

内容の要旨及び審査結果の要旨

【書式 1 1】

令和 3 年 2 月 1 5 日

氏名 (本籍)	関根 睦実		
学位の種類	博士 (工学)		
学位記番号	甲 第 178 号		
学位記の授与日	令和 3 年 3 月 1 8 日		
学位授与の要件	学位規則第 4 条第 1 項該当 創価大学大学院学則第 31 条第 2 項該当 創価大学学位規則第 3 条の 3 第 1 項該当		
論文題目	Coupling process of simultaneous desulfurization–nitrification and microalgal cultivation for biogas and effluent from anaerobic digestion		
論文審査機関	理工学研究科委員会		
論文審査委員	主査委員	農学博士	戸田 龍樹 印
	委員	博士 (工学)	井田 旬一 印
	委員	博士 (工学)	小野寺 崇 印

<論文の内容の要旨>

経済発展や人口増加に伴い世界の廃棄物排出量は年々増加している。その中において、メタン発酵法は、嫌気性微生物を用いて有機性廃水・廃棄物を処理し、バイオガスを生成可能な低環境負荷型技術として世界で普及が進んでいる。しかし導入に際しては、バイオガス中の高い腐食性・毒性を持つ硫化水素や、排水（消化液）中のアンモニウムを除去する工程が不可欠であり、後段設備の導入や運転にかかる費用や負荷がメタン発酵の利点を相殺している。消化液中の栄養塩を用いて有価物である微細藻類を培養できるが、消化液中のアンモニウムと共存する遊離アンモニアが微細藻類を阻害するため、通常 2-30 倍の希釈が必要で、多量の水を消費する。そこで本論文では、バイオガス中の硫化水素と消化液中のアンモニウムを除去する「同時脱硫・硝化槽」と「無希釈消化液による微細藻類生産槽」の組み合わせによる新規の 2 槽式プロセスを提案し、研究開発を行った。

本プロセスの要となる単一槽でのバイオガスの脱硫と消化液の硝化処理は、溶存硫化水素（以降、硫化物と記す）が硝化細菌を阻害するため困難とされてきた。そこで第 2 章では、まず、硫化水素ガスの代わりに硫化水素ナトリウム水溶液を用いて、消化液との同時処理法を検討した。排水処理にしばしば用いられる順次回分式反応槽 (SBR) は、高い微生物保持能を有するため細菌の馴養に適する。そこで、本反応槽に両基質を時間をかけて供給することで、細菌群集の硫化物耐性を向上させ、 $128 \text{ mg-S L}^{-1} \text{ d}^{-1}$ の高硫化物負荷条件における 100% の脱硫・硝化処理をはじめて達成した。しかし、SBR でバイオガスを処理する場合には、脱硫ガスへの酸素混入による爆発の危険性がある。また、排水時にバイオガスの供給を停止する必要があり、硫化水素を含んだままのバイオガスを一時貯留する必要が生じる。そこで第 3 章では、完全混合型膜反応槽 (CSTMR) に酸素供給塔を外付けして、硫化水素を含む合成バイオガスと消化液を同時処理した。CSTMR では、固液分離膜を介して、細菌を槽内に留めて液のみを排水するため、SBR と同様に高い細菌保持能を持つ。実験の結果、第 2 章と同様に、細菌群集の硫化水素への馴養が生じ 100% の脱硫・硝化処理能が得られた。また、酸素供給塔を通して酸素を溶存状態で CSTMR に供給するため、脱硫ガスへの酸素混入量は 0.6% 以下 (平均 0.4%) に抑えられ安全性が確認された。

第 4 章では、第 2、3 章で確立した脱硫・硝化槽で処理された消化液を用い、微細藻類培養を検討した。消化液はアンモニウムが無害な硝酸になっているため無希釈のまま微細藻類培養に使用できる可能性がある。そこで、消化液を培地に用いて緑藻 *Chlorella sorokiniana* NIES-2173 株を培養したところ、人工培地と同等の微細藻類生産が得られ、本プロセスで提案する単一の同時脱硫・硝化槽を経た消化液の微細藻類培地としての有用性が示された。

