

ゼロエミッションのための汚泥の工業原料化技術

中崎 清彦・安達 友彦

摘 要

多くの産業で排水処理施設から大量の汚泥が排出されている。汚泥を工業原料に変えて他の産業で使用するネットワークの構築はゼロエミッションへの一段階である。本研究では排水処理過程で排出される汚泥から生分解性プラスチックの原料である L-乳酸の生成を試みた。製紙工場から排出される汚泥はセルロースの含有量が高く、糖化と発酵の組み合わせで L-乳酸の生成が可能であること、また、セルロースの糖化にともなって生成するグルコースによる酵素反応阻害の低減には同時糖化発酵法の適用が有効であり、温度 40 °C、pH5.0 の最適条件下で 9.77 g/L の高濃度 L-乳酸が生成できることを明らかにした。

キーワード：ゼロエミッション，汚泥，L-乳酸，ポリ乳酸，生分解性プラスチック

1. はじめに

近年，環境への物質およびエネルギーの排出，すなわちエミッションを限りなくゼロに近づけることをめざしたゼロエミッションの考え方が提案されているが，エミッション低減のためには，業種をこえて資源・廃棄物・廃棄エネルギー利用のためのネットワークを形成する方法が有効と考えられる。ある業種から排出された廃棄物は，そのままの形で他の業種の原料とすることができる場合もあるが，反応，分離，あるいはその両者の組み合わせで他の業種の原料として利用することができるものも多いと期待される。中でも汚泥は排出量が多く，種類によっては有機物を豊富に含むが，わずかな量のみがコンポストとして農業利用されているにすぎないのが現状である。本研究では汚泥中の多糖類を乳酸菌の作用で L-乳酸に変換し，これを重合して生分解性プラスチックであるポリ乳酸を作成することで，汚泥をプラスチック工業の原料として利用することをめざしている¹⁾。汚泥の種類は様々で多糖類含有量も汚泥によって大きく異なる¹⁾が，製紙汚泥は都市下水の汚泥と同様に多糖類としてセルロースの含有量が特に高いことが知られている。

セルロースを始めとする多糖類は地球上に多量に存在する未利用木質資源の有効利用に見られるように従来から強い関心が寄せられてきた。未利用木質資源に含まれるセルロースから燃料としてのアルコールを生産する試みについては膨大な数

の報告がある^{e.g. 2-6)}。また，セルロースからアルコールを生産するときには，一旦，中間体としてグルコースを経由するために，セルロースから乳酸を生産することの着想も容易であり，実際にいくつかの研究例が報告されている^{7,8)}。しかしながら，未利用木質資源のような廃棄物中のセルロースから生成した乳酸は，従来，その用途に適正なものが見当たらず，実用化に向けての検討は進められてこなかった。これは，未利用木質資源からアルコールを生成し，燃料として利用するプロセスの普及を妨げるものが，主としてコスト高の問題であったことと異なっている。近年になって，乳酸は生分解性プラスチックであるポリ乳酸の原料として用いる新しい用途が考えられるようになり，廃棄物から生成された乳酸にも大きな需要の生まれる可能性がでてきている。

生分解性プラスチックは，使用後は環境中で微生物の作用によって炭酸ガスと水にまで分解されるので環境調和型の材料として，近年，多くの種類が開発されるようになってきた⁹⁾。特に，生分解性プラスチック製の生ごみ袋は，集めた生ごみと一緒にコンポスト化できるので生ごみのリサイクルを促進するとして大きな期待を集めている¹⁰⁾。現在，生分解性プラスチックは製造コストが高いことが本格的普及を妨げているが，原料に安価なものをを用いるプロセスが開発されれば，コスト低減が可能になり，生分解性プラスチックも広く普及することが考えられる。本研究では汚泥からポリ乳酸の原料となる L-乳酸を生成することの可能

2000年4月1日受付，2000年10月31日受理

* 静岡大学工学部物質工学科，〒432-8561 静岡県浜松市城北3-5-1

性について検討することを目的とした。

2. 実験方法

2.1 汚泥中に含まれる糖濃度の測定汚泥は製紙工場の排水処理過程で発生したものをを用いた。含水率が 49.9%，乾燥固形物のうち有機物の

含有率が 70.7%，炭素，水素，窒素の元素分析値が，それぞれ 33.1，4.86，0.51%であった。なお，再現性のある結果を得るため，汚泥は 105 で 2 日間乾燥させ保存可能な状態にしておいて，一連の実験に同一のものをを用いた。乾燥させた汚泥は超遠心粉碎機（ZM100，三田村理研工業製）で 0.5mm 以下に粉碎してから実験に使用した。

