

氏名(本籍)	もと じま ひで こ 本 嶋 秀 子 (群馬県)			
学位の種類	博 士 (農 学)			
学位記番号	博 甲 第 5734 号			
学位授与年月日	平成 23 年 3 月 25 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	生命環境科学研究科			
学位論文題目	<b>Structural Characterization and Functional Properties of Humic Substances Extracted from Solubilized Excess Sludge</b> (可溶化汚泥抽出腐植物質の物性評価と機能性解析)			
主査	筑波大学教授	博士(農学)	磯田博子	
副査	筑波大学教授	理学博士	繁森英幸	
副査	筑波大学准教授	農学博士	田村憲司	
副査	筑波大学准教授	博士(工学)	入江光輝	

### 論文の内容の要旨

近年、我が国において、廃棄物の資源化および循環的利用が求められている。余剰汚泥は、活性汚泥法を始めとする生物学的廃水処理から発生する産業廃棄物である。生物学的廃水処理法の場合、処理媒体の実体が微生物であるため、余剰汚泥の発生は実質的に微生物バイオマスの増加に他ならない。先行研究より、余剰汚泥を可溶化することにより汚泥溶液中の溶解性有機炭素(TOC)が増加することが明らかとなった。地下水や河川水のTOCの数パーセントから数十パーセントが腐植物質であると報告されており、可溶化された余剰汚泥(可溶化汚泥)中に、高濃度の腐植物質が存在する可能性がある。

腐植物質とは環境中で植物残渣等が微生物による分解を受け、その分解生成物から化学的、生物的に合成された暗色の高分子有機酸の混合物であり、それらのうちアルカリ可溶・酸不溶のものをフミン酸、アルカリ・酸可溶なものをフルボ酸、いずれにも不溶な分画をヒューミンと呼ぶ。腐植物質の有効効果については、既に多くの研究報告がされている。例えば草炭・風化炭由来フミン酸が土壌改良効果を示すことは既に報告されている。フルボ酸においては、海中への鉄分供給効果や、発がん性物質である六価クロムの還元無害化、有機ハロゲン化物の脱塩素化などの環境浄化機能が報告されている。また当研究室においては、カナダ産草炭から抽出したフルボ酸のI型アレルギー抑制効果を明らかとしている。

このような背景を基に、余剰汚泥の資源化を目的とし、有用物質である腐植物質の抽出を行った。余剰汚泥から効果的にフミン酸・フルボ酸を抽出する手法として、可溶化を前処理とした新しい腐植物質抽出プロセスを検討し、抽出したフミン酸・フルボ酸の物理化学的特徴を元素分析、赤外線吸収スペクトル(FT-IR)、プロトン核磁気共鳴スペクトル(<sup>1</sup>H-NMR)などの方法を用いて評価した。抽出フミン酸の有効利用方法の探索のため、乾燥地におけるアルカリ化塩類集積土壌の改良のためのカラム実験を行い、さらに、余剰汚泥抽出フルボ酸の新規分野での有効利用手法の探索のため、好塩基球白血病細胞を用いたI型アレルギーモデルにおける抗アレルギー活性を評価した。

結果として、可溶化による前処理を導入した抽出法により、フミン酸・フルボ酸の抽出率は向上した。

可溶化汚泥からのフミン酸・フルボ酸の抽出率は、それぞれ 9.1、3.5%で、一方、可溶化しない余剰汚泥（コントロール）からの抽出率は、3.7、0.8%であった。可溶化汚泥から抽出されたフミン酸・フルボ酸は脂肪族性が強く腐植化度の低い腐植物質であったが、金属錯体能・生理活性を示すカルボキシル基やフェノール性水酸基等の官能基を含有していた。可溶化汚泥抽出フミン酸は pH 緩衝能を有し、アルカリ化塩類集積土壌の pH を低下させた。その効果は、天然物腐植物質である草炭と比較して、即効性を示した。また、土壌中の交換性陽イオンに影響を与え、土壌中の  $\text{NH}^+$ 、 $\text{K}^+$ 、 $\text{Ca}^{2+}$  等の植物必須元素の含有量が上昇し、これらことから、アルカリ化塩類集積土壌改良効果が示唆された。

可溶化汚泥抽出フルボ酸は、細胞内  $\text{Ca}^{2+}$  の流入を抑制することによって脱顆粒のマーカーである  $\beta$ -hexosaminidase やヒスタミン遊離を有意に抑制した。また、アレルギー分析用 DNA チップを用いたマイクロアレイ解析によりアレルギー関連遺伝子の発現量の変化を検証した結果、可溶化汚泥フルボ酸が、サイトカインや IgE 受容を構成する遺伝子の発現を抑制することが明らかとなり、これら遺伝子の mRNA 発現はリアルタイム-PCR 実験によっても実証された。本研究を通して、腐植物質抽出原料としての可溶化汚泥の有効性が示された。

## 審査の結果の要旨

本申請論文は、腐植物質抽出原料としての可溶化汚泥の有効性およびその機能性の解析を行ったものである。可溶化汚泥からの腐食物質の抽出については、そのプロセス効率、コストの面から様々な議論がなされたが、本研究の成果は可溶化汚泥から精製したフルボ酸のアルカリ化塩類集積土壌改良としての利用及びアレルギー抑制物質としての利用の可能性に繋がる研究として期待された。さらに、厚生労働省により食品認可されているフルボ酸の原料供給に関する研究としてもユニークな研究であると位置付けられた。

さらに、本研究は生物学的廃水処理から発生する産業廃棄物を有効に利用することから廃棄物の資源化および循環的利用にも多大な貢献を与えるものと評価できる。

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。