


論文審査の結果の要旨

報告番号	博(工)甲第121号	氏名	Obey Gotore
学位審査委員	主査 板山 朋聡 副査 田邊 秀二 副査 村上 裕人 副査 鎌田 海		
<p>論文審査の結果の要旨</p> <p>Obey Gotore 氏は、JICA の ABE Initiative によりジンバブエ共和国から 2017 年 10 月に長崎大学大学院工学研究科博士前期課程に入学し、2019 年 9 月に修了した。その後、同年 10 月に長崎大学大学院工学研究科博士後期課程に入学し、現在に至っている。</p> <p>同氏は、博士前期課程の時にタイの Maejo 大学との共同研究で人工湿地のモデル実験を実施してきた。この時、トウモロコシの芯 (Corn cob) やアフリカ原産の植物からの農業廃棄物などを用いた炭 (バイオ炭) の焼成も現地で実施しており、博士後期課程では、これらを用いた有害物質の吸着除去に着目した研究に主軸を移してきた。特に、排水処理が未発達なアフリカ諸国では各家庭や病院からの排水からは、多く抗生物質が環境中に放出されることで薬剤耐性菌が増殖し、人の健康に大きく影響することが懸念されている。また、開発途上国では重金属もメッキ工場などから未処理で排出されている。このようなアフリカ等の開発途上国の水環境問題に対処するため、現地で入手が容易な未利用の農業廃棄物を原料としたバイオ炭による吸着除去の研究を実施してきた。その結果を、2022 年 7 月に主論文「The Adsorption Analysis of Hazardous Substances by Biochar Derived from Agricultural-based Material Wastes (農業廃棄物由来の生物炭による有害物質吸着現象の解析)」として完成させ、博士 (工学) の学位を申請した。長崎大学大学院工学研究科教授会は、2022 年 7 月 20 日の教授会において論文内容等を検討し、本論文を受理して差し支えないものと認め、上記の審査委員を選定した。委員は主査を中心に論文内容について慎重に審議し、公開論文発表会を実施し最終試験を行い、論文審査および最終試験の結果を本書面をもって 2022 年 8 月 17 日の工学研究科教授会に報告することとした。</p> <p>学位論文の適合性を審査したところ、学位論文の印刷公表論文 4 編 (うち審査付き論文 4 編)、が学位論文を構成していることが認められ、適合性ありと判断した。なお、参考論文には、その他の論文 2 編 (うち審査付き論文 2 編) も含まれている。</p> <p>本論文の第 1 章では、研究目的について背景とともに記述し、第 2 章では、バイオ炭の排水処理などのへの応用、特に今回の研究の主軸である抗生物質吸着に関する既往研究、さらに吸着現象解析のための統計解析 (非線形回帰) の問題点と新たなベイズ統計解析の基礎についてレビューを実施している。</p> <p>第 3 章では、長崎の島原の農家から取得した廃棄トウモロコシの芯を原料に電気炉でバイオ炭を焼成し、焼成温度や時間によるバイオ炭の特性の違いを詳細に解析している。まずは、物理化学的な基本特性として、走査電顕による構造観察、元素解析、赤外分光法 (FTIR) による官能基</p>			

解析などを実施している。さらに、ヨウ素吸着法による表面積推定を実施している。その上で、フルオロキノロン 抗生物質であるデラフロキサシン (DFX)、シプロフロキサシン (CFX) の吸着特性として、等温吸着平衡特性を解析している。DFXはフルオロキノロン系の第5世代抗生物質であり、今後の環境汚染が懸念される抗生物質である。そのため、バイオ炭による吸着の研究例は自身が共著となっている論文が世界で最初であり、今回の研究は2例目である。これは論文“Adsorption analysis of Ciprofloxacin and Delafloxacin onto the Corn cob Derived-Biochar Under Different Pyrolysis Conditions (Journal of Biomass conversion and biorefinery)” (アクトセプト済み) で報告されている。主な成果として、通常のバイオ炭の焼成温度である600°Cや700°Cに比べて、高温の900°C 2時間の焼成では、Corn cob炭は表面積、さらに、CFXやDFXの吸着量が、非常に高くなっていること、さらに、CFXやDFXとの吸着相互作用も大きくなっていることを発見している。この原因は、微量に混入する酸素により、微細孔が急速に増加したこと、また、CFXやDFX分子と相互作用するカルボシル基などが増加することで吸着力も増加したこと関係していることを見出し、FTIRの結果とも整合性のある物理化学的な見地からの吸着機構推定に成功している。一方で、実用的見地からは、他の研究では賦活化剤を用いる表面改質により吸着容量を増加させたが、本研究では温度条件と微量な酸素の混入が可能な焼成ということで実現し、開発途上国で有用なバイオ炭の生産法への示唆を与えている。また、以上の実験結果解析では、従来の吸着現象の研究では統計学的に不適切な扱いがなされてきた部分があり、統計学的に正しい手法としてベイズ統計による非線形回帰に基づく統計的推論を導入し、その有効性を示すことで解析手法を刷新したことも、非常に新規性が高い部分として評価できる。