乳酸菌の最も利用しやすい糖の一つがグルコースであることから，汚泥中のグルコース濃度および加水分解によってグルコースに変換可能な多糖類の濃度を測定した。汚泥中のグルコース濃度の測定には，乾燥汚泥に 9 倍量の蒸留水を加えて 2.5 時間煮沸し，孔径 0.45 μm のメンブレンフィルターでろ過したものをを用いた。グルコース濃度は測定キット（Glucose C- test WAKO，和光純薬工業製）を用いて定量した。ここで用いた測定キットは酵素反応を利用したもので，ムタロターゼとグルコースオキシダーゼがグルコースと反応して生成する過酸化水素によって色素を発色させ，発色の強さを 505nm の吸光度で測定することによってグルコース濃度を求めることができるしくみになっている。一方，加水分解でグルコースに変換される汚泥中多糖類の濃度は，汚泥を酸で加水分解したときに生成するグルコースの濃度を測定することで定量した。加水分解はコンポスト中のセルロース濃度を測定するために考案された井の子らの方法¹¹⁾を改良して用い，乾燥汚泥 1.25g に 80% 濃硫酸を 5mL 加え 13~15 で 2.5 時間静置後，175mL の蒸留水を加えて 5 時間煮沸することによっておこなった。加水分解後の溶液はメンブレンフィルターでろ過し，グルコース濃度を上述の測定キットを用いて定量した。

なお，この測定法の妥当性は，加水分解によってグルコースに変換される多糖類としてセルロース粉末の既知量を汚泥に加えたときに，ちょうどその量に相当するだけグルコース濃度が高くなることから確かめている。

2.2 酵素による汚泥中多糖類の加水分解

汚泥にセルラーゼを作用させることによって汚泥中に含まれるセルロースを加水分解した。セルラーゼは明治製菓から提供されたメイセラゼ（Meicelase CEPB-5081，明治製菓製）を用いた。

メイセラゼは *Trichoderma viride* 由来の酵素で 37 にあるとき 6180 U/mg (1 分で 1 g の濾紙が完全に崩壊する活性が 1000 U) の活性を持っている。乾燥後，粉碎した汚泥 30g を 0.1% セルラーゼ溶液 500mL 中に懸濁し，0.1N HCl を用いて pH を 4.5 に調整し，温度 45 で 7 日間反応させた。なお，7 日間の反応中に生成したグルコースが汚泥中の微生物によって消費されてしまうことを避けるために，汚泥はあらかじめ線を照射し，滅菌してから用いた。線の照射条件は 10kGy/h で 3 時間とした¹²⁾。また，この条件の線照射でグルコースは生成しないことを確かめている。反応経過にともない適当時間間隔で汚泥の糖化液を採取し，糖化液中に含まれるグルコース濃度を測定した。また，すべての操作は無菌的におこなった。

2.3 乳酸菌の単離

乳酸菌は汚泥から以下の方法で単離した。まず，汚泥を滅菌水で適宜希釈し，炭酸カルシウムを添加した乳酸菌用寒天培地上¹³⁾に塗抹して，32 で 7 日間培養の後にコロニーの周りにクリアゾーンを形成させる方法で酸生成菌をスクリーニングした。この方法を用いることで酸生成菌を他の微生物から容易に識別することができる。次に，このようにして得た酸生成菌は GYP 寒天培地上（組成 [培地 1L あたり]：yeast extract 10g，peptone 5g，glucose 10g，sodium acetate trihydrate 2g，Tween 80 solution 10mL，salt solution 5mL）で純化し，4 の条件で保存した。純粋培養した酸生成菌は GYP 液体培地を用いて培養し，培養液中に生成される L-乳酸濃度を測定した。L-乳酸濃度の測定には測定キット（F-キット L-乳酸，ロシュ・ダイアグノスティクス製）を用いた。この測定キットは NAD が結合した L-乳酸脱水素酵素と L-乳酸の酵素反応を利用したもので，反応の結果生成される NADH を 340nm の吸光度で測定し，L-乳酸の濃度を定量するしくみになっている。汚泥から単離した酸生成菌のうち，乳酸を最も高濃度に生成した乳酸菌 LA1 株を引き続く乳酸生成実験に用いた。なお，LA1 株が生成する乳酸をゲルパックカラム GL-C610H-S を用いて，UV-VIS 検出器を備えた高速液体クロマトグラフィー（L-7000 シリーズ，日製産業製）で定量したところ，測定された全乳酸濃度は上記測定キットで求めた L-乳酸濃度とほぼ一致し，生成される乳酸のほとんどが L-乳酸であることを確かめている。

なお，ここには詳細を示さないが，LA1 株は 180g/L もの高いグルコース濃度の条件下で増殖が可能であるばかりでなく，培養初期の乳酸生成活

性は 0.24g/L/h と高く、従来報告のある菌株¹⁴⁻¹⁷⁾と同等の活性を持っていることを予備実験から確かめている。

2.4 セルラーゼと乳酸菌の活性の最適条件

セルロースから乳酸を生成するときには、セルロースを一旦加水分解して糖化する必要があるが、セルロースの糖化に際してはセルラーゼがその反応の結果生ずるグルコースによって生成物阻害を受けるのを避けるために、糖化と発酵が同時に同一の容器内でおこる同時糖化発酵を適用することにした。適用に先だって、本研究のセルラーゼと乳酸菌の活性のための最適条件について検討した。

