $\text{Ag}_{40}\text{-AgCl/ZnO}$ を用いて、検討を行った。稲わらの切断サイズ、触媒の投入量、稲わらの初期濃度などの影響について検討した結果、高い可溶性炭水化物濃度と可溶性有機炭素(STOC)を得るためには、触媒投入量 1 g/L、稲わらの初期濃度 10 g/L、稲わらのサイズ 0.335~0.45 mm、光分解時間 120 分の分解条件が最適であることを明らかにした。前処理した稲わらを用いて 60 日間のメタン発酵を行った結果、280 mL/g-VS removed のメタン収率が得られ、未処理の稲わらと比べ 13.0 %向上した。一日当たりの最大メタン生成量はコントロールの 10.44 mL/g-VS removed に対し、12.88 mL/g-VS removed を得ることができた。これらの結果から、本研究で開発した可視光触媒は稲わらなどの農産廃棄物のバイオエネルギー化に有効であることが示唆された。

審 査 の 要 旨

本研究はメタン生成の過程におけるリグノセルロース系バイオマスのリグニンによる生物学的利用性の低下や加水分解速度の低下を改善するため、 Ag-AgCl/ZnO 光触媒を合成し、稲わらのようなリグノセルロース系バイオマスの前処理法として光触媒を導入し、バイオマスエネルギーの生産性の向上について検討したものである。開発した可視光触媒は稲わらなどの農産廃棄物のバイオエネルギー化に有効であることを明らかにした。

本研究から得られた貴重な実験データはオリジナリティに富む研究として高く評価でき、リグノセルロース系バイオマスのバイオエネルギー化に重要な研究成果として考えられる。バイオエネルギーや環境浄化技術研究開発分野への応用に科学的かつ技術的な助言が提供できた。

平成 27 年 1 月 26 日、学位論文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および最終試験を行い、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（環境学）の学位を受けるのに十分な資格を有するものとして認める。