第4章ではCorn cobによるバイオ炭の六価クロムの吸着に関する研究成果がまとめられている。ベイズ統計を用いた解析の結果、6価クロム(陰イオン)の吸着に関しても、吸着容量は、バイオ炭焼成の温度と時間の長いほうが増加する結果であり、3章の表面積の増加によることで説明ができた。しかし、吸着相互作用は、温度が上昇すると増加し、焼成時間が長いと増加するという結果となっており、FTIRの結果や、CaやMgなどの元素などの影響などからも考察され、また既往研究で提案されているバイオ炭表面の官能基が電子供与体となることで6価クロム(陰イオン)が還元され3価クロム(陽イオン)になることなどの影響も考察されているが、本研究の解析結果だけでは説明できず、今後の課題となっている。

第5章では、南アフリカ原産のマタンバ果実の殻や、ムシュマと呼ばれる木の皮がタイ国のMaejo 大で入手されたので、それを現地で焼成(600°C)したバイオ炭の物理化学的性質やヨウ素吸着などの基礎的特性解析を実施している。その結果、両者とも、Corn cob炭でみられた官能基はFTIRによる測定で検出されたが、電顕観察では表面形態は大きくことなり、植物組織構造を反映している結果となった。また、吸着速度はマタンバ果実殻炭や、ムシュマ木皮炭もほとんど同じであったが、Corn cob炭に比べて吸着速度は速く、一方で、吸着容量(表面積)は小さいことが判明した。これを原料としたバイオ炭の研究結果は最初の報告であり、次の掲載済み論文にまとめられている。

Obey, G., Adelaide, M., Ramaraj, R. (2021). Biochar Derived from Non-customized Matamba Fruit Shell as an Adsorbent for Wastewater Treatment. Journal of Bioresources and Bioproducts. Vol .7, 2, pp. 109-11

Gotore Obey, Mushayi Vadzaniyi, Rameshprabu Ramaraj, Gochayi Lovemore, Itayama Tomoaki (Accepted, 2022.5). Adsorption Studies of Iodine Removal by Low-cost Bioinspired Mushuma and Mupane bark Derived Adsorbents for Urban and Rural Wastewater Reuse. (International Journal of Human Capital in Urban Management)

Gotore Obey, Nakagoe Osamu, Rameshprabu Ramaraj, Manivannan Arthi, Tomoaki Itayama., (2022). Iodine Adsorption Isotherms on Matamba Fruit Shell Stemmed biochar for Wastewater Re-use Strategy in Rural Areas Owing to Climate Change. Chemosphere, Vol. 303, 2, 135126

以上のように本論文では、世界的問題である抗生物質汚染や、開発途上国で未だに深刻な重金属汚染対策に有効な吸着除去に関する上で貴重な知見を与える新たな成果を得ている。また、統計学的には不備がありつつも用いられたきた従来の解析方法の問題点に着目し、データ解析手法としてベイズ統計を適用することで改善していることも、本研究の特徴であり独創性のある成果である。そのため、本研究は新規性及び独創性があり、高い学術的価値を有するとともに、実際の環境改善へ向けての応用的価値も高い研究と評価できる。

学位審査委員会は、Obey Gotore 氏の研究（成果）が工学の分野において極めて有益な成果を得るとともに、水環境工学の進歩発展に貢献するところが大きく、博士（工学）の学位に値するものとして合格と判定した。