

Title	第四アンモニウム塩系化合物の微生物分解
Author(s)	西山, 直宏
Citation	大阪大学, 2002, 博士論文
Version Type	
URL	https://hdl.handle.net/11094/44467
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"〉 大阪大学の博士論文について 〈/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	にし やま なお ひろ 西 山 直 宏
博士の専攻分野の名称	博 士 (薬 学)
学位記番号	第 17345 号
学位授与年月日	平成14年11月25日
学位授与の要件	学位規則第4条第2項該当
学位論文名	第四アンモニウム塩系化合物の微生物分解
論文審査委員	(主査) 教授 西原 力 (副査) 教授 田中 慶一 教授 那須 正夫 教授 宮本 和久

論 文 内 容 の 要 旨

微生物は、生物の死骸や排泄物を処理する生態系の分解者であり、多種多様な化学物質を分解して、生態系のエネルギーおよび物質の循環に組み込む能力を備えている。そのため、微生物による化学物質分解性は、污水处理施設の生物処理にも応用され、排水を経由して廃棄される化学物質の環境負荷の低減に重要な役割を果たしている。第四アンモニウム塩系化合物 (Quaternary Ammonium Compounds、以下 QACs) は、分子内に第四アンモニウム構造と一つ以上の長鎖アルキル基を有する陽イオン性界面活性剤であり、家庭用品や工業化学品に広く利用されている。したがって、一次排出先の污水处理施設内での QACs の挙動解析は、この化学物質の環境影響を評価する上で重要であり、污水处理施設での被処理性や活性汚泥による生分解度は既に明らかにされている。本研究では、活性汚泥中での QACs の微生物分解の解明を目的にして、活性汚泥および汚泥から分離した QACs 分解微生物を用いて、QACs の分解特性を検討した。

モノアルキル QACs の一つであるドデシルトリメチルアンモニウムブロミド (以下 DTAB) は、都市下水処理場の活性汚泥により微生物分解を受けた。分解中間体の化学構造を $^1\text{H-NMR}$ により解析したところ、トリメチルアミン (以下 TMA)、ジメチルアミン (以下 DMA) そしてモノメチルアミン (以下 MMA) が確認された。溶存有機炭素の消失と二酸化炭素への無機化が認められたことを合わせて考察すると、モノアルキル QACs は第四アンモニウム窒素とアルキル基 α 位炭素の結合の開裂 (N-dealkylation) により分解が始まり、生成する第三アミンが N-demethylation を受けてさらに低級化し、最終的には二酸化炭素などに無機化すると考えられた。

都市下水処理場の活性汚泥を微生物源にして、DTAB を唯一の炭素/エネルギー源にしてスクリーニングを行ったところ、DTAB の無機化率が活性汚泥と同等レベルのグラム陰性桿菌の *Pseudomonas fluorescens* を分離することができた。その一つである F7 株は、DTAB を第四アンモニウム窒素とアルキル基 α 位炭素の結合の開裂 (N-dealkylation) により分解し、続いて TMA をさらに低級化する (N-demethylation) 機能を併せ持つこと、すなわち活性汚泥の DTAB 分解経路と全く同じであり、活性汚泥の中で DTAB 分解に重要な役割を果たしていることが示唆された。この分解微生物は、DTAB の一次生成物 TMA を唯一炭素/エネルギー源にすると、N-demethylation による DMA の生成と菌体増殖を示さなかった。しかし、DTAB の長鎖アルキル基に由来する分解中間体の一つである脂肪酸塩の共存下では、TMA の N-demethylation が認められたことより、脂肪酸塩の資化に伴う代謝が N-demethylation を調節しているものと考えられた。脂肪酸塩は DTAB の分解に対しても促進作用を示した。非資化性の陰イオン性化合物の共存および DTAB 濃度の低減によっても分解の促進が認められたことより、脂肪酸塩と DTAB がイオンコンプレクス形成が

DTAB の微生物阻害作用が抑制し、その結果として DTAB の分解が促進したものと考えられた。以上のことより、分解生成物の脂肪酸塩は、炭素/エネルギー源として利用されるだけでなく、DTAB の微生物阻害性の抑制および TMA 分解の活性化因子として機能することが明らかになった。

都市下水処理場の活性汚泥の中から、ジアルキル QACs を分解する微生物を分離し、分解特性を検討した。ジデシルジメチルアンモニウムクロライド (以下、DDAC) を唯一の炭素/エネルギー源にして分離した TN4 株は、モノアルキル QACs 分解微生物と同様に *Ps. fluorescens* に帰属された。DDAC の分解中間体として、モノデシルジメチルアミン (以下 MDA) と DMA の生成が確認され、N-dealkylation を繰り返して、DDAC を低級窒素化合物に分解することを明らかにした。TN4 株による DDAC の N-dealkylation は培養条件に依存しないが、一次生成物 MDA のそれは、栄養培地による前培養や脂肪酸塩の共存などにより遅延した。このことは、2 回の N-dealkylation が同一の酵素によるものではなく、最初の N-dealkylation は構成酵素そして MDA の N-dealkylation は貧栄養時に誘導される酵素によるものであることを示唆していた。TN4 株はモノアルキル QACs とアルキルベンジルジメチルアンモニウムクロライド (塩化ベンザルコニウム) に対しても資化性を示し、それらの分解経路はジアルキル QACs の場合と同様に長鎖アルキル基の N-dealkylation であった。また、この分解微生物は、これらの QACs に対して強い耐性を有していることも明らかにした。

本研究において、QACs の分解微生物とその分解特性を明らかにした。様々な化学構造の QACs に対する分解性と耐性を併せ持つこれらの微生物は、活性汚泥内で QACs (混合/高負荷排水を含む) の分解を行っているものと考えられる。また、分解生成物の脂肪酸塩が QACs の分解活性化に関与していたことは興味深く、QACs 排水処理の効率化にも役立つ可能性があると思われる。

論文審査の結果の要旨

西山君は、分散剤や柔軟化剤、殺菌剤などとして広く利用されている陽イオン界面活性剤、第四アンモニウム塩系化合物 (QAC) の微生物による分解について検討した。その結果、活性汚泥中にモノアルキル型、ジアルキル型 QAC 分解菌が存在し、脱アルキル反応により分解されること、それらの単離した細菌は QAC 耐性などの性状を有することを明らかにした。なお、ジアルキル型 QAC 分解菌の単離は同君がはじめて報告したものである。

以上の成果は、単に殺菌作用を有する QAC の微生物分解様式を明らかにしただけではなく、それらの環境動態に関して有益な知見を与え、学術的だけではなく社会的にも高く評価されるものであり、博士 (薬学) 学位論文として充分価値あるものと認められる。