

氏名・本籍	赤木 孝太郎 (広島県)
学位の種類	博士 (生命システム科学)
学位記番号	博甲 第36号
学位授与の日付	平成29年3月24日
学位授与の要件	学位規則第4条第1項該当 (課程博士)
学位論文題目	畜産2次処理排水中の窒素とリンの除去・回収
学位論文審査委員	主査 教授 原田 浩幸 副査 教授 八木 俊樹 准教授 阪口 利文 名誉教授 森永 力

学位論文の要旨

畜産農業において発生する排水中の窒素とリンの取り締まりは年々厳しくなっており、平成28年の時点で50m³/日の排水量の特定事業所には、生活環境項目で170mg/Lの窒素と25mg/Lのリンが適用され、健康項目においては全事業所から排出される亜硝酸性化合物および硝酸性化合物が600mg/Lに定められていることから、大規模農家は1次処理から高度処理により各基準値を満たしている。しかし、我が国の農家の9割を占める小規模農家は、高度処理装置の設置が経済的に困難なため、排水基準を超える窒素とリンが環境中に放出され、公共用水域に富栄養化を引き起こしている。近年の対策としては、納豆菌を担持させた水質浄化資材により畜産排水中の窒素の大半を占めるアンモニウム(NH₄⁺)処理や枯渇資源であるリンを金属塩添加により結晶化させ回収する晶析法が推進されている。よって、本誌の第2章から第3章では、畜産2次処理排水中のNH₄⁺とリンの微生物および晶析法による除去・回収について検討し、第4章を第1章から第3章の総括として提言した。

第2章では、水質浄化能を持つ微生物として注目されている、枯草菌を担持させた水質浄化資材により、100mg/L NH₄⁺含有の合成排水を処理したところ、約60%のNH₄⁺が減少し、その際に発生した硝酸イオン(NO₃⁻)は最大0.17mg/Lを示した。また、処理排水中で水生生物に有毒な亜硝酸イオン(NO₂⁻)は検出されず、市販の水質浄化資材(エコバイオ・ブロック)使用時と比べ低い結果となった。合成排水中のNH₄⁺減少に関わったのが枯草菌の近縁種である *Lysinbacillus*、*Brevibacillus* とグラム陰性桿菌類の *Cronobacter* の微生物群であることを16SrRNA領域の遺伝子解析により判明した。その内の *Cronobacter* は有機酸存在下でNH₄⁺を効率良く代謝し、その際にNO₂⁻とNO₃⁻を生成しなかったことから、*Cronobacter* をメタン発酵処理後のパーラー排水(消化液)処理への利用について検討した。さらに他の微生物との集積培養で高濃度排水を処理することで知られる酵母菌との混合培養により、NH₄⁺の分解促進を図った。まず動物性堆肥から単離した酵母菌のITS領域は

Candida tropicalis の ITS 遺伝子配列と高い相同性を示し、また、*Cronobacter* と同様に NH_4^+ 処理時に NO_2^- と NO_3^- を生成しなかった。つぎに *Cronobacter* と酵母菌の混合培養時には培地中の NH_4^+ を約 80% 除去し、各菌の純粋培養時の除去率に比べ高い値を示したことから、パーラー排水の消化液および原水中の有機物と窒素を効果的に処理することが期待された。

第 3 章では、浄化処理装置を想定したマグネシウム塩添加によるリン酸マグネシウムカリウム (MPP) 晶析法を利用した排水中のリン酸態リン ($\text{PO}_4\text{-P}$) とカリウム (K) の同時回収について検討した。K は、リンと同じ有限な資源であり、我が国はこれら資源のほとんどを輸入で賄い、大量に排出していることから、再利用可能な高度処理での回収方法が望まれている。しかし、畜産 2 次処理排水中のリンと K の最適な晶析法の条件が報告されていないことから、畜産 2 次処理排水中での MPP 生成における最適条件を検討した。まず pH 条件では、pH 11 の強塩基性条件下でのアンモニアストリッピングにより模擬畜産排水中の NH_4^+ をアンモニアとして気化しながら、 $\text{PO}_4\text{-P}$ と K を MPP 特有の針状結晶が集積した白色沈殿物として回収した。つぎに NO_3^- および硫酸イオン (SO_4^{2-}) 存在下での MPP 生成の評価では、 SO_4^{2-} が MPP 生成物質の 2 価のリン酸水素イオン (HPO_4^{2-}) と競合反応したことにより、K の回収量が低下し、 SO_4^{2-} に関しては事前の処理が必要と考えられた。そして、低濃度の $\text{PO}_4\text{-P}$ と K 存在下では、各成分が一定濃度以上を満たしていない場合に $\text{PO}_4\text{-P}$ および K の回収量が低下した。ここまでの結果を基に連続試験による MPP の大量生成を行ったところ、排水中の $\text{PO}_4\text{-P}$ と K を 90% 以上除去し、回収した白色沈殿物量は連続試験装置により生成される MPP の推定量とほぼ一致したことから、本試験装置による実排水中からの $\text{PO}_4\text{-P}$ と K を MPP として大量回収することが期待された。今後は実排水中の浮遊物質による MPP 生成への影響を評価し実用化へと繋げる。

以上により、本実験で使用した水質浄化資材は従来の資材に比べ高い NH_4^+ 処理能を持つことが評価され、また *Cronobacter* と酵母菌を利用したパーラー排水処理について検討した。そして、畜産 2 次処理排水中の $\text{PO}_4\text{-P}$ と K を本実験の MPP 生成条件で除去・回収することにより、天然のリンと K 消費量の低減、また、閉鎖性水域の富栄養化問題の解決に繋がることを期待される。