

学位論文要旨 (Summary of the Doctoral Dissertation)	
学位論文題目 (Dissertation Title)	Determination of Optimum Operating Condition for High Performance of Both Power Generation and Organic Removal in Dual-Chamber Microbial Fuel Cell 二槽型微生物燃料電池における発電量と有機物除去双方の高効率化のための最適運転条件の検討
氏名(Name)	GANJAR SAMUDRO
<p>現在、人口の増加がエネルギー需要を押し上げているが、各種エネルギーは今日において、人類の持続のために必要不可欠なものである。現状において採択されているSDGs 2030の目標とのその関連で、ある部門が他の関連部門の負担を増加させ、廃水発生量を増加させるため、利用可能な廃水処理施設に十分にアクセスできない国もあり大きな問題となっている。この環境問題に対処するために総合的な視点から俯瞰すると、水・エネルギー・食糧問題と強い因果関係のあるエネルギーと水環境の改善は、実質的に経済的・生態学的利益を構築するための高い連動性を持っており、今日において世界的に大きな注目を集めている。</p> <p>前述のような問題の解決に対応するため、昨今、グリーン（環境）ラベル製品の生産実現への努力と代替エネルギーコンバーター一体型廃水処理装置の開発が盛んに行われており、これは多くの国々において、科学者や実業家の支持を受け、ユーザーや環境に配慮した自然に回帰するというコンセプトの下で、安価にすべての人々に提供可能な技術を求めて競争が行われている。</p> <p>単体コンバーター技術は従来技術として知られているが、これは他に付加価値を持たない細分化されたシステムである。本研究の目標は、あらゆる利点を備えた完全統合型システムを開発する機会を開くことに貢献することである。環境問題を解決し、同時に人の生活にも役立つ技術として期待されているのが、バイオエレクトロケミストリーシステム（BES）の一部である微生物燃料電池（MFC）である。このMFCは電気活性（生産）細菌（EAB）という有機物や無機物を還元して発電することができる優れた生体触媒により、従来の廃水処理に容易に対応でき、エネルギー生産だけでなく環境修復の面でも大きなメリットを有する。しかし、MFCを実用化（実プラントに適用）する際には、まずはMFCに影響を与える様々な要因を明らかにする必要がある、広く条件を検討する必要がある。そこで、本研究ではMFCを本格的に普及させるために、最適な運転条件を得るための検討を行った。</p> <p>空気陰極（エアカソード）単室型微生物燃料電池（AC-SCMFC）の性能的欠点は、複数の要因によって生じる可能性があり、保持時間（RT）はその要因のうちの1つである。同じ条件下で特定の試験によって得られた結果から理想的な滞留時間を結論づけることは一般に困難であるため、様々なタイプの微生物燃料電池（MFC）に対して最適なRTを決定するために、有機物除去と発電の主要なパラメータに基づいて、基質の種類と濃度の異なるAC-SCMFCリアクター（バッチモード）の運転結果を比較することにより実施した。AC-SCMFCリアクターは有効容量500 mLで設計されており、本研究ではバッチモードで52日間運転を行った。実験条件は、本リアクター（100 Ω 抵抗に接続されデータロガーに接続された2つのグラフェンナノプレート（GNP）ベース電極を備える）を用いて、スクロースと酢酸の2種類の基質についてそれぞれ400、1000、2500 mg/L（そ</p>	

それぞれ低濃度、中濃度、高濃度）という3種類のCOD（化学的酸素要求量）レベルを設定した。実験結果から、中濃度のCODレベルでは、スクロース基質の場合の最適なRTは24時間、酢酸の最適なRTは48時間であった。一方で、低濃度および高濃度CODレベルでの実験結果からは、最適なRTを決定することが困難であった。これらの結果から、いずれの基質濃度においてもRTを24時間とすることで総合的な性能向上が見込まれることが示された。本実験で確立した最適なRTは、あらゆるタイプのMFC、特に酸化性または生分解性の有機領域で適用でき、高い性能を確保できることが期待される。

