

氏名(国籍)	カタラン・マリア アントニーナ (フィリピン)		
学位の種類	博士(農学)		
学位記番号	博甲第1,823号		
学位授与年月日	平成10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	High-Rate Nitrogen Removal in Seawater Using Nitrifiers and Denitrifiers Immobilized in Carriers (担体固体化硝化・脱窒菌を用いた海水からの高速度窒素除去)		
主査	筑波大学教授	工学博士	松村正利
副査	筑波大学教授	農学博士	祥雲弘文
副査	筑波大学教授	農学博士	前川孝昭
副査	筑波大学助教授	農学博士	オボンナ・ジェームス・チュクマ

論文の内容の要旨

閉鎖性の強い沿岸域における窒素化合物は、溶存酸素量を減少させ、また藻類を大量発生させる。このような窒素化合物の除去には、生物学的硝化・脱窒プロセスが適応されるが、固定微生物を用いたものは未だ少ない。また、それらの報告も35ppt（海水の塩濃度）医科の塩濃度で行われていることや、2~3ヵ月の長期間の順応期間が必要であること、担体が詰まりやすいなどの問題がある。

本研究は、海洋性硝化菌・脱窒菌の担体固定法を用いた海水からの高速度窒素除去法を確立することを目的とした。海水水槽の砂より硝化菌・脱窒菌を含む汚泥を取り出し混合培養した後、ポリエステル製起毛担体ならびに多孔性セルロース担体の2種類の担体に固定し、リアクター内で窒素除去を行った。長期間の連続処理実験によって、各担体の硝化能力・基質必要量が判明した。窒素除去の最大速度は担体構造によって異なり、ポリエステル担体では $5.20\text{kg-N/m}^3\text{-carrier/d}$ が得られ、これは海水系での最大値であるセルロース担体の3.5倍の速度であった。担体間の処理能力の差について調べるため、担体内酸素拡散の指標である有効係数ならびに使用後の見掛け密度(%)を測定した。

混合培養より硝化菌を単離し、SEM・TEMによる形態観察より、優先種はアンモニウム酸化菌は *Nitrosomonas marina*、亜硝酸酸化菌は *Nitrospina* sp. と判定した。分離菌株を用いた実験より、無機炭素（重炭素）濃度 $\text{HCO}_3^- : \text{N(B:N)}$ 比が *N. marina* で9.2、*Nitrospina* sp. で6.1のとき窒素除去速度が最大となり、同時にタンパク質・炭水化物の合成ならびに成長率も最大となり、それ以上では一定となった。また、重炭酸の細胞内への取り込みに関しては ion antiport/symport を用いていると判断した。*N. marina*・*Nitrospina* sp. とともに独立栄養の好塩菌で、塩濃度も5~45pptで硝化活性を示した。除去速度も浮遊細胞に比べ、担体固定の方が *N. marina* で2.0倍、*Nitrospina* sp. で1.4倍に上昇した。*Nitrospina* sp. は酢酸ならびにペプトンによる阻害を受けた。

脱窒菌は、多孔性セルロース担体に固定することにより最大 $24.79\text{kg-N/m}^3\text{-carrier/d}$ の除去速度が得られた。これは海水系での初めて試みられた担体固定化法の実施例である。完全な脱窒を得るためには、以下の条件が必要である ($\text{NO}_3\text{-N} : 280\text{g/m}^3$, $\text{P} : \text{NO}_3\text{-N} : 0.029\text{mg/mg}$, 微量金属(Fe, Mn, Mo, etc.): 0.01%, メタノール: 理論的な必要量の130%, $\text{Cu} : \text{NO}_3\text{-N} : 0.002\text{mg/mg}$)。本実験における脱窒菌は、その形態により *Hyphomicrobium* sp. と判明した。この脱窒菌は従属栄養の好塩菌で5~45pptの塩濃度で脱窒活性を示した。単離培養した菌を担体

固定した結果、浮遊状態にくらべて1.7倍の除去速度が得られた。また炭素源としてメタノール以外のものも有効であった。

今回の実験により、海水系における高速度の窒素除去方法が確立された。(硝化：ポリエステル担体固定、脱窒：多孔性セルロース担体固定) またこの方法では、99%以上の窒素化合物が除去され、HRT (hydraulic retention time) が2.5～5時間と短く、順応時間もわずか1～2週間であり、目詰まりする問題もなく、5～45pptの幅広い塩濃度に対応することができた。

審 査 の 結 果 の 要 旨

海水系排水からの窒素除去に関する研究は、淡水系に比べて著しく遅れている。本研究は、閉鎖性海域の富栄養化を抑制するために、吸着固体化微生物を用いた高性能硝化・脱窒プロセスの構築を目指したものである。

多孔性セルロース担体に吸着固定した硝化細菌を用いて長期間の連続処置実験を行い、担体の安定性および処理能力を検討した。その結果、硝化能力は淡水の場合は1/3程度であった。その原因を探究した結果、海水中においては多孔性担体内部にCaなどが沈積し、担体内部への酸素移動が低下していることを見出した。この問題を担体構造をかえることによって解決することを試み、ポリエステル製起毛担体による連続硝化実験を行い、淡水系と同程度の硝化速度を達成することに成功した。起毛性担体の酸素有効係数が大幅に改善されたことも確認した。一方、多孔性セルロース担体を用いた脱窒プロセスは、淡水系を同程度の性能を示すことが明らかにされた。

さらに、海水系の硝化・脱窒に関与している優先菌を単離し、これらの反応特性に関する基礎検討もを行い、これらの菌体が要求する微量金属などを特定すると共に、その最小要求量が決定した。これらの成果に基づいて海水からの塩素除去が可能となり、脱窒については水族館での実プラントと採用されており、本研究の実用性の高さが評価される。

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。