

氏名	孫 ^{そん} 晋 ^{しん}
学位の種類	博士(工学)
学位記番号	工博甲第76号
学位授与の要件	学位規則第4条第1項該当者
学位授与の年月日	令和3年3月12日
学位論文題目	Study on highly efficient methane fermentation by adoption of ethanol fermentation pretreatment of food waste (食品廃棄物のエタノール発酵前処理の採用による高効率メタン発酵に関する研究)
論文審査委員	(主査)教授 古崎 康哲 教授 渡邊 信久 教授 笠原 伸介 准教授 河村 耕史

論文の内容の要旨

近年、食品廃棄物（FW）の処理が社会問題となっており、食品のリサイクル方法が注目されている。メタン発酵は、有機系廃棄物の安定化・減量、バイオガスのエネルギー利用など、リサイクル技術として多くの利点がある。したがって、多くの FW リサイクルプロジェクトは嫌気性消化に基づいており、メタン発酵の性能を向上させるために多くの FW 前処理方法が検討されてきた。現在までの研究から、FW のエタノール発酵前処理（EP）は、メタン発酵の性能を向上させることが知られている。例えば EP を利用したメタン発酵システムの緩衝能力向上およびバイオガス中のメタン濃度向上などである。ただし、これまでの研究はバッチ実験などの短期研究しか報告されていない。そのため、定常状態での長時間連続運転におけるプロセスの特性を把握することは、連続供給によって操作される実施設への応用可能性を検討する上で重要である。したがって、本研究におけるすべてのメタン発酵実験は、基質を断続的に投入する半連続実験によって行われた。第 2 章では、エタノール発酵させた模擬食品廃棄物（AFW）をメタン発酵槽に 130 日間供給し、前処理なしの対照実験と比較した。第 3 章では、第 2 章の実験で得られた知見と欠点を踏まえて、嫌気性膜分離型メタン発酵槽（AnMBR）システムの導入を提案した。この章では、AnMBR が EP の実用的な形式として有効であるかを検討した。第 4 章では、AnMBR を使用して EP システムで検討した高負荷運転を試みた。また各章において EP を行う有効性およびその原理を解明するために、熱力学、分解経路（中間体の蓄積）、化学量論、細菌および古細菌のコミュニティについて検討された。各章の概要は以下のとおりである。

第 2 章では、対照系（前処理なし）および EP 系において水理学的滞留時間（HRT）=47 d の長期運転を行った。揮発性固形物（VS）あたりのメタン収率は、それぞれ 420 と 460 mL/g（10%向上）であり、VS 生分解性は 87%と 94%（7%向上）であった。メタン濃度はそれぞれ 53%と 68%（10%向上）であった。また、VSS の汚泥収率は 0.082 と 0.014 g-sludge / g-added（5 分の 1 に減少）であった。バイオガス中のメタン濃度が約 15%増加した結果は、化学量論に従ったことを示した。エタノール分解で得られるギブズ自由エネルギーはグルコースの分解より少ないことがわかった。これは、EP 系の汚泥収率が対照系より低い理由と考えられる。しかし、汚泥収率が低いというメリットは、消化菌を槽内に保持することが難しいことを示している。つまり、厨芥の供給量を増やすことによって HRT が減少すると、嫌気性細菌のウォッシュアウトが発生し、そのことがより高い負荷での運転を制限することをもたらした。従来の完全混合反応槽を用いる場合、EP の導入は、長い HRT のみ対応が可能であった。したがって、EP を実用化するためには、より短い HRT でも固形物滞留時間（SRT）を確保できる方法がこのボトルネックを克服するための鍵になっている。

第 3 章では、AnMBR を使用することによって、EP システムが短い HRT でも安定的な運転を維持できるかを検討した。AnMBR 導入は、これらの成長の遅い嫌気性細菌のウォッシュアウト