酵素活性の pH 依存性を確かめるために、0.1M クエン酸・クエン酸ナトリウム水溶液の組成を変えることで pH を 3.5, 4.0, 4.5, 5.0, 5.5 の 5 通りに変えた緩衝液を作成した。この緩衝液に粒子径 200 ムッシュ以下のセルロース粉末を 20g/L になるように懸濁し、セルラーゼを 0.1% の濃度になるように添加して、シェーカー (TA-12R, 高崎科学器械製) を用いて 180 rpm で振とうさせながら、35 で 4 時間反応させた。時間経過にともなって 30 分おきに糖化液を採取し、生成したグルコースの濃度を測定した。また、セルラーゼ活性の温度依存性は pH を 4.5 の一定とし、温度を 35, 40, 45, 50, 55 の 5 通りに変化させて検討した。なお、セルラーゼ活性は、反応初期のグルコース生成曲線の傾きとして定量した。

乳酸菌 LA1 株の乳酸生成活性を確かめるためには硬質ガラス製のジャーフェルメンタ (M-100, 東京理化学器械製) を備えた培養システムを用いた (図 1 参照)。この培養システムでは、培養期間中温度が一定となるように制御するとともに、pH スタットを用いて 1N 硫酸、および 5N 水酸化ナトリウム

水溶液を自動的に滴下させることで pH を一定に制御するしくみになっている。LA1 株による乳酸生成活性の pH 依存性を確かめる実験では培養温度を 35 の一定とし、pH は 4.0, 5.0, 6.0, 7.0 の 4 通りに変化させた。また、温度依存性は pH を 6.0 の一定とし、培養温度を 30, 35, 40 の 3 通りに変化させて検討した。なお、乳酸生成活性は、培養開始 24 時間後までに生成された乳酸濃度として定量した。

2.5 同時糖化発酵法による乳酸生成

同時糖化発酵 (SSF) には上述のジャーフェルメンタを備えた培養システムを用い、汚泥はジャーフェルメンタ中に仕込んだときに攪拌可能な濃度として約 60g/L となるように、乾燥後、粉碎した汚泥を蒸留水中に懸濁した。なお、乳酸菌の活性を維持する目的で、汚泥溶液中に酵母エキスとペプトンをそれぞれ 10g/L、および 5g/L の濃度となるように添加し、オートクレーブ処理した。添加した酵母エキスとペプトンからは乳酸が生成されないことを酵母エキスとペプトンのみを基質とした実験から確かめている。オートクレーブ処理の後、汚泥溶液の pH を 5.0 に調整し、乳酸菌 LA1 株を接種した後、セルラーゼを 0.1% 濃度となるよう添加した。LA1 株は GYP 寒天培地上で 32 時間前培養して形成したコロニーを無菌のスパテルで集菌し、滅菌済みの生理的食塩水に懸濁したものをを用いた。ジャーフェルメンタ内の攪拌速度は 300rpm とした。汚泥溶液の pH は、pH スタットを用いて培養期間中一定の 5.0 に制御した。同時糖化発酵における温度の影響を検討するために培養温度を 30, 35, 40, 45 の 4 通りに変化させた実験をおこなった。なお、いずれの実験も培養期間は 72 時間とし、培養経過にともなって適当時間間隔でサンプルを採取して、溶液中のグルコース、および L-乳酸濃度を測定した。また、溶液中の菌体濃度を 24 時間おきに希釈平板法を用いて測定した。

3. 結果と考察

3.1 汚泥中に含まれる糖類

汚泥そのものからはグルコースは検出されなかった。これはグルコースがどの微生物にとっても分解され易い有機物であることから、もし排水中に含まれていたとしても汚泥が生成する排水処理の過程で容易に消費されたものと考えられることができる。なお、加水分解前の汚泥に乳酸菌を接種しても乳酸は生成されないことを確かめている。一方、濃硫酸を用いた加水分解によってグルコース

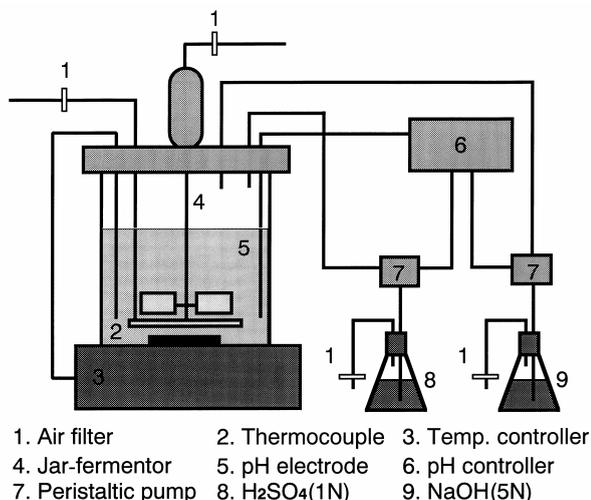


図 1 培養システムの概略図

に変換可能な多糖類は、乾燥汚泥重量基準で 33.3% の高濃度に含まれていることがわかった。よって、汚泥を糖化した後に乳酸菌を接種するという方法で、乳酸の生成が可能と期待された。本研究で使用した汚泥は多糖類を高濃度に含むが、これは排水処理汚泥としては特殊なものといってよい。上述したように汚泥中の窒素の分析値が 0.51% と極めて小さいことを考えあわせると、この汚泥は製紙工程で排水中に流出し、排水処理施設に流入したセルロース成分を多量に含むのではないかと考えられた。