微生物燃料電池（MFC）の性能を向上させる重要な要素の一つに、リアクターの設計と構成がある。そこで、本研究では前述のAC-SCMFCに加えてダブルアノードチャンバーを備えたデュアルチャンバー型微生物燃料電池（DAC-DCMFC）の性能に影響を与える要因とその影響を把握・評価するための実験を実施した。DAC-DCMFCの主要な構造は、セパレータとカソードチャンバーを備えた2つのアノードチャンバーコンパートメントで構成されている。DAC-DCMFCは8日間（馴化期間から60日後に8日間）にわたって並行して運転を行った。運転に際して、人工廃水として基質としてスクロースを用い、異なる有機物負荷（OLR）で間欠的にポンプにより送液した。適用したOLRは $0.4 \text{ kg}\cdot\text{m}^{-3}\cdot\text{d}^{-1}$ から $2.5 \text{ kg}\cdot\text{m}^{-3}\cdot\text{d}^{-1}$ まで低、中、高の3パターンで調整し、さらに、正極材が異なるタイプ1とタイプ2を用いた。pH、温度、酸化還元電位（ORP）、OD600、化学的酸素要求量（COD：クロム法）、全有機炭素（TOC）について測定した。実験結果から、発電量は最大 $866\pm 44 \text{ mW}/\text{m}^2$ 、体積出力密度 $5.15\pm 0.26 \text{ W}/\text{m}^3$ 、クーロン効率84%が得られた。同時に、この中パターンのOLRにおけるCODおよびTOC除去率は、60～80%の範囲を達成し、このパターンのOLRは、DAC-DCMFCの発電量と有機物除去率を両立させることのできる範囲であることが示唆された。これにより、様々な有機物負荷に対応できるDAC-DCMFCは、アノードチャンバーを2つに分離することで、第1段で高濃度に対応し、第2段で中低濃度に対応することができ、良好な発電量も得られることが示された。これらの情報はMFC研究に対する知見の集積という面からも有益であると考えられる。

以上の2つの実験によって、①得られた最適なRTは、あらゆるタイプのMFC、特に酸化性または生分解性の有機領域で適用でき、高い性能（排水処理効率と発電効率）を確保できることが期待でき、②様々な有機物負荷に対応できるDAC-DCMFCは、アノードチャンバーを2つに分離することで、第1段で高濃度に対応し、第2段で中低濃度に対応することができ、さらに良好な発電量も得られることが示された。

以上から本研究の有用性が示されたと考えられる。

<h2>学 位 論 文 要 旨</h2> <p>(Summary of the Doctoral Dissertation)</p>	
学位論文題目 (Dissertation Title)	Determination of Optimum Operating Condition for High Performance of Both Power Generation and Organic Removal in Dual-Chamber Microbial Fuel Cell 二槽型微生物燃料電池における発電量と有機物除去双方の高効率化のための最適運転条件の検討
氏 名 (Name)	GANJAR SAMUDRO
<p>Population growth drives the demand for energy, which is the most pressing human need today. It puts pressure on other related sectors and increases wastewater production, which is a big problem in some countries that is inaccessible to available wastewater treatment facilities. Concerning the SDGs 2030 target, which mentions integrated sectors to deal with environmental issues, energy, and water as a part of the water-energy-food nexus have a high linkage to build substantial economic and ecological benefits. Therefore, they become the core attention of the world at this moment.</p> <p>To deal with the problem solving mentioned above, nowadays, an alternative energy converter integrated wastewater treatment has been massively developed to achieve green label production of products. Many countries, favored by their scientists and practitioners, compete to find technology that is user-friendly, eco-friendly, back-to-nature concept, inexpensive, and can be accepted in any society stratifications. However, there is an available standalone converter technology known as conventional technology, which is a disintegrated system with no added value. This challenge opens an opportunity to develop a fully integrated system with any advantages. One of the promising technologies needed for solving the environmental problem and simultaneously producing other benefits for human living is a part of the bioelectrochemistry system (BES), which is microbial fuel cell (MFC). It could be easily assisted with the available conventional wastewater treatment, and it gives more benefits not only in energy production but also for remediating the environment through the superior biocatalyst, named electroactive bacteria (EAB), which has an availability to reduce organic and inorganic matter and generating electricity. However, factors affecting MFC have been a drawback in their field application that must be concerned extensively. Therefore, this study accommodates to investigation more in order to get an optimum condition in operation so that the technology could be widely used properly on full scale.</p> <p>The disadvantages of the air-cathode single-chamber microbial fuel cell (AC-SCMFC) performance can be caused by numerous factors, and retention time (RT) is one such factor. It is difficult to conclude the ideal RT run for the specific tests under the same conditions. To determine the optimum RT for various types of microbial fuel cell (MFC), an AC-SCMFC batch-mode reactor was carried out by comparing different types and concentrations of substrates based on the main parameters of organic removal and power generation. The AC-SCMFC</p>	