上述の研究成果を踏まえ、総合考察となる第 5 章では、一連の提案プロセスの運転を 20 日間試み、高いバイオガス脱硫と消化液の窒素除去能、および微細藻類生産が確認された。試算により、提案プロセスの従来プロセスよりも高い経済性が示された。

本論文の内容の一部は、下記の査読制度を有する当該分野において権威ある学術雑誌に 3 編が掲載されており、本論文の研究成果が国際的にも評価されていることを示している。

1) **Mutsumi SEKINE, Shinichi AKIZUKI, Masatoshi KISHI and Tatsuki TODA.**

Stable nitrification under sulfide supply in a sequencing batch reactor with a long fill period.

Journal of Water Process Engineering. Vol. 25: pp. 190-194, 2018. Short Communication. (IF= 3.465)

2) **Mutsumi SEKINE, Shinichi AKIZUKI, Masatoshi KISHI, Norio KUROSAWA and Tatsuki TODA.**

Simultaneous biological nitrification and desulfurization treatment of ammonium and sulfide-rich wastewater: Effectiveness of a sequential batch operation.

Chemosphere. Vol. 244: 125381, 2020. (IF= 5.778)

3) **Mutsumi SEKINE, Akari YOSHIDA, Shinichi AKIZUKI, Masatoshi KISHI and Tatsuki TODA.**

Microalgae cultivation using undiluted anaerobic digestate by introducing aerobic nitrification–desulfurization treatment.

Water Science and Technology. Vol. 82(6): pp. 1070-1080, 2020. (IF=1.638)

< 論文審査結果の要旨 >

有機物のメタン発酵処理技術は、比較的低環境負荷であるため世界的に導入が推進されているが国や地域によるばらつきが大きく未だ十分に普及しているとは言えない。理由の一つにバイオガスと排水（消化液）の煩雑な後段処理の存在が挙げられる。多くの地域で、消化液は有効利用されずに自然環境に排水されている。本博士論文では、この後段処理プロセスの費用・環境負荷を低減するために、従来別々に行われていたバイオガスからの硫化水素と消化液の栄養塩の除去を「脱硫・硝化処理槽」と「微細藻類生産槽」の 2 槽で行う新規統合プロセスを提案し、研究開発を行った。単一槽でのバイオガスの脱硫と消化液の硝化処理では、溶存硫化水素による硝化細菌の阻害が従来の課題であったが、高い微生物保持能を持つ反応槽 (SBR または CSTMR) を使用して、バイオガスと消化液を連続的に供給することで、100% の高効率処理をはじめて達成した。また、本プロセスでは CSTMR に O₂ 供給塔を外付けすることで脱硫ガスへの O₂ 混入量を抑制し安全性を担保した。開発した同時脱硫・硝化槽を経た消化液は、無希釈のまま微細藻類に使うことで人工培地と同程度の生産性を示した。以上の結果にもとづいて行った、脱硫・硝化槽と微細藻類生産槽の 2 槽の連結運転および経済性評価の結果は、提案プロセスの高い実現可能性を示した。本博士論文は、開発した新規 2 槽式プロセスおよび各要素技術のそれぞれに新規性・独創性の高い内容を含み、得られた知見は環境プロセス工学分野に大きく貢献するものである。以上のことから、本博士論文は、博士(工学)の学位論文に値すると判断した。

最終試験の結果の要旨

【書式12】

令和 3年 2月15日

フリガナ 申請者氏名	セキネ ムツミ 関根 睦実	専攻名	環境共生工学専攻
審査委員会委員	主査委員	戸田 龍樹	印
	委員	井田 旬一	印
	委員	小野寺 崇	印

要旨

審査委員3名により、学位論文の内容および関連する学問分野に関して口頭で試問を行った。その結果、申請者が博士（工学）としての十分な学力と研究能力を有するものと判定された。よって、審査委員会は最終試験の結果を合格と判定した。