3.2 汚泥中セルロースの加水分解

汚泥中にはセルロースが多量に含まれていることが期待されたので、セルラーゼを作用させてグルコース生成を試みた。酸を用いた加水分解では

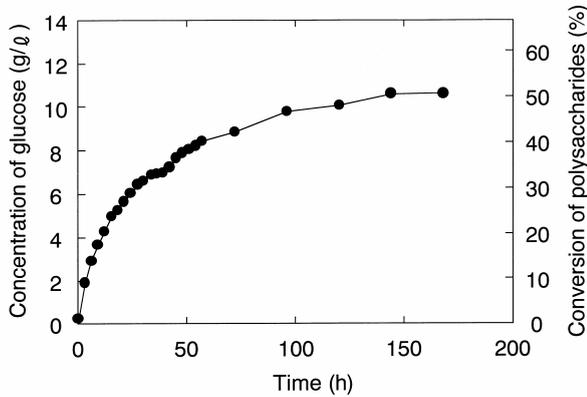


図 2 汚泥をセルラーゼで加水分解したときのグルコース濃度および多糖類分解率の経時変化

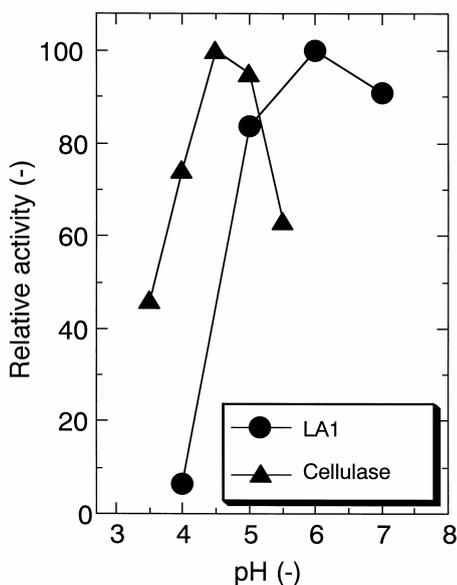


図 3 セルラーゼ活性と LA1 株による乳酸生成活性の pH 依存性

次の発酵段階に移行するときには中和が必要で、中和によって塩濃度が高くなると乳酸発酵が阻害されることが考えられたので酵素を用いた加水分解をおこなった。汚泥をセルラーゼで加水分解したときのグルコース濃度および多糖類分解率の経時変化を図 2 に示す。多糖類分解率は、濃硫酸処理することによって生成するグルコース量に対して、酵素処理でそのときまでに生成したグルコース量の比と定義した。グルコース濃度は、酵素反応に典型的な飽和曲線に沿って 30 時間付近までは急激に増加したが、それ以降は傾きが緩やかになり、実験終了時の 7 日後にはグルコース濃度は 10.6g/L となった。このときの多糖類分解率は約 51% と計算された。セルラーゼを用いたときに酸で加水分解したほどにはグルコースが生成しないのは、生成したグルコースによるセルラーゼ活性の阻害、セルラーゼの失活、汚泥中の多糖類がセルロース以外のものを含んでいる可能性などが考えられた。

3.3 セルラーゼと LA1 株の活性の最適条件

セルラーゼ活性と LA1 株による乳酸生成活性の pH 依存性を図 3 にまとめた。いずれの活性も最大の活性値を 100 とした相対活性で示した。セルラーゼ活性が最大になるのは pH が 4.5 付近のときであり、その前後で活性が低下するつりがね型の pH 依存性を示した。また、LA1 株は pH が 4 付近では極めて活性が低く、pH が大きくなると活性は次第に増加して 6 付近で最大となり、6 を越えると再び低くなる傾向を示した。セルラーゼ活性と LA1 株による乳酸生成活性のための最適 pH は一致せず、

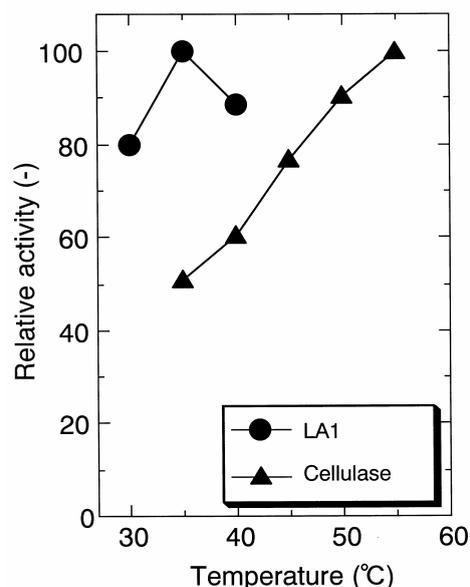


図 4 セルラーゼ活性と LA1 株による乳酸生成活性の温度依存性

両者の活性を同時に高く維持する pH の値は 5.0 付近の比較的狭い範囲にあることが明らかになった。

セルラーゼ活性と LA1 株による乳酸生成活性の温度依存性を図 4 にまとめた。セルラーゼ活性は実験した温度の範囲内では、温度が高いほど高く、55 付近が最適となることがわかった。しかしながら、ここには詳細を示さないが、45 を越えた条件では時間の経過とともにセルラーゼは急速に失活し、活性が著しく低下することが予備実験から確かめられており、長時間セルラーゼを作用させる場合には温度は 45 以下が適していると考えられた。一方、LA1 株による L-乳酸生成のための最適温度は 35 付近に存在し、40 では 35 に比べてやや活性が低下し、45 ではもはや LA1 株は長期間に渡っては生育できないことを確かめている。以上の結果、セルラーゼと LA1 株の活性のための最適温度も、最適 pH と同様一致しないが、両者の活性を同時に高く維持する温度は 35~40 にあることがわかった。

