



HOKKAIDO UNIVERSITY

Title	Nitrous oxide and nitric oxide production in partial nitrification and anaerobic ammonium oxidation granular sludge [an abstract of dissertation and a summary of dissertation review]
Author(s)	RATHNAYAKE MUDIYANSELAGE, LASHITHA DINESH RATHNAYAKE
Degree Grantor	北海道大学
Degree Name	博士(工学)
Dissertation Number	甲第12030号
Issue Date	2015-09-25
Doc URL	https://hdl.handle.net/2115/59982
Rights(URL)	https://creativecommons.org/licenses/by-nc-sa/2.1/jp/
Type	doctoral thesis
File Information	RATHNAYAKE_MUDIYANSELAGE_LASHITHA_DINESH_RATHNAYAKE_review.pdf, 審査の要旨



学位論文審査の要旨

博士の専攻分野の名称 博士 (工学) 氏名 RATHNAYAKE MUDIYANSELAGE
LASHITHA DINESH RATHNAYAKE

審査担当者 主 査 准教授 佐藤 久
副 査 教 授 高橋 正宏
副 査 教 授 岡部 聡
副 査 教 授 船水 尚行

学位論文題名

Nitrous oxide and nitric oxide production in partial nitrification and anaerobic ammonium oxidation granular sludge

(部分硝化および嫌気性アンモニア酸化グラニュール汚泥中における一酸化二窒素および一酸化窒素の生成)

窒素は生物にとって必須の元素である。いくつかの窒素化合物は肥料の必須要素である一方で、水環境中で多くの環境問題を引き起こす汚染物質でもある。このため、水環境保全のために窒素化合物に関する水質基準が定められている。水環境への窒素化合物の流入は処理または未処理の排水に起因するため、排水から窒素化合物を除去することが重要となる。一般に、排水中の窒素化合物は硝化脱窒プロセスにより除去されるが、近年、部分硝化 (PN) プロセスの後段に嫌気性アンモニア酸化 (アナモックス) プロセスを付与した PN₋ アナモックスプロセスが注目を浴びている。PN₋ アナモックスプロセスは、有機物を必要としない、曝気のためのエネルギーを削減できる、余剰汚泥の発生量が少ない、といった利点を有している。特に、グラニュール汚泥を用いた PN₋ アナモックスプロセスは、汚泥の沈降性が優れている、増殖速度が小さいアンモニア酸化細菌やアナモックス細菌を長期間高濃度にリアクター内に保持することができる、リアクター単位体積当たりの反応速度が大きい、といった利点を有している。廃水の窒素除去プロセスからは一酸化二窒素 (N₂O) および一酸化窒素 (NO) が発生することが知られている。N₂O は温室効果ガスであり、地球温暖化係数は約 300 と極めて高い。また、N₂O は人為的に大気に排出される物質の中で最もオゾン層を破壊する物質である。NO は極めて反応性の高いフリーラジカルであり、多くの生物に対して有害な物質である。PN₋ アナモックスプロセスにおける N₂O や NO の消長、反応速度、反応経路、これらに影響を与える環境因子に関する知見を得ることは N₂O や NO の放出を制御するために不可欠である。しかしながら、グラニュールを用いた PN₋ アナモックスプロセスにおける N₂O や NO 生成に関する知見は非常に限られている。本論文では、グラニュールを用いた PN₋ アナモックスプロセスにおける N₂O 放出速度を測定し、N₂O 生成経路を特定し、溶存酸素 (DO) と pH が PN グラニュール内の N₂O 生成速度と経路に及ぼす影響を明らかにした。さらには、アナモックスグラニュール内の NO 生成経路を特定するとともに NO 生成に及ぼす環境因子を明らかにした。本研究では回分試験、微小電極測定、アイソトポマー計測、蛍光 in situ ハイブリダイゼーション法、微生物群集構造解析といった複数の分析手法を活用した。

本論文は 5 章から構成されており各章の概要は以下のとおりである。

第1章では廃水からの窒素除去の重要性、PN_L アナモックスプロセス研究の動向、N₂O および NO の重要性と窒素除去プロセスにおける N₂O および NO 発生に関する既往の研究について論じた。

第2章では有機物を含まない人工廃水をグラニユール型半回分式 (SBR)PN リアクターで処理し N₂O 放出速度を解析した。N₂O 放出速度は $0.32\text{mg} - \text{NL}^{-1}\text{h}^{-1}$ であり、流入全窒素の 0.8% が N₂O として放出されていることが分かった。N₂O 放出量は曝気開始直後に最も高く時間の経過に伴い減少した。曝気開始直後では生成した N₂O の 65% はヒドロキシアミン (NH₂OH) 酸化由来であった。グラニユール内の in situ 測定から、グラニユール表層にアンモニア酸化細菌が多く、ここで N₂O が生成していることが分かった。

第3章では DO と pH が N₂O 生成速度と経路に及ぼす影響をグラニユールレベルで検討した。アンモニア (NH₃) 酸化速度と N₂O 生成速度は DO 濃度の増大に伴い増大した。N₂O は主に NH₂OH 酸化により生成され、DO の増大に比例して N₂O 生成速度は増大した。この結果から、DO の増大は NH₂OH 酸化を促進し、その結果 N₂O 生成速度が増大することが明らかとなった。これに対し、pH の変動は NH₂OH 酸化による N₂O 生成と NO₂⁻還元によるその両方に影響を及ぼした。N₂O 生成速度は pH が 6.5 から 8.5 の間では 7.5 の時に最大となった。in situ 測定から、N₂O は主にグラニユールの表層 200 μm の部分で *Nitrosomonas europaea* と *Nitrosomonas eutropha* により生成されていることが明らかとなった。

第4章ではアナモックスグラニユール内の NO 生成機構について解析した。アナモックス細菌は “*Candidatus Brocadia sinica*” に属するものであり菌体密度は全細菌の 88% であった。ほとんどの N₂ はアナモックス細菌により生成され NO はアナモックス細菌と脱窒細菌により生成されていた。アナモックス細菌が生成した NO の割合は最大で発生 N₂ 量の 1.1% であった。in situ 測定から、アナモックス細菌の密度と活性はグラニユール表層で高く、NO 生成速度もここで高いことが明らかとなった。NO 生成は NH₃、NO₂⁻、pH の影響を受けた。

第5章では上述の結果を総括し、N₂O と NO 放出を低減するための運転因子を提案した。

これを要するに、著者は、複数の分析手法を活用して部分硝化-アナモックスグラニユール内における N₂O および NO 生成機構を詳細に明らかにしており、水処理工学の発展に貢献するところ大なるものがある。よって著者は、北海道大学博士 (工学) の学位を授与される資格があるものと認める。