

ふりがな	すがや かずお
氏名	菅谷 和夫
学位	博士(工学)
学位記番号	新大院博(工)第192号
学位授与の日付	平成17年3月23日
学位授与の要件	学位規則第4条第1項該当
博士論文名	備蓄原油の生物学的脱窒プロセスに関する研究

論文審査委員	主査 教授 大川 輝
	副査 教授 谷口正之
	副査 教授 山際和明
	副査 教授 今泉 洋
	副査 助教授 伊東 章

#### 博士論文の要旨

本論文は「備蓄原油の生物学的脱窒プロセスに関する研究」と題して、処理のための特別な期間を設けることを必要とせず、常温、常圧の低エネルギー条件下、原油から環境汚染物質の除去が行えると同時に、原油の品質向上も図ることが可能となる備蓄原油タンクを利用する生物学的脱窒プロセスの構築のための工学的検討すなわち概念的な計画、設計データの取得から工業規模での実現性の評価にわたる成果を論じている。まず、キノリンを含有窒素化合物のモデル物質として、その分解菌 *Comamonas* sp. TKV3-2-1 の培養特性ならびに原油中のキノリンの分解特性など、新規脱窒プロセス設計の基礎データを提示している。次に、原油備蓄タンクの構造に依存して決まると想定される2つの生物学的脱窒プロセス、すなわち、備蓄タンク外部に設置した槽において脱窒反応を行う外部リアクター方式によるプロセスならびに備蓄タンク内で直接反応を行う内部リアクター方式によるプロセスのそれぞれについて設計操作因子を解明するとともに、提案した2つの脱窒プロセスそれぞれの実用化を技術的および経済的側面から検討、考察した成果をまとめている。論文は6章で構成され、その要旨は以下のようなものである。

第1章は緒言であり、本研究の背景を記述するとともに、関連する既往の研究を概観し、本研究の目的を記述している。

第2章では、備蓄原油の生物学的脱窒プロセスの構築において処理費用の低減のために特に重要となるキノリン分解菌、*Comamonas* sp. TKV3-2-1、の培養生産に関する検討結果について述べている。すなわち、阻害物質と想定されるアンモニアの菌の増殖への影響を最小限にするための培地希釈率の検討、希釈培地を用いたフィード培養および連続培養による脱窒菌、すなわちキノリン分解菌生産について検討を行い、培養液中のアンモニア濃度が  $700\text{mg/dm}^3$  を超えないように調整した培地を用いる連続培養を行うことによって、比活性を一定に保ったまま、 $9\text{g/dm}^3$  の菌体濃度の培養液を継続して得ることができること、また、原油の生物学的キノリン分解プロセスで使用する培養槽容量はフィード培養に用いる槽容量の  $1/7.5$  と、その大きさを大幅に低減できることを明らかにしている。

第3章では、前章の培養生産で得られた脱窒菌を、備蓄タンクの外部に設置するバイオリアクターに用いる脱窒プロセス、いわゆる外部リアクター方式による原油脱窒プロセスについて検討している。

まず、原油中の生物学的脱窒について検討を加え、キノリン分解菌 *Comamonas* sp. TKV3-2-1 は原油中のキノリンを水溶性物質に分解して窒素成分を除去することができ、その分解活性は1週間保持できるという成果を初めて見出している。ついで、本原油脱窒プロセスの構築において重要となる反応操作条件について調べ、キノリン分解反応は原油と菌体懸濁液の混合比率および攪拌回転数に影響され、バイオリクターである通気攪拌型ファーメンターにおける脱窒反応では、原油比率が83%の条件下で2kW/m<sup>3</sup>の比投入動力に相当する攪拌回転数が最適であることを明らかにしている。さらに、原油と脱窒後の菌体懸濁液分離方法について検討し、反応後の原油と菌体懸濁液は分離板型遠心分離器で分離できることを確認するとともに、外部リアクター方式による原油中のキノリン分解プロセスは十分構築できるプロセスであることを明らかにしている。

第4章では、より低コストでの脱窒処理が可能になると想定される、備蓄タンクそのものを反応場、すなわちバイオリクターとして直接利用する方式、いわゆる内部リアクター方式による生物学的脱窒プロセスについて検討している。備蓄タンクでは、その設置構造上、生物学的脱窒のための反応温度をコントロールすることは困難であり、設置場所に依存して、微生物にとっては適当ではない低温で反応を行わざるを得ない場合がある。また、備蓄基地は防爆に対する安全対策上、空気を積極的に使用することは好ましくなく、現在の基準では備蓄基地で使用するガス中の酸素濃度には制限が加えられている。まず、反応温度の脱窒速度に及ぼす影響については、キノリンの分解反応は10°Cでも可能であることを示すと同時に、本方式はタンク内温度が一定で10°C以下になることがない、地下備蓄方式への適用が有望であることを指摘している。ついで、反応に必要な酸素を供給するためのガス中の酸素濃度は、安全上問題ない5%以下でもキノリンが分解できることを明らかにしている。さらに、備蓄タンクをバイオリクターとして使用するには、スプレーを使用して、菌体を含む水を備蓄タンク内原油中に循環分散させる方法を採用することで、数ヶ月で脱窒、すなわち100%のキノリンを分解できることを確認している。

第5章では、第3章、第4章で得られた結果を用いて、実際の備蓄原油100,000 m<sup>3</sup>を生物学的に脱窒処理する2つのプロセスの実現性と経済性について具体的に検討、評価を行っている。外部リアクターを用いる脱窒プロセスでは30m<sup>3</sup>の培養槽と容量250m<sup>3</sup>のバイオリクターが必要であること、一方、備蓄タンクをバイオリクターとして使用する脱窒プロセスの場合は容量60m<sup>3</sup>の培養槽が必要であることをそれぞれ明らかにしている。同時に、これらの培養槽ならびにバイオリクターは、既存のバイオプロセスで使用されている一般的な仕様であり、問題なく製作できることも指摘している。また、両プロセスでの処理コストは1m<sup>3</sup>当たり2,000円台であり、1m<sup>3</sup>当たり20,000円台である現状の原油価格を考慮すれば十分に実現可能なプロセスであることを明らかにしている。

第6章は総括であり、本研究で得られた知見をまとめるとともに、今後の展開について述べている。

#### 審査結果の要旨

本論文で提案した備蓄原油の生物学的脱窒プロセスは高温、高圧の反応条件を必要とする従来の化学的脱窒プロセスに代わるプロセスとして新規に開発、実用性を考慮の上構築されたものである。バイオプロセスを既存の石油精製プロセス内部へ組み込むことは、微生物反応の速度が遅いという短所から困難であるとの認識が現状であった。この問題を、数年から数十年のオーダーである原油の備蓄期間に着目、備蓄タンクを利用し、原油を直接処理することで克服し、逆に常温、常圧の反応条件を原則とするバイオプロセスの長所を十二分に生かしたプロセスの独創的な計画を行い、併せて的確な実験により設計指針を確立している。また、本プロセスについて技術的および経済的側面から実際的な評価を行い、その工業規模での実現性を明らかにした点も高く評価される。さらに、石油精製における環境保全のみならず省エネルギーを図る上でより有効な処理プロセスへの展開に対する示唆を与えていることは注目に値する。

以上のように、本論文には、新規性、独創性に加えて実際性、発展性が認められ、内容として博士論文に値するものである。よって、本論文は博士(工学)の学位論文として十分であると認定した。