3.4 同時糖化発酵法による L-乳酸生成

培養温度 30 , pH5.0 の条件でおこなった SSF におけるグルコース、L-乳酸、および LA1 株濃度の経時変化を図 5 に示す。LA1 株濃度は、培養初期にわずかに増加した後、培養期間中 $10^{9.5}$ CFU/mL 付近の高濃度に維持された。培養初期の LA1 株の増殖量が少ないのは、初期接種濃度が高いため、

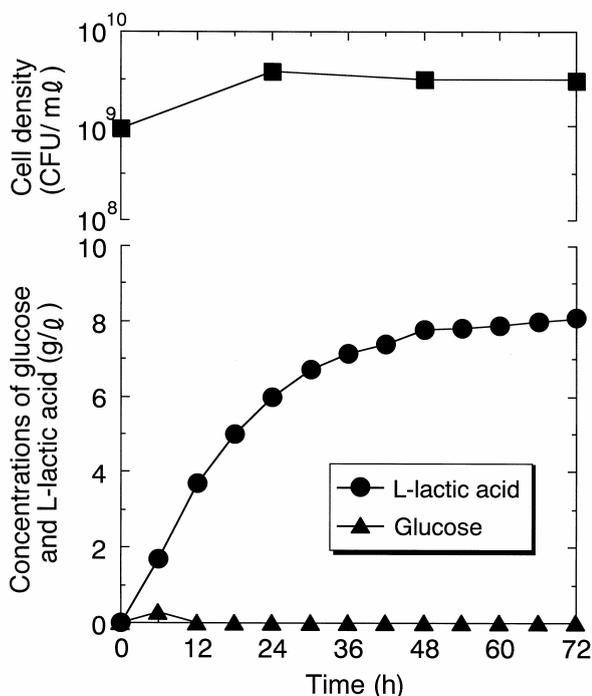


図 5 培養温度 30 , pH5.0 の SSF におけるグルコース、L-乳酸、および菌体濃度の経時変化

生成するグルコースのできるだけ多くを乳酸に変換したいという目的によくかっている。グルコースは培養 6 時間後にのみ検出され、それ以降は検出されなかった。培養 6 時間以降も L-乳酸は生成され続けることから、糖化によって生成されたグルコースは直ちに L-乳酸に変換されていることがわかる。すなわち、培養初期のごく短時間を除いて、糖化反応が汚泥からの乳酸生成反応全体の速度を制限しているということが出来る。また、最終的な L-乳酸濃度は 8.10g/L となった。

培養温度 45 , pH5.0 の条件でおこなった SSF におけるグルコース、L-乳酸、および LA1 株濃度の経時変化を図 6 に示す。菌体濃度は培養経過とともに次第に低下して、最終的に 10^8 CFU/mL 付近の値にまで低下した。グルコースは培養開始 6 時間後に濃度が最大となり、その後は低下して 30 時間付近になると検出されなくなった。培養 6 時間後のグルコース濃度のピークは培養温度 30 の SSF におけるピークに比べて格段に大きくなっている (図 5 参照)。培養温度 30 , および 45 の実験で、培養 6 時間、および 12 時間後における L-乳酸濃度には大きな差が見られず、乳酸にまで変化したグルコース量はほぼ同等とみなしてよいことから、培養初期に 45 の方がグルコース濃度が高いことは、45 の SSF の方がセルラーゼ活性が高いことを示すものと考えられる。なお、

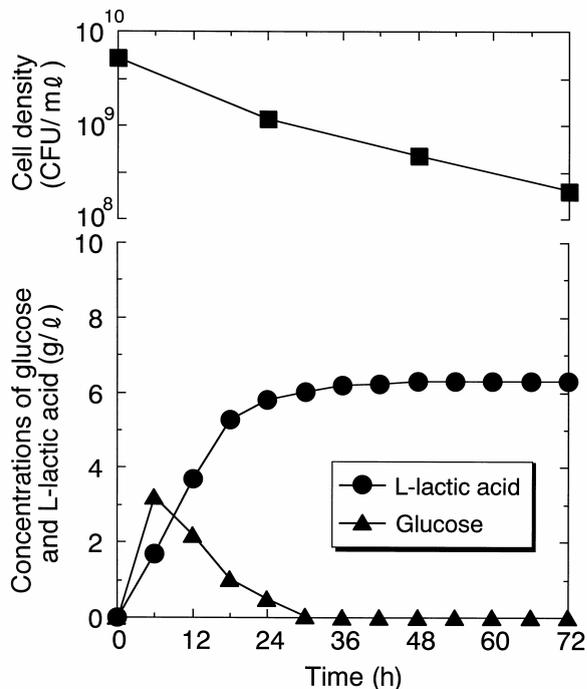


図 6 培養温度 45 , pH5.0 の SSF におけるグルコース、L-乳酸、および菌体濃度の経時変化

培養温度が 45 のときには培養にともなって菌体濃度が低下するが、菌体濃度が低下しながらも培養初期では乳酸の生成が可能であることがわかった。また、培養 30 時間以降ではグルコースは検出されず、乳酸も生成されないことから、この時間ではセルラーゼが失活した可能性が考えられた。なお、最終的な L-乳酸濃度は 6.31g/L となった。ここには詳細を示さないが、35、40 の SSF においてはグルコース、L-乳酸、および LA1 株濃度の値そのものは異なるものの、それらの値における変化の傾向は 30 の SSF と類似していた。

