



TITLE:

In situ biogas upgrading in anaerobic digestion of organic waste with hydrogen addition(Abstract_要旨)

AUTHOR(S):

Li, Chenchen

CITATION:

Li, Chenchen. In situ biogas upgrading in anaerobic digestion of organic waste with hydrogen addition. 京都大学, 2021, 博士(工学)

ISSUE DATE:

2021-03-23

URL:

<https://doi.org/10.14989/doctor.k23184>

RIGHT:

許諾条件により本文は2021-09-23に公開; 許諾条件により要旨は2021-04-01に公開

京都大学	博士（工学）	氏名	LI CHENCHEN
論文題目	<i>In situ</i> biogas upgrading in anaerobic digestion of organic waste with hydrogen addition (有機性廃棄物の嫌気性消化への水素直接添加によるバイオガスの高品質化)		
<p>(論文内容の要旨)</p> <p>太陽光発電、および風力発電などの再生可能エネルギーは気候条件に大きく依存し、状況によっては、余剰電力が発生する。蓄電には限界があるため、余剰電力により水を電気分解し、得られた水素、あるいはさらにハンドリングが容易なメタンに変換する Power to Gas の概念に基づいたエネルギー管理手法が欧州で盛んに研究されている。</p> <p>本論文は、本概念に基づいて、有機性廃棄物の嫌気性消化プロセスへ水素(H₂)を添加することにより、CO₂+4H₂→CH₄+2H₂O の反応を生物化学的に生じさせることによりバイオガス中のメタン(CH₄)濃度を上昇させ、高品質化することを検討した論文であり、全9章から構成される。</p> <p>本論文の1章では研究の背景と有機性廃棄物の嫌気性消化の原理や機構、バイオガス高品質化(BBU)の従来技術やPower to GasによるBBUに関連する文献の調査が行われ、目的が述べられた。</p> <p>2章では、本研究で用いた4種類の嫌気性消化汚泥(下水汚泥、食品廃棄物汚泥)の微生物群集解析を行い、中温嫌気性汚泥については、<i>Methanosaeta</i> 属が優占種であり、酢酸資化CH₄生成が主たるCH₄生成経路になると考えられ、一方で、高温嫌気性汚泥については <i>Methanothermobacter</i> 属が優勢な古細菌であり、これは水素資化性CH₄生成が主たるCH₄生成経路であることが推測されている。</p> <p>3章では、下水汚泥を対象にH₂添加量を変化させた中温消化バッチ実験を行った。H₂添加により、汚泥の固形物組成は変化せず、CO₂+4H₂→CH₄+2H₂O の反応が生じCH₄の上昇が確認でき、この時のH₂消費速度は8.9~11.2 mL/(g_{vs}・h)であった。しかし、汚泥に対し1.5倍体積を超えるH₂添加により、pH上昇と、溶存態有機物質濃度を示すS-CODの増加が確認された。この現象は、酢酸ナトリウムと酪酸を添加した実験により、H₂添加が酢酸生成阻害を生じさせることによってもたらされることを示した。</p> <p>4章では、下水汚泥を対象に同様の高温消化実験を行い、H₂消費速度は33.0~34.1mL/(g_{vs}・h)まで上昇したが、H₂添加量が汚泥体積と同量の時点で、消化阻害が確認された。本結果は、pH調整、CO₂添加、および振とう方法の変化に影響されず、H₂添加は酢酸の生成と酸化を阻害し、間接的にCH₄生成を阻害したと結論付けている。</p> <p>5章では、食品廃棄物汚泥を対象に、同様の中温消化実験を行い、H₂消費速度はこれまでで最大の36.5~39.1mL/(g_{vs}・h)であり、pHもS-CODも安定して運転できることを明らかにした。この場合H₂添加は酢酸生成を一部阻害したが、H₂消費速度が高いため、CH₄生成を阻害せず、本基質、および本条件はH₂添加メタン発酵に適しているものと考察している。</p> <p>6章では、食品廃棄物汚泥を対象に、同様の高温消化実験を行ったところ、H₂消費速度は29.8~31.7mL/(g_{vs}・h)であった。汚泥に対し1.5倍体積を超えるH₂添加により、消化阻害が確認されたが、pH調整、CO₂添加、および振とう方法の変更により、消化阻害は軽減され、下水汚泥のケースと異なることが示され、基質の違いによる阻害の発現が明確化された。</p> <p>7章では、6章で用いた食品廃棄物汚泥を対象に経時的な変化をより明確にするため、同未消化の基質を用いた半連続式高温消化実験を行った。攪拌強度45rpmにて、H₂添</p>			

