

Title	微細藻類を用いた新規NOx処理システムに関する研究
Author(s)	吉原, 健一
Citation	大阪大学, 1997, 博士論文
Version Type	
URL	<a href="https://hdl.handle.net/11094/40139">https://hdl.handle.net/11094/40139</a>
rights	
Note	著者からインターネット公開の許諾が得られていないため、論文の要旨のみを公開しています。全文のご利用をご希望の場合は、 <a href="https://www.library.osaka-u.ac.jp/thesis/#closed">〈a href="https://www.library.osaka-u.ac.jp/thesis/#closed"〉</a> 大阪大学の博士論文について <a href="https://www.library.osaka-u.ac.jp/thesis/#closed">〈/a〉</a> をご参照ください。

***Osaka University Knowledge Archive : OUKA***

<https://ir.library.osaka-u.ac.jp/>

Osaka University

氏名	吉原健一
博士の専攻分野の名称	博士(薬学)
学位記番号	第13092号
学位授与年月日	平成9年3月25日
学位授与の要件	学位規則第4条第1項該当 薬学研究科環境生物薬学専攻
学位論文名	微細藻類を用いた新規NO <sub>x</sub> 処理システムに関する研究
論文審査委員	(主査) 教授 宮本 和久  (副査) 教授 那須 正夫    教授 大森 秀信    教授 田中 慶一

#### 論文内容の要旨

化石燃料の燃焼によって放出される窒素酸化物 (NO<sub>x</sub>) は、森林破壊など自然生態系に重篤な被害を及ぼす酸性雨の原因物質である。火力発電所等の固定発生源では、アンモニアを還元剤とする選択接触還元法を用いて、NO<sub>x</sub> をN<sub>2</sub>にまで還元することによって処理を行っているが、厳しい排出規制を設けている我が国においても、大気中のNO<sub>x</sub> 濃度は横ばいであり、さらなる排出抑制対策の強化が望まれている。また、この方法の導入にはかなりのコストを必要とするため、ほとんどの発展途上国では、排煙脱硝装置の設置に消極的であり、より優れた技術の開発が必要である。

しかし、排ガス中のNO<sub>x</sub> の主要成分である一酸化窒素 (NO) は水に難溶である ( $1.92 \times 10^{-3}$  mol/L, 25°C)。微細藻類は同化的窒素代謝系 (NO<sub>3</sub><sup>-</sup> → NO<sub>2</sub><sup>-</sup> → NH<sub>4</sub><sup>+</sup> → glutamate) を有することから、NOを水に容易に溶解する二酸化窒素 (NO<sub>2</sub>) に酸化できれば、窒素源として利用できる。そこで、光合成によって発生した酸素がNOをNO<sub>2</sub>に酸化し、これがNO<sub>3</sub><sup>-</sup>およびNO<sub>2</sub><sup>-</sup>の形で、藻類に資化されるという作業仮説に基づき、NOの生物的处理について基礎的検討を行った。また、NOを効率的に処理するためには培地と通気するガスの接触時間が長く、光の利用率が高いリアクターが必要であるので、内径5 cm、全長250 cmの垂直管型リアクター (vertical tubular reactor: VTR) を製作し、処理実験に用いた。

微細藻類によるNO<sub>x</sub> の効率的処理システムを構築するためには、排ガス中に共存する高濃度のCO<sub>2</sub>の影響を受けずに良好な増殖を示す株を用いる必要がある。そこで、NO処理に利用可能な藻株を得るために、近畿地区沿岸海域より採取した74株を用いて、15%CO<sub>2</sub>通気条件下で増殖可能な株の選抜を行った。その結果、単細胞のNOA-113株 (未同定) がVTR中で良好な増殖を示したので、NO処理実験に供した。この株は排煙脱硝処理前の濃度に相当する100~300 ppm NO通気条件下で良好な増殖を示し、通気したNOの約50%を処理した。つまり15%のCO<sub>2</sub>を含む300 ppm NOを150 ml/minの流速で通気した場合、直線増殖期の細胞において4 Lのリアクター中で1日当たり約40 mgのNOと3.5 gのCO<sub>2</sub>を同時に処理することができた。

微細藻類培養系によるNOの処理については、NOが気相もしくは液相で酸素によって酸化されるか、あるいは液相に溶解したNOが藻細胞の作用を受けて酸化され処理されると予想できるので、本システムのNO処理プロセスを詳細に調べた。処理プロセスを解析するためには、NOA-113株よりも広範な通気ガスの流速やNO濃度でNO処理が可能な藻株を用いる必要がある。そこで、新たに既知の数株についてNO処理能を調べた結果、海産性の緑藻