培養温度を変化させた SSF における培養 72 時間後の L-乳酸濃度を図 7 に比較する。L-乳酸濃度は、35 で 9.48g/L、40 で 9.77g/L となり顕著な差は見られなかったが、30、および 45 に比べて明らかに高いことから、本研究で用いた酵素と乳酸菌の組み合わせでは同時糖化発酵法の最適温度は 35~40 付近にあることが確かめられた。また、乳酸濃度が最大となった 40 の SSF における汚泥

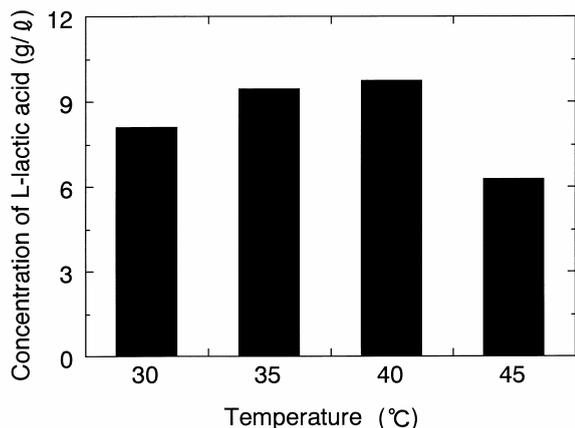


図 7 培養温度を変化させた SSF における培養 72 時間後の L-乳酸濃度

中多糖類の分解率は 50% 付近の値にとどまったが汚泥をセルラーゼで加水分解した糖化のみの場合に比べて大幅な時間短縮が可能であることが確かめられた。

4. ゼロエミッション技術としての可能性評価

本研究で用いた製紙工場の汚泥のように多糖類を含む汚泥であれば、加水分解と乳酸発酵の組み合わせ処理により生分解性プラスチックの原料である L-乳酸を生成できることがわかった。現在までのところ、生成される L-乳酸濃度は最大でも 9.77g/L、多糖類分解率も約 50% に過ぎないが、糖化の過程を効率化することでさらに高濃度の L-乳酸を生成することが可能と期待された。このためには、セルラーゼの初期添加量を多くする、SSF 過程におけるセルラーゼの失活をセルラーゼの間欠添加で補うなどの方法が有効と考えられる。セルラーゼの使用は SSF のコストを引き上げる大きな要因となるので、セルラーゼを効率的に作用させる方法、粗精製品でもよいので安価なセルラーゼを利用することなどを検討していく必要がある。以下に、本研究で使用した汚泥を用いたときに生成可能な L-乳酸濃度の最大値を試算した。汚泥の含水率が約 50% であり、グルコースに加水分解可能な多糖類を乾燥重量基準で 33.3% 含むことから、汚泥そのものを無希釈で完全に糖化することができれば 335g/L のグルコースの生産が可能と計算された。また、このグルコースを 100% の収率で乳酸に変えることができた場合には、乳酸濃度は 335g/L となる。これはあくまでも計算値であるが、製紙汚泥は乳酸原料としての高い可能性をもつことがわかる。また、汚泥中の多糖類が完全に乳酸に変換できたとしても、乾燥重量基準で 66.7% に相当する残渣が発生する。このうち灰分が約 30% であ



図 8 富士市における製紙汚泥の処理・処分状況 (平成 10 年度)

ることからさらに 30%近い有機物が残存することになる。ゼロエミッションを考えた時には乳酸を生成した後の残渣分についても適正な処理を検討していく必要がある。

わが国では製紙産業が特定地域に集中しており、製紙汚泥はその排出される地域が限られていることに特徴がある。静岡県富士市は製紙産業の盛んな地域として知られているが、そこで年間排出される製紙汚泥は平成 10年度で 87.6万トン/年に達している。富士市における平成 10年度の製紙汚泥の処理・処分状況を図 8 に示す。汚泥がそのまま再利用されている割合は発生量比で 8%と小さく、その主たる用途はホーミング剤、および土壌改良剤などであることがわかる。また、その他はすべて焼却処分されて、焼却灰の一部がセメント材料、製鉄の酸化防止剤などに利用されている。これらの用途はいずれも代替する原料を見いだすのは容易であり、製紙汚泥に他の用途が見つかったときには、製紙汚泥はこの用途に用いられなくても支障はないといわれている。富士市で発生する製紙汚泥は含水率が 65%と高いが、グルコースに加水分解可能な多糖類を乾燥重量基準で 33.3%含み、これを完全に糖化し、乳酸に変えることができるとした場合には、10.1万トン/年の乳酸生成が可能という計算になる。プラスチック生産におけるスケールメリットを考えても、比較的狭い地域で 10万トンの乳酸を生産するのに足る原料が排出されるのは大きな魅力である。また、わが国における生分解性プラスチックの需要は、国内の主要プラスチックメーカー 9社の予測によると図 9 に示すようになってきている。2000 年には 1万トン/年、2005 年には 6万トン/年程度の需要を見込んでいるが、2005 年の予測値は、富士市における製紙汚泥から生産可能な生分解性プラスチック量の計算値と近い値となっていることがわかる。

