

審査の結果の要旨

氏名 橋本 崇史

本研究はヒ素汚染地域におけるヒ素汚染物の浄化を念頭に置いた微生物によるヒ素気化のメカニズム解明を目指した基礎的な研究である。

ヒ素汚染は工業的にも発生することがあるが、現在のヒ素中毒患者の多くは古の火山活動など、自然に発生する高濃度のヒ素により被害を受けている場合が多い。現在バングラデシュやインドベンガル湾周辺地域など、広い地域で問題となっているが、中でも東南アジア、南アジアにおいては飲料水として用いている地下水のヒ素汚染が深刻であり、数千万人が汚染された地下水を摂取していると言われている。飲料目的として地下水等からヒ素を除去するためにはもともと地下水に含まれる水酸化鉄との共沈作用を用いた方法が広く用いられている。水酸化鉄との共沈では、ヒ素を高濃度に含む汚泥が発生し、さらに汚染された汚泥が適正に処理されないことによる汚染の不安がある。このような汚泥、また汚染土壌などの固形物からのヒ素を除去ないしは安定化する技術は、土壌の廃棄、コンクリートなどによる土壌固化、土壌洗浄（鉱酸などによる化学的洗浄）などの方法が知られているが、発展途上国ではコストや技術水準等の課題で導入が難しい。新しいヒ素の安定化・除去技術の開発が望まれている。メタン菌などの特定の微生物がヒ素を気化することは知られている。この作用を環境浄化のプロセスとして発展させることが可能かどうか、まだ研究が十分に進んでいない。本研究はその作用を調べ、定量的なヒ素気化効率・速度の測定を行うと同時にその効率等に影響する環境因子を解明する。また、混合微生物叢の中でこのヒ素の気化作用を担っている微生物を推定し、それらの消長を調べることにより、どのような環境状況でヒ素気化が効率的に行われるかを調べることができる。

まず、中温嫌気性消化汚泥を種汚泥とする混合微生物叢で気体ヒ素生成速度の測定を異なるヒ素条件下で行った。その結果、ヒ素濃度が高くなるにつれて大きくなることが分かった。ヒ素の毒性のメタン生成活性に与える影響は、加えたヒ素濃度が高くなるにつれ ($2.5 \text{ mg l}^{-1} \rightarrow 75 \text{ mg l}^{-1}$)、メタン生成速度の低下が大きくなる（ヒ素を加えない場合のメタン生成速度に対して、53.6 %、46.9 %、19.4 %、9.15 %、6.1 % (2.5 、 7.5 、 22.5 、 37.5 、 75 mg l^{-1} の順)) という結果となった。ヒ素濃度 が 2.5 - 37.5 mg l^{-1} の場合ではその後回復が見られ

たが、 75 mg l^{-1} では回復は見られなかった。このことから 37.5 mg l^{-1} までのヒ素濃度に対しては馴化する能力があることが分かった。ヒ素濃度が 75 mg l^{-1} の場合ではメタン生成がほぼ停止していたが、TMAの生成は起きていた。このことよりメタン生成細菌以外の微生物もヒ素の気化に関与していることが示唆された。

また、ヒ素の気化を担っている微生物を特定するため、運転している嫌気性消化槽において、ヒ素を気化することが知られている水素資化性メタン生成細菌および酢酸資化性メタン生成細菌の存在を調べたところ、水素資化性メタン生成細菌 *Methanobacterium* spp.の存在が確認された。*Methanobacterium* spp.には高いヒ素気化能を持つと言われる *Methanobacterium formicicum* が属しており、運転した嫌気性消化槽におけるヒ素の気化に対し *Methanobacterium* spp.の寄与が示唆された。

次に、ヒ素を気化するとして知られている *Methanobacterium* spp.として、*M. formicicum* および *M. bryantii* を2種の水素資化性メタン生成細菌を異なるヒ素濃度条件下において純粋培養を行い、ヒ素の気化特性を調べた。*M. formicicum*、*M. bryantii* ともに 37.5 mg l^{-1} のヒ素濃度までの培養系において気体ヒ素が確認され、その気体ヒ素形態はアルシン、モノメチルアルシン (MMA)、ジメチルアルシン (DMA)、TMAの4種であった。 37.5 mg l^{-1} までのヒ素濃度におけるヒ素のメタン生成速度への影響として15%ほどの低下が見られた。しかし 75 mg l^{-1} のヒ素濃度においてはほぼメタン生成が停止するという結果となった。このことよりこれら水素資化性メタン生成細菌は 37.5 mg l^{-1} までのヒ素濃度には耐性があることがわかった。

本研究は微生物のヒ素を気化する能力を工学的に利用するために重要な基礎的な知見を提供し、ヒ素汚染廃棄物や土壌の新しい浄化方法開発の基礎を築いた。

よって本論文は博士（工学）の学位請求論文として合格と認められる。