*Dunaliella tertiolecta*がこの条件を満たしていたので、本株をこれ以降の処理実験に供した。種々の解析の結果、NOの処理には酸素が不可欠であり、液相に溶解した酸素が藻細胞の作用を受けて液相に溶解したNOを酸化し、処理を行っていることが明らかとなった。さらに、暗条件においても通気ガスに酸素を加えることによって、明条件と同等の処理率が得られたことから、藻細胞の光合成に由来する酸素だけでなく、気相に添加した酸素もNOの処理に利用できることが明らかとなった。本システムにおいては、細胞濃度が低い場合には細胞濃度に依存した処理率の増加が観察され、細胞濃度が十分に高い場合には細胞濃度に関係なく、処理率は約65%で一定となった。また、処理率は通気するNO濃度に影響を受けなかった。これは、NOの酸化以外にNOの処理速度を支配する律速段階が存在していることを意味している。そこで、気泡の培養液中の滞留時間とNO処理との関係について調べた結果、滞留時間の増加に従い出口NO濃度は指数関数的に減少していたことから、NOの液相への溶解が本処理システムの律速段階であることが明らかとなった。

将来的な微細藻類を用いたNO<sub>x</sub> 処理システムの実用化に際しては、高い効率で長期間安定にNOを処理できるシステムを構築する必要がある。本処理システムの律速段階はNOの液相への溶解にあるので、これを促進すれば処理率の向上につながると考えられる。そこで、気液界面積を増加させるために通気する気泡を小さくし、処理実験を行った。気液界面に細胞が吸着することによって生じる起泡分離現象を抑えて、均一な培養が可能である向流型エアリフトリアクターを新たに製作し、100ppm NO を通気した結果、約95%まで処理率を上げることに成功した。また、実排ガス中の最も高い濃度に当たる300ppm NO を含む人工排ガスを通気しながらVTRを用いて連続培養を行い、連続処理の可能性について検討を行った結果、15日間にわたり良好な細胞増殖を保ち、約65%の処理率を維持することができた。*Dunaliella*は種々の有用物質を生産する株として広く知られている。そこで、NOの連続処理によって得られる藻体がバイオマスとしての有用性を保持しているか否かについて調べた結果、藻細胞は乾燥重量当たり約35%のデンプンを含有していた。デンプンは食餌として利用する際の重要な評価要素であり、エタノールなどのエネルギー物質の生産基質としての利用価値が高い。

本研究では固定発生源からのNO<sub>x</sub> の排出抑制を目的として、微細藻類によるNO<sub>x</sub>の生物的処理について基礎的検討を行った。微細藻培養系におけるNOの酸化処理プロセスを明確にし、本システムの律速段階を明らかにした。この情報をもとにして、処理システムの改良のための要点を示し、さらに微細藻類の連続培養系によりNOの連続処理が可能であることを示した。微細藻類を用いたNO<sub>x</sub> 処理システムは、排ガスの環境調和型処理・再資源化システムとしての今後の応用が期待される。

## 論文審査の結果の要旨

窒素酸化物 (NO<sub>x</sub>) は、工場のボイラーなどの固定発生源から比較的高濃度で排出され、酸性雨の原因物質の一つになっている。本研究は、排ガス中のCO<sub>2</sub>、NO<sub>x</sub> の同時処理リアクターシステムを開発し、水に難溶性の一酸化窒素 (NO) を効率的に除去することに成功した成果をまとめたものである。

新たに開発された微細藻類利用システムによるNOの処理には、藻細胞と酸素が必要であり、藻体の光合成に由来する酸素だけでなく、気相に添加した酸素もNOの処理に利用できることを見出した。さらに、細胞濃度が十分に高い場合には、NO処理の律速段階は気相から液相へのNOの溶解であることを明らかにし、内部循環式のリアクターを採用することによって気液接触面積を増加させ、NOの処理効率を向上させることに成功した。また、処理されたNOは微細藻類の窒素源として資化されることを確認し、窒素制限連続培養システムにおいてNOの安定な連続処理が可能であることを実証した。

本研究は、アンモニアを還元剤とする従来の接触還元法に代わる、環境調和型の新たなNO処理システムの可能性を提示している。環境生物工学に寄与するところが大きく、本論文は博士論文として価値あるものと認められる。