汚泥から L-乳酸を生産する技術の実用化可能性を検討する際には、製造コストの評価を欠かすことはできない。Yin がとうもろこしデンプンを原料とした乳酸生産のためのコスト計算をおこなった結果を図 10 に示す¹⁸⁾。乳酸生産のコスト低減のためには原料コストの低減が重要であり、中国や米国などのように、とうもろこしデンプンが安く供給される国では、Yin らの提案しているバイオリアクタのシステムを用いることで、1ドル/kg 以下で乳酸を生産することも可能と試算している¹⁸⁾。汚泥を原料とした乳酸の生産については現在までコストの試算はできていないが、とうもろこしデンプンを用いた場合に比べて汚泥中多糖類の加水

分解にコストが余分にかかる一方で、とうもろこしデンプンは有料で購入しなければならないのに対し、汚泥は処理費を得て入手できる(逆有償)。このため、原料コストはマイナスと考えることができることから、加水分解コストと原料コスト、それぞれの大きさによってはデンプンを原料としたときと同等にまで生産コストを低減することも可能と考えられた。

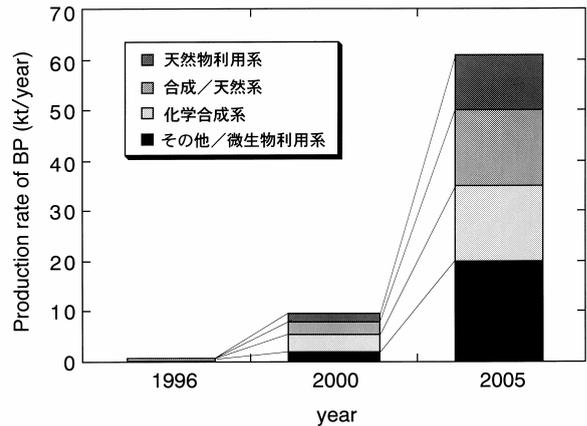


図 9 生分解性プラスチックの需要予測(国内主要 9社のアンケートによる)

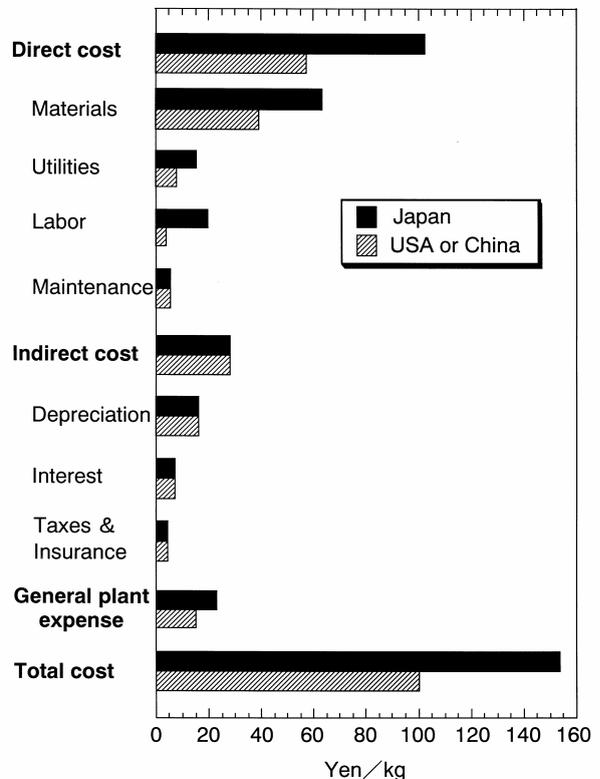


図 10 とうもろこしデンプンを原料とした乳酸生産のためのコスト計算(Yin¹⁸⁾の表をもとに作成)

5. まとめ

汚泥から生分解性プラスチックの原料である L-乳酸を生成する方法について検討した。製紙汚泥は含有される有機物の濃度は高いが、そのまま乳酸菌を作用させても乳酸は生成せず、適正な手段で加水分解したときには、乳酸菌の基質となって乳酸が生成されることが確かめられた。また、汚泥中セルロースの糖化に際してはセルラーゼがその反応の結果生ずるグルコースによって生成物障害を受けることを避けるために、糖化と発酵が同時に同一の容器内でおこる同時糖化発酵を適用した。セルラーゼ活性と LA1 株による L-乳酸生成活性のための最適 pH と最適温度は一致しないが、両者の活性を同時に高く維持するには pH は 5.0 付近の比較的狭い範囲にあり、温度は 35~40 であることを明らかにし、最大で 9.77g/L の L-乳酸を生成することができた。今後は、汚泥中に含まれる多糖類の効率的な加水分解と、さらに高濃度の L-乳酸を生成するための乳酸生成プロセスの改善に加えて、L-乳酸の精製・重合を含めたポリ乳酸製造のための詳細なコスト試算が必要と考えられた。