reactor was designed for the effective working volume of 500 mL and operated for 52 d in batch mode with factors being significantly correlated with the performance of the MFC reactor, which were two different substrates, sucrose and acetate, and three different chemical oxygen demand (COD) levels of 400; 1000, and 2500 mg/L (low, medium, and high, respectively) equipped with two graphene nanoplatelets (GNPs)-based electrodes connected to 100 Ω resistance and plugged onto a data logger. The results of this study indicated a significant pattern at the medium level, at which the optimum RT of sucrose was achieved at 24 h and that of acetate at 48 h. In comparison, the performances pattern at low and high levels of both substrates was insignificant to determine the optimum RT. For further application, the recommended RT for both substrates at any concentration is 24 h due to high overall performance, and the optimum RT established in this study could be applied to all types of MFC research, particularly in oxidizable or biodegradable organic ranges, which ensures high performance.

One of the important factors in enhancing the performance of microbial fuel cells (MFCs) is reactor design and configuration. Therefore, this study was conducted to evaluate the regressors and their operating parameters affecting the double anode chamber–designed dual-chamber microbial fuel cell (DAC-DCMFC) performance. Its primary design consists of two anode chamber compartments equipped with a separator and cathode chamber. The DAC-DCMFCs were parallelly operated over 8 days (60 days after the acclimation period). They were intermittently pump-fed with the different organic loading rates (OLRs), using chemically enriched sucrose as artificial wastewater. The applied OLRs were adjusted at low, medium, and high ranges from 0.4 kg.m⁻³.d⁻¹ to 2.5 kg.m⁻³.d⁻¹. The reactor types were type 1 and type 2 with different cathode materials. The pH, temperature, oxidation-reduction potential (ORP), optical density 600 (OD600), chemical oxygen demand (COD), and total organic carbon (TOC) were measured, using standard analytical instruments. In general, the power production achieved a maximum of 866 \pm 44 mW/m², with a volumetric power density of 5.15 \pm 0.26 W/m³ and coulombic efficiency of 84%. Two-stage COD and TOC removal at medium OLR achieved a range of 60–80%. Medium OLR is the recommended level to enhance power production and organic removal in DAC-DCMFC. The separated anode chambers into two parts in a dual anode chamber microbial fuel cell adjusted by various organic loadings expressed a preferable comprehension in the integrated MFCs for wastewater treatment.

With respect to both studies, RT influences the design and configuration of MFCs, particularly in this regard, modified anode compartment of DCMFCs adapted to the range of oxidizable or biodegradable organics and reactor components towards control and dependent variables provide the simultaneous performance of DCMFCs in organic removal and power generation. In addition, DAC-DCMFC offers an opportunity to achieve optimal conditions in concurrent MFC-assisted wastewater treatment. Therefore, this study is one step closer to understanding the operating conditions comprehensively, which are the dominant factors affecting performance.

(様式 9 号)

学位論文審査の結果及び最終試験の結果報告書

山口大学大学院創成科学研究科

氏 名	Ganjar Samudro
審査委員	主 査： 今 井 剛
	副 査： 関 根 雅 彦
	副 査： 新 苗 正 和
	副 査： 樋 口 隆 哉
	副 査： 通 阪 栄 一
論文題目	Determination of Optimum Operating Condition for High Performance of Both Power Generation and Organic Removal in Dual-Chamber Microbial Fuel Cell (二槽型微生物燃料電池における発電量と有機物除去双方の高効率化のための最適運転条件の検討)
<p>【論文審査の結果及び最終試験の結果】</p> <p>現在脱炭素社会の実現に向けて、再生可能エネルギーの開発が大きな注目を集めている。この再生可能エネルギーの中でも、エネルギーの生産と同時に人の生活にも役立つ技術として期待されているのが、微生物燃料電池（MFC）である。この微生物燃料電池は廃水中の有機物を原料として微生物（電気活性（生産）細菌という有機物や無機物を還元して発電することができる優れた微生物）を使って発電を行うものであり、廃水処理と創エネルギー（発電）を両立できる新システムとして注目されている。しかしながら、微生物燃料電池を実用化（実プラントに適用）する際には、まずは微生物燃料電池に影響を与える様々な要因を明らかにする必要がある。広く条件を検討する必要がある。そこで本研究では、微生物燃料電池を実用化・普及させることを最終目標に、この微生物燃料電池の改良に取り組み、発電量と有機物除去双方の高効率化のための最適運転条件の検討を目的とした。</p> <p>まず、エアカソード型単槽微生物燃料電池を対象として、最適運転条件を検討する際の条件（ファクター）について検討した。その結果、基質の種類とその濃度、滞留時間が重要であることがわかった。実験装置は有効容量 500 mL で設計されており、バッチモードで 52 日間運転を行った。実験条件は、本装置（100 Ω 抵抗に接続されデータロガーに接続された 2 つのグラフェンナノプレート（GNP）ベース電極を備える）を用いて、スクロースと酢酸の 2 種類の基質についてそれぞれ 400, 1000, 2500 mg/L（それぞれ低濃度、中濃度、高濃度）という 3 種類の COD（化学的酸素要求量）レベルを設定し運転した。実験結果から、中濃度の COD レベルでは、スクロース基質の場合の最適な滞留時間は 24 時間、酢酸の最適な滞留時間は 48 時間であった。以上の結果から、いずれの基質濃度においても滞留時間を 24 時間とすることで総合的な性能向上が見込まれることが明らかとなった。</p> <p>次に、ダブルアノード型 3 槽微生物燃料電池を設計・開発した。ダブルアノード型 3 槽微</p>	

