

氏 名 (本 籍)	RENI DESMIARTI (インドネシア)
学 位 の 種 類	博 士 (工学)
学 位 授 与 番 号	甲第 372 号
学 位 授 与 日 付	平成 21 年 9 月 9 日
専 攻	生産開発システム工学専攻
学 位 論 文 題 目	Behavior of natural estrogens in relatively closed water environment under aerobic and anaerobic conditions (好気と嫌気条件下における天然女性ホルモンの閉鎖的水域での挙動に関する研究)
学位論文審査委員	(主査) 佐 藤 健 (副査) 藤 田 裕一郎 李 富 生

論文内容の要旨

Natural estrogens such as estrone (E1), 17 β -estradiol (E2) and estriol (E3) are greatly concerned due to their potential adversary impacts on aquatic environmental systems. Compared to alkylphenols, the estrogenic potency of natural estrogens is much stronger. Humans and animals excrete natural estrogens from their bodies, which end up in the aquatic environment through several pathways, such as from the effluent of sewage treatment plants (STPs), animal wastes and biosolids applied to agricultural fields. Natural estrogens have been detected in the effluent of STPs, animal wastes, ground water and surface water.

In this research, the behavior of E2 and E1 in relatively closed water environment under aerobic and anaerobic conditions was studied by static and continuous flow experiments using water and sediment mud from a freshwater reservoir, namely the Ushikubiri Reservoir of Miharu Dam in Fukushima Prefecture. For this, four sediment columns (two aerobic ones and two anaerobic ones) were employed, which were structured by packing 30 cm of undisturbed sediment and 60 cm of overlying water collected from two sites within the reservoir. A simple mass balance model that considered mass transfer, sorption and biodegradation was proposed to simulate the behavior of the targeted estrogens in the columns. Through model simulations, the contributions of sorption and degradation to the fate of E2 and E1 in the columns were quantitatively estimated. The water-sediment partition coefficients of E1 and E2 involved in the model were determined through batch sorption experiments by using six sediment layers sliced from undisturbed sediment cores as the sorbent. The first-order degradation rate parameters of E2 were estimated through batch degradation experiments with water-sediment suspensions. The results showed that the water-sediment partition coefficients of E1 were 6.45-15.6% larger than those of E2, indicating relatively stronger sorption capacity of E1 onto sediment particles. In regard of the degradation rate of both estrogens, the first-order degradation rate parameters of E1 were found to be 12.90-76.35% smaller than those of E2. In addition, for both E1 and E2, faster degradation by microbes populated inside the sediment phase was found for columns operated under aerobic condition than those under anaerobic condition. The transformation of E2 to E1 was also confirmed under both aerobic and anaerobic conditions.

By comparing the concentration levels of E2 and E1 in the effluent of all columns operated for different hydraulic retention times (HRTs) in the continuous flow experiments, the impact of HRT on the behavior of both estrogens within the sediment mud columns was assessed. To further clarify the extent of impacts of HRT, sorption and degradation on the disappearance of E2 and E1 in the sediment columns, variance analysis was performed based on the simulation results generated by changing the values of parameters related to above-mentioned three factors. The results indicated that the concentrations of E2 and E1 in the column effluent were controlled most significantly by the sorption capacity of the estrogens onto sediment particles, with the determined contributory ratios changing in the order of sorption > HRT > degradation. All results of this research indicated that E1 was more persistent than E2, which supports the field observation results on the vertical distribution profiles of

both estrogens in the sediment mud phase of the studied reservoir.

論文審査結果の要旨

本研究は、内分泌かく乱作用が著しく高い天然女性ホルモンである 17β エストラジオール(E2)とエストロン (E1) が閉鎖的水域で示す挙動を解明するために、国土交通省が管轄する福島県・三春ダム牛糞（うしくびり）前貯水池から採取した底泥と水を用いて、初めに、回分式生分解実験と吸着実験とを行い、ついで、底泥を充填したカラム実験を実施して、貯水池底部付近の水域と底質間における E1 と E2 の変動特性を把握し、並行して、吸着・生物分解・物質移動を考慮した物質収支式に、明らかにした特性を組み込んだ数値モデルを構築し、その解析を通して E1 と E2 の挙動を系統的に検討し、基礎と応用の両面においてこれまでの研究を著しく発展させたものである。

本研究の主な成果は以下の通りである。

- ・底泥と水の混合液を用いた回分式生物分解実験を行い、① 好気・嫌気条件下とも、E2 は時間の増加に伴って液相から消失し、消失したものの殆どは底泥に生息する微生物によって生物分解されたか、E1 へ変換されたかによるものであること、② E2 の消失は一次反応式によってほぼ表現され、見かけ上の消失速度係数はダム湖内物質動態に大きな影響を与えると考えられる深さ約 30cm までの底泥層内において、上層から下層に移動するにつれて低下すること、③嫌気条件下の場合に比べて好気条件下の場合の方が消失速度係数が大きいこと、などの挙動特性を明らかにした。
- ・微生物の活性を停止させた凍結乾燥底泥試料と水との混合液を用いた回分式吸着実験を行い、① E2 と E1 はともに底泥に吸着され、吸着平衡はヘンリー式によって表されること、② 吸着係数は E2 より E1 の方がやや大きいこと、③ 深さ約 30cm までの底泥層内において、吸着係数は鉛直方向にほとんど変化しないこと、などを明らかにした。
- ・底泥を攪乱せずに充填した好気条件下と嫌気条件下の底泥カラムにおいて E2 と E1 の消失挙動を検討し、① 上述の回分式実験で得た知見をこれらのカラム実験で検証するとともに、② 生物分解、吸着および水相と底泥相との間での物質移動を考慮した物質収支モデルを構築し、両物質の消失挙動を数値的にシミュレーションした。また、③ E2 と E1 のカラム内での挙動を、同モデルに基づくシミュレーションにより、系内から消失した分、液相での残留分および底泥への吸着分の 3 つの画分として評価し、E1 は E2 に比べて底泥に蓄積されやすいことを示した。
- ・底泥を充填した好気条件下と嫌気条件下の底泥カラムに E2 と E1 を連続的に流入させた通水実験を行い、① 両物質の消失挙動に対する滞留時間と流入濃度の影響を明らかにするとともに、② 流入項、流出項、生物分解、吸着および水相と底泥相の両相間における物質移動を考慮した物質収支モデルに基づく消失挙動のシミュレーション手法を提案した。また、③ E2 と E1 の消失挙動のシミュレーション結果に対して、三元配置法に基づく統計解析を施し、生物分解、吸着および滞留時間の寄与度を明らかにした。

本研究で得た E2 と E1 の挙動に関する知見は、ダム湖などの閉鎖性水域での挙動のみならず、河床堆積物が形成される河川水域での挙動を把握・評価する上でも有用であると考えられる。また、提案したシミュレーション手法に基づく数値計算により、関係物質の自然水域での消長を予測することが可能となり、その結果は関係物質による水道水の健康リスクを抑えるための水源から浄水処理施設内での対応策の決定に資するものとなる。

以上のことから、本論文は学位論文として合格であると判定する。

最終試験結果の要旨

論文提出者は在学中の 3 年間に於いて、勉学・研究活動に精勤し、所定の講義の単位を取得するとともに、学位申請論文としての研究内容を 4 編の学術論文と 5 編の会議論文（国際会議論文 2 編と国内会議論文 3 編）として公表した。

これらの結果を確認して、学位認定に伴う最終試験の結果を合格と判定する。