謝辞： 本研究は文部省科学研究費の研究補助金（特定研究領域：ゼロエミッション）の支援を受けた。記してここに謝意を表す。また、メイセラゼの提供を受けた明治製菓と生分解性プラスチック需要量の将来予測に関するアンケート結果の提供を受けた生分解性プラスチック研究会に感謝する。

文 献

- 1) Nakasaki, K., N. Akakura, T. Adachi and T. Akiyama (1999) Use of wastewater sludge as a raw material for production of L-lactic acid. *Environ. Sci. Technol.*, **33**, 198-200.
- 2) Lynd, L. R., J. H. Cushman, R. J. Nichols and C. E. Wyman (1991) Fuel ethanol from cellulosic biomass. *Science*, **251**, 1318-1323.
- 3) Philippidis, G. P. (1996) *In Handbook on Bioethanol: Production and Utilization*, Wyman, C. E. (ed.), Taylor & Francis, 253-285.
- 4) Lee, J. (1997) Biological conversion of lignocellulosic biomass to ethanol. *J. Biotechnol.*, **56**, 1-24.
- 5) Wymann, C. E. (1994) Ethanol from lignocellulosic biomass: Technology, economics, and opportunities. *Bioresour. Technol.*, **50**, 3-15.
- 6) Wymann, C. E. and Goodmann, B. (1993) Biotechnology for production of fuels, chemicals, and materials from biomass. *J. Appl. Biochem. Biotechnol.*, **39/40**, 41-59.
- 7) Abe, S. and M. Takagi (1985) Simultaneous saccharification and fermentation of cellulose to lactic acid. *Biotechnol. Bioeng.*, **27**, 389-397.
- 8) Venkatesh, K. V., P. C. Wanket and M. R. Okos (1994) Kinetic model for lactic acid production from cellulose by simultaneous fermentation and saccharification. *AIChE Symposium Series*, **90**, 80-87.
- 9) Doi, Y. and K. Fukuda (eds.) (1994) *Biodegradable Plastic and Polymers*, Elsevier.
- 10) 生分解性プラスチック研究会 (1996) コンポスト化モデルリサイクル調査研究事業報告書平成 7 年度事業.
- 11) Inoko, A., K. Sugahara and Y. Harada (1979) On some organic constituents of city refuse composts produced in Japan. *Soil Sci. Plant Nutri.*, **25**, 225-234.
- 12) Nakasaki, K., M. Sasaki, M. Shoda and H. Kubota (1985) Effect of seeding during thermophilic composting of sewage sludge. *Appl. Environ. Microbiol.*, **49**, 724-726.
- 13) 佐々木博 (1971) グラスサイレージの微生物学的研究, 北海道大学農学部邦文紀要, **8**, 188-247.
- 14) Xavier, S. and B. K. Lonsane (1994) Sugar-cane pressmud as a novel and inexpensive substrate for production of lactic acid in a solid-state fermentation system. *Appl. Microbiol. Biotechnol.*, **41**, 291-295.
- 15) Schmidt, S., and N. Padukone (1997) Production of lactic acid from wastepaper as a cellulosic feedstock. *J. Ind. Microbiol. Biotechnol.*, **18**, 10-14.
- 16) Kurosawa, H. (1988) L-lactic acid production from starch by coimmobilized mixed culture system of *Aspergillus awamori* and *Streptococcus lactis*. *Biotech. Bioeng.*, **31**, 183-187.
- 17) Yin, P., N. Nishina, Y. Kosakai, K. Yahiro, Y. Park and M. Okabe (1997) Enhanced production of L(+)-lactic acid from corn

starch in a culture of *Rhizopus oryzae* using an air-lift bioreactor. *J. Ferment. Bioeng.*, **84**, 249-253.

- 18) Yin P. (1997) Studies on enhancement of L(+)-lactic acid production from corn starch

in culture of *Rhizopus oryzae* using an air lift bioreactor. Ph. D. Dissertation, The United Graduate School of Agricultural Science (Shizuoka University)

Technology for converting sludge into industrial raw material directed toward “zero emission”

Kiyohiko NAKASAKI and Tomohiko ADACHI

(Department of Material Sciences and Chemical Engineering, Shizuoka University, 3-5-1 Johoku, Hamamatsu 432-8561, Japan)

Abstract

Many types of industries dispose of sludge in large quantities from wastewater treatment facilities. The conversion of sludge into chemical feedstock, by networks of various production processes in different types of industries, is a step toward "zero emissions". This study utilizes wastewater sludge to produce L-lactic acid, a precursor of biodegradable plastic. The high concentrations of cellulose contained in sludge derived from a paper manufacturing facility have been found to be convertible to L-lactic acid. To achieve a high conversion rate, the sludge must be treated with the simultaneous saccharification and fermentation method, by which the successive transformation of glucose into L-lactic acid can reduce the inhibition of cellulase activity caused by the enzymatic product. A high concentration of L-lactic acid, 9.77 g/L, can be obtained from the sludge by the method of simultaneous saccharification and fermentation, under the optimum conditions of temperature at 40 °C and pH around 5.0.

Key Words: Zero Emissions, Sludge, L-lactic Acid, Poly-lactic Acid, Biodegradable Plastic