京都大学	博士 (工 学)	氏名	LI CHENCHEN
<p>加量を 0 から 2.4L/day まで増加させたところ、CH₄ 濃度は平均で 52% から 56% まで上昇し、攪拌強度を 135rpm まで高めると 60% まで上昇した。本条件で、H₂ 添加量を 7.2L/day まで上昇させると CH₄ 濃度は 75.7% まで上昇し、一定の高品質化が達成された。しかし、9.6L/day の H₂ 添加により汚泥中に揮発性有機酸が蓄積し、ガス生成が停止したことから、本条件で、H₂ 添加量に上限があり阻害を引き起こすことが示された。</p> <p>8 章では、これら一連の結果が総括され今後の課題や展望が示されている。</p>			

氏名

LI CHENCHEN

(論文審査の結果の要旨)

本論文は、再生可能エネルギーの余剰電力を水素に転換して貯蔵・利用する Power to Gas 概念に基づいて、有機性廃棄物の嫌気性消化プロセスへ水素(H₂)を添加することにより、 $\text{CO}_2 + 4\text{H}_2 \rightarrow \text{CH}_4 + 2\text{H}_2\text{O}$ の反応を生物化学的に生じさせることによりバイオガス中のメタン(CH₄)濃度を上昇させ、高品質化することを検討した論文であり、得られた主な成果は以下の通りである。

1. 本研究で用いた4種類の嫌気性消化汚泥(下水汚泥、食品廃棄物汚泥)に対して微生物群集解析を行い、基質によらず中温嫌気性汚泥については、*Methanosaeta* 属が優占種であり、酢酸資化 CH₄ 生成が主たる経路になること、一方で、高温嫌気性汚泥については *Methanothermobacter* 属が優勢な古細菌であり、水素資化性 CH₄ 生成が主たる経路になることを推測し、微生物群集については基質よりも嫌気性消化温度の影響が大きいことを明らかにした。

2. 下水汚泥を対象に H₂ 添加量を変化させた中温・高温消化バッチ実験を行ったところ、H₂ 添加により汚泥の固形物組成は変化せず、CO₂ と H₂ との反応が生じ CH₄ の上昇が確認できたことから生物化学的な反応により CH₄ が生成することを明らかにした。この時の H₂ 消費速度は中温で 8.9~11.2 mL/(g_{vs}・h)、高温で 33.0~34.1mL/(g_{vs}・h)であったが、汚泥に対し 1.0~1.5 倍体積を超える H₂ 添加により、酢酸生成およびその酸化阻害が生じることを示した。

3. 食品廃棄物汚泥を対象に、H₂ 添加量を変化させた中温・高温消化バッチ実験を行ったところ、H₂ 消費速度は中温で 36.5~39.1mL/(g_{vs}・h)であり、高温で 29.8~31.7mL/(g_{vs}・h)であった。特に高温では汚泥に対し 1.5 倍体積を超える H₂ 添加により、消化阻害が確認されたが、pH 調整、CO₂ 添加、および振とう方法の変化により阻害は軽減され、基質による違いが明確化された。

4. 食品廃棄物汚泥を対象に、同未消化の基質を用いた半連続式高温消化実験を行ったところ、攪拌強度の 135rpm、H₂ 添加量の 7.2L/day の条件下で安定な運転が可能で、かつ CH₄ 濃度は 75.7%まで高品質化された。しかし、9.6L/day の H₂ 添加により汚泥中に揮発性有機酸が蓄積し、ガス生成が停止したことから阻害が生じ、H₂ 添加量に上限があることが示された。

以上、本論文は有機性廃棄物の嫌気性消化プロセスへの H₂ 添加によりバイオガスを高品質化できることを示した。本成果は、バイオガス中に含まれる CO₂ のみならず、動脈産業から排出される CO₂ の生物化学的メタン化への適用も期待され、学術上のみならず、實際上寄与するところが少なくない。よって、本論文は博士(工学)の学位論文として価値あるものと認める。また、令和3年2月24日、論文内容とそれに関連した事項について試問を行って、申請者が博士後期課程学位取得基準を満たしていることを確認し、合格と認めた。なお、本論文は、京都大学学位規程第14条第2項に該当するものと判断し、公表に際しては、(令和3年9月23日までの間)当該論文の全文に代えてその内容を要約したものとすることを認める。

要旨公開可能日： [令和3年 4月 1日以降](#)