OUKA
The University of Osaka
Institutional Knowledge Archive

Title	下水処理におけるエストロゲンの挙動と除去に関する研究
Author(s)	橋本, 敏一
Citation	大阪大学, 2009, 博士論文
Version Type	VoR
URL	https://hdl.handle.net/11094/1705
rights	
Note	

The University of Osaka Institutional Knowledge Archive : OUKA

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

The University of Osaka

【142】

氏名	橋本敏一（はしもととしかず）
博士の専攻分野の名称	博士（工学）
学位記番号	第２３２５４号
学位授与年月日	平成21年３月24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	下水処理におけるエストロゲンの挙動と除去に関する研究
論文審査委員	（主査） 教授 池　道彦 （副査） 教授 加賀　昭和　　准教授 惣田　訓

論文内容の要旨

本論文は、下水中の代表的な内分泌撹乱物質のうち、特にそのリスク低減の観点から最も重要と考えられるエストロゲンに着目し、下水処理における挙動の解明と除去性能の向上を目的として行った一連の調査および実験研究の結果をまとめたものであり、緒論、4章からなる本論、総括並びに結論から構成されている。

緒論では、下水道における内分泌撹乱物質の検出状況や消長に関する既往の研究を概観するとともに、それを踏まえて本論文の背景および目的を明示した。

第１章では、全国の下水処理場における各種内分泌撹乱物質の消長を調査し、下水道を経由する内分泌撹乱物質のリスク低減の観点からは、天然エストロゲンであるエストロン（E1）と17β-エストラジオール（E2）が最も重要であることを明らかにした。また、エストロゲンの除去率は、反応タンクの水理学的滞留時間（HRT）や固形物滞留時間（SRT）に多大な影響を受けることを明らかにし、下水処理の適正な制御により、その除去性能を向上し得ることを示唆した。

第２章では、下水処理におけるエストロゲンの除去特性を把握し、除去に適した運転条件を明らかにすることを目的として、実施設における調査、ならびに実施設の下水や活性汚泥を用いた処理実験を行った。その結果、エストロゲン除去は、主に生物学的な分解によることを確認するとともに、その除去効率はSRT制御に起因する活性汚泥性状の差によることを明らかにした。また、SRTを概ね10～15日程度以上に維持すると、効果的かつ安定的なエストロゲンの除去を達成できることを示した。

第３章では、活性汚泥中から単離したエストロゲン分解細菌の遺伝子型を利用して、その活性汚泥中での挙動を調査するとともに、分解細菌を活用したエストロゲンの除去向上について検討した。調査により、エストロゲン分解細菌*Novosphingobium* sp.が下水処理過程でのエストロゲン除去性能に貢献をしていることを確認した。また、エストロゲン分解細菌*Novosphingobium* sp. JEM-1株の培養菌体を活性汚泥中に添加するバイオオーグメンテーションや、培養菌体を固定化した担体の適用によって、活性汚泥法によるエストロゲンの除去性能向上が可能であることを明らかにした。

第４章では、下水処理水中に残存する低濃度のエストロゲンの高度処理法としてオゾン処理に着目し、その処理特性について実験的に検討した。その結果、消毒などを目的とした実用的なオゾン注入率（5～10mg/L程度）と反応時間（15分程度）により、下水処理水中のエストロゲンをほぼ完全に分解除去することが可能であり、オゾン処理が生物学的処理を補完するエストロゲンの高度処理法として有効であることを明らかにした。

総括並びに結論では、本研究で得られた成果を総括し、本成果が下水道における水循環系へのリスク低減と管理に広範に貢献できると結論するとともに、下水道におけるエストロゲン制御について今後の課題を示した。

論文審査の結果の要旨

内分泌撹乱物質は、人を含む生物の生体内に取り込まると正常なホルモン作用を撹乱し、生殖機能の異常や悪性腫瘍の発生などを引き起こすリスク・ファクターの一つである。特に人畜由来の天然エストロゲンは、合成化学物質と比較して非常に高い内分泌撹乱作用を及ぼす可能性があることから注目を集めている。このため、下水処理場においては、天然エストロゲンの挙動を把握し水環境へ及ぼすリスクを正確に評価するとともに、効率的かつ安定な除去に適した処理条件の選定や、現状技術の不完全な処理を補完する新たな処理技術の開発が重要な課題となっている。本論文は、下水処理における天然エストロゲンの挙動解明と除去性能の向上を目的として行った一連の研究の成果をまとめたものであり、要約すると以下のようになる。

（１）全国の中小規模の下水処理場において、標準活性汚泥法（CAS法）およびオキシデーションディッチ法（OD法）を採用している処理場で内分泌撹乱化学物質の汚染実態調査を実施し、処理水中のエストロゲン様活性は、主に天然エストロゲンであるエストロン（E1）と17β－エストラジオール（E2）の２物質に由来することを明らかにしている。また、反応タンクの水理学的滞留時間（HRT）や汚泥滞留時間（SRT）の長いOD法は、CAS法と比較して、エストロゲンの除去効率が高く、HRT、SRTが安定した処理を達成するための重要なパラメータであることを示している。

（２）下水処理場における詳細なエストロゲン挙動調査を行い、処理過程におけるE1の増加が下水中のエストロゲン抱合体の分解に起因すること、吸着性の高いE2は汚泥中に移行して水中から除去されること、さらに吸着性の低いE1は水中と汚泥中に分配されるが水中に残留しやすいこと等を明らかにしている。また、実下水を用いたパイロットプラントやラボスケールのリアクターによる処理実験によって、SRTが概ね10～15日程度以上では、効果的かつ安定なエストロゲンの除去ができることを明らかにし、現行の下水処理法における有効な運転条件を見出している。

（３）下水処理場におけるエストロゲン分解細菌*Novosphingobium* sp.の挙動をリアルタイムPCR法を用いて定量的に解析し、分解細菌数を高く維持すればエストロゲンの処理効率が向上することを明らかにしている。さらに、分離した分解菌 JEM-1 を活性汚泥に添加するバイオオーグメンテーションや、固定化担体に付着させ処理系に導入する新規の処理法を提案し、エストロゲンを現在よりも短時間で効率的に処理できることを実験的に検証している。

（４）下水処理水中のエストロゲンの補完的な高度処理法としてオゾン処理を適用し、有機物などが共存する条件下においてもエストロゲンが効率的に分解・除去されることを明らかにしている。また、各種処理条件下での検討から、消毒などを目的とした実用的なオゾンの注入率と反応時間内で、下水処理水中のエストロゲンをほぼ完全に分解除去し得ることを明示し、本法が実用的な仕上げ処理技術となることを示している。

以上のように、本論文は環境・エネルギー工学、特に下水処理におけるエストロゲンの挙動の解明とその除去に関する技術の発展に寄与するところが大きい。よって本論文は博士論文として価値あるものと認める。