ウトを効果的に防ぎ、HRTよりも長いSRTでの操作を可能となった。対照系は、最大有機物負荷率(OLR)は8.8 g-COD / L / d (HRT=15 d ; SRT=53 d) で運転可能であったが、EP系は26.5 g-COD / L / d (HRT = 5 d ; SRT=28 d) であった。加えてEP系の汚泥収率を27~46%削減することができた。対照系では、槽内の酸生成によって生成された主要なVFAはプロピオン酸であり、EP系は酢酸であった。プロピオン酸は高負荷条件下では分解が進まないことが知られており、対照系での槽内pH低下をもたらし、メタン生成菌の活性低下を引き起こした。したがって、EPはAnMBRの処理性能の向上に貢献できることがわかった。この章では、EP系の負荷を増やしてもメタン発酵は阻害されなかった。

第4章では、引き続きAnMBRを使用し、EP系の生分解性限界を究めるために、より高い負荷での運転を行った。EP系は43.5 g COD / L / dのOLR (HRT=6 d; SRT=25 d)での運転を達成し、これは対照系の3倍負荷であった。この処理能力は、現時点で報告されているメタン発酵の最高負荷であることを示した。高負荷運転では、EP系は安定したメタン収率と反応槽の安定した長期運転を維持することが確認された。この結果、これはAFWのEPが嫌気性消化性能を大幅に改善できることを示した。また、両反応槽における古細菌と細菌群集を調査した。結果は、EP系において優勢な細菌と古細菌の有意な変化を示し、良好な共生関係が形成されたことを示した。

この研究は、長期と高負荷の条件での運転を行い、EPのAnMBRシステムにおけるメタン発酵の特性およびその微生物群集の主要な代謝経路を明らかにした。この研究は、将来の実用化と継続的な研究のための重要な参考資料であることと考えられる。

論文審査の結果の要旨

論文の審査は審査委員による博士論文（主論文）の審査および公聴会により行った。

審査はテーマの新規性、実験方法の妥当性、データの信頼性、考察の妥当性等、様々な角度から行われた。

本研究は大きく3種類の実験から構成されている。いずれも長期的な半連続実験を行い、定常状態での運転、すなわち、実用化が見込める手法であることを示した上で考察を行っている。既存の研究報告によってバイオガス中のメタン濃度が向上することなどは示されていたが、これは回分実験によるものであり、複数回にわたる基質投入であっても微生物の活性を保持できるかは示せていなかった。2章は、定常状態での運転が可能であり、実用化が見込める技術であることを示した。加えて、汚泥（固形分）の発生量が少なくなることは半連続実験でなければ得られない知見である。3章では実用化の一形態として、これからの普及が期待できる膜分離法を取り入れた実験を行っている。成果として、前処理を行うことでHRT5日という、通常の1/3の短期間での運転が可能であり、メタン発酵の高性能化に貢献できる結果を示すことができた。4章では装置の小型化を念頭に、さらなる高負荷運転を試みた結果、既存報告の中で最も高い負荷での運転が可能であることを示すことができた。このことは前処理技術の一つを示すだけでなく、既存メタン発酵のイノベーションにつながるものだと考えられる。

各種の実験を通して、メタン発酵能力向上の原理へアプローチしている。汚泥削減および分解特性はGibbsフリーエネルギーの切り口から、高負荷運転を可能にした要因は菌叢変化を伴う代謝経路の変化から示すことができた。いずれも既存の研究を一步進めた考察から得られたものである。ただ、基質分解速度といった動力的な評価は十分とはいえず、今後さらなる考察を行うことが望ましい。

公聴会の審議では、使用した模擬厨芥の妥当性、他成分の挙動、装置破綻の評価方法、菌叢の考察方法、エタノール発酵や嫌気性膜分離法を採用した経緯、などについて質疑応答が行われ、時間を切らず十分に審議を尽くした。これらのことから本論文の内容は実用化を念頭におきながらも新規性を持つとともに、メタン発酵の新たな考察方法に踏み込んだ内容であるといえ、学位論文としてふさわしい内容であると考えられる。