

氏 名 (本 籍)	いとうおさふみ 伊 藤 紀 史 (東 京 都)
学 位 の 種 類	博 士 (農 学)
学 位 記 番 号	博 甲 第 2544 号
学位授与年月日	平成13年3月23日
学位授与の要件	学位規則第4条第1項該当
審 査 研 究 科	農学研究科
学 位 論 文 題 目	亜酸化窒素発生抑制型高速度脱窒プロセスの開発
主 査	筑波大学教授 工学博士 松 村 正 利
副 査	筑波大学教授 工学博士 田 中 秀 夫
副 査	筑波大学教授 農学博士 前 川 孝 昭
副 査	筑波大学教授 工学博士 向 高 祐 邦

論 文 の 内 容 の 要 旨

閉鎖系水域での富栄養化問題を解決するため、排水中の窒素、リン等の栄養塩類除去が重視され、小規模事業所等でも導入可能なコンパクトで高性能な脱窒プロセスの開発が求められている。また、一方では脱窒プロセスから地球温暖化を促進する亜酸化窒素ガスが発生していることが指摘され、その発生抑制が急務となっている。このような背景に基づいて亜酸化窒素発生抑制型高速度脱窒プロセスを開発することを試みた。

具体的には多孔性セルロース担体を用いて菌体を系内に高密度に維持し処理を高速化することとした。実験に使用した多孔性セルロース担体は、基質透過性、窒素ガスの放散性に優れる連続発泡構造を持ち、化学修飾によってセルラーゼによる分解に対する耐性を持っている。本研究では、多孔性セルロース担体の脱窒菌保持能力を有効に利用するための基礎的な検討を行い、菌相が安定しやすく、トラブル後の復旧に比較的短期間で対処可能なメタノールが電子供与体として適していること、担体の流動形式としては液駆動タイプが適していることを明らかにした。一般に脱窒プロセスに担体を利用すると生成する窒素ガスによって担体が物理的に破損したり、浮上したりするトラブルが発生し高速度処理に応用できないとされてきたが、これらの知見をもとに本研究室ではエジェクターを用いたジェットポンプ型リアクター、及びエルボー型リアクターが開発された。これらの装置は浮力を持つ多孔性セルロース担体を破損させることなく均一に流動させる事ができるため、安定した高速度脱窒処理が可能となった。

次に、この開発した高速度脱窒プロセスから発生する亜酸化窒素の発生状況を調査するとともに、その発生抑制手法の構築を試みた。十分なメタノールの存在下で、pH7.5～8.0で脱窒処理を行った際には亜酸化窒素の発生は比較的少なかったが、人工排水中に添加していた微量金属成分を削減すると発生量が増加した。微量金属が脱窒処理に大きく影響を及ぼすことが明らかとなったため、亜硝酸還元酵素、亜酸化窒素還元酵素等について調査し、銅を含む酵素が多いことに気がついた。そこで、脱窒処理性能が低下した状況で銅を添加したところ、一定期間の硝酸還元能低下期間の後に亜酸化窒素生成が大きく低下することが明らかとなった。さらに、結果の信頼性を高めるため、銅を添加しない条件で馴養した固定化脱窒菌を、銅含有培地で繰り返し回分培養したところ、亜酸化窒素発生が劇的に減少することがわかった。これらの結果から、メタノールを電子供与体とする脱窒プロセスにおいては、銅を添加することで脱窒効率を低下させることなく亜酸化窒素の発生を大幅に抑制できることが明確になった。既往の脱窒プロセスにおける亜酸化窒素発生の研究は、銅の添加が行われていない、または銅の

添加条件が明確でない場合で行われている。そこで銅を添加した条件でpH, 温度を変化させて、これらの操作因子が亜酸化窒素発生に及ぼす影響を検討した。その結果、従来の報告と同様に低pH, 低温度条件下で亜酸化窒素発生が増加する傾向はみられたが、その絶対量は銅を入れていない既往の研究に比べて大幅に低いものであった。

亜酸化窒素の発生を嫌気条件下では抑制することができたので、最後に実際の生物学的窒素除去処理で問題となっている微好気条件（嫌気性が確保しきれない条件）下での脱窒性能の向上と亜酸化窒素発生抑制を目的に好気脱窒菌の本プロセスへの適用を試みた。祥雲らによって水田土壌より新たに単離された*Pseudomonas stutzeri* TR2株を多孔性セルロース担体に固定化し、培養培地を用いて溶存酸素濃度を1mg/Lに維持した開放系のリアクターによる連続脱窒処理を行ったところ、高い脱窒活性を維持することができた。この実験において、微好気条件下でも脱窒が進行し、さらに亜酸化窒素発生も少なかったことから生物学的な好気脱窒の実用化への可能性が示された。しかしながら、この菌の栄養要求性が高く無機成分が主体の排水等では活性が失われることが示されたため実排水処理に応用する際には適切な電子供与体の添加が必要となることが示唆された。今後は開放・混合系で、排水の性状をとらえたうえで、どのように選択圧をかけてこの菌の活性を発現させるかについての検討が必要と考えられる。

本研究により多孔性セルロース担体を用いた高速度脱窒プロセスが構築され生物学的脱窒処理の高速化、プロセスのコンパクト化、亜酸化窒素発生抑制が達成された。微好気条件下での脱窒処理について更に検討を進めることで単槽硝化・脱窒処理プロセスの開発が可能にあると考えられる。

審 査 の 結 果 の 要 旨

本論文は、生物学的硝化・脱窒プロセスの高速化、コンパクト化とプロセスから発生する亜酸化窒素発生抑制を目的とした研究である。具体的には、多孔性セルロース担体など固定化担体を用いることで反応を高速化することとし、浮力を持った担体を効果的に攪拌し流動させることができるリアクターと組み合わせることで従来にはない高速度の脱窒プロセスが確立されている。また、近年注目されている地球温暖化に関連し、この高速度脱窒プロセスから発生する亜酸化窒素の発生を抑制する手法についても検討を加え、亜硝酸還元酵素や亜酸化窒素還元酵素が活性中心に含むとされる銅を添加することで、亜硝酸還元と亜酸化窒素還元を促進し脱窒反応を抑制することなく亜酸化窒素の発生を抑制することに成功している。これらの得られた結果は、構築した高速度脱窒プロセスを実際の排水処理に応用する際にきわめて有用な知見である。また、好気脱窒菌を利用して微好気条件下での固定化好気脱窒処理について更に検討を加えることで、単槽窒素除去プロセスを実現することが期待できる。

よって、著者は博士（農学）の学位を受けるに十分な資格を有するものと認める。