(様式 9 号)

生物燃料電池の主要な構造は、セパレータとカソードチャンバーを備えた 2 つのアノードチャンバー (計 3 槽) で構成されている。このダブルアノード型 3 槽微生物燃料電池を用いて馴化期間 60 日後に 8 日間にわたって運転を行った。なお、先の実験結果を踏まえて人工廃水の基質としてスクロースを用い、異なる有機物負荷 (OLR) で運転を行った。適用した有機物負荷は $0.4 \text{ kg} \cdot \text{m}^{-3} \cdot \text{d}^{-1}$ から $2.5 \text{ kg} \cdot \text{m}^{-3} \cdot \text{d}^{-1}$ まで低、中、高程度の 3 パターンで調整し、実験結果から、中程度の有機物負荷における発電量は最大 $866 \pm 44 \text{ mW} / \text{m}^2$ 、体積出力密度 $5.15 \pm 0.26 \text{ W} / \text{m}^3$ 、クーロン効率 84% が得られた。これは文献値と比較して 1.9 倍の値であった。同時に、この中程度の有機物負荷における有機物 (COD) 除去率は、60~80% の範囲を達成した。したがって、中程度の有機物負荷はダブルアノード型 3 槽微生物燃料電池の発電量と有機物除去率を両立できる範囲であることが明らかとなった。また、ダブルアノード型 3 槽微生物燃料電池は、アノードチャンバーを 2 つに分離することで、様々な有機物負荷に対応でき (第 1 段で高濃度に対応し、第 2 段で中低濃度に対応)、さらに良好な発電量も得られることが示された。

以上から本研究の有用性が明らかとなった。

公聴会 (対面と Webinar の同時開催) には国内外から 33 名の参加があり、活発な質疑応答がなされた。公聴会での主な質問内容は、①本研究で実施した微生物燃料電池の実験において実験装置内の微生物として何か特別なものを入れているのか、②比較的lowめの有機物負荷を選んで実験したのはなぜか、また有機物負荷 (有機物濃度) を高くすることは可能か、③微生物はアノードに付着している生物膜とチャンバー内で浮遊している両方についてチェックしているか、④ダブルアノード型 3 槽微生物燃料電池の Type1 と Type2 とは何か、⑤成果として挙げている発電量 1.9 倍とは何と比較してのものか、⑥基質としてスクロースと酢酸を選定した理由は何か、⑦微生物の解析はどのチャンバーで採取したものについて行っているのか、など多数であった。

以上のいずれの質問に対しても発表者からの的確で具体的な回答がなされた。

以上より、本研究は独創性、信頼性、有効性、実用性ともに非常に優れ、博士 (学術) の学位論文に十分値するものと判断した。

論文内容および審査会、公聴会での質疑に対する応答などから、最終試験は合格とした。

なお、主要な関連論文の発表状況は下記の通りである (関連論文: 2 編)。

- 1) Ganjar Samudro, Tsuyoshi Imai, Yung-Tse Hung, Enhancement of Power Generation and Organic Removal in Double Anode Chamber Designed Dual-Chamber Microbial Fuel Cell (DAC-DCMFC), *Water*, 13(21), 2941, 2021.
- 2) Ganjar Samudro, Tsuyoshi Imai, Alissara Reungsang, Determination of optimum retention time in an air-cathode single-chamber microbial fuel cell batch-mode reactor by comparing different substrate types and concentrations, *Process Safety and Environmental Protection*, 162, 694-705, 2022.