



Title	非イオン界面活性剤アルキルフェノールエトキシレイト(APE)の生分解性と水環境中挙動に関する研究
Author(s)	牧, 秀明
Citation	大阪大学, 1995, 博士論文
Version Type	
URL	https://hdl.handle.net/11094/39767
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、 https://www.library.osaka-u.ac.jp/thesis/#closed 大阪大学の博士論文について

The University of Osaka Institutional Knowledge Archive : OUKA

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

The University of Osaka

氏名	牧秀明
博士の専攻分野の名称	博士(工学)
学位記番号	第12167号
学位授与年月日	平成7年11月30日
学位授与の要件	学位規則第4条第1項該当 工学研究科 環境工学専攻
学位論文名	非イオン界面活性剤アルキルフェノールエトキシレイト(APE)の 生分解性と水環境中挙動に関する研究
論文審査委員	(主査) 教授 藤田 正憲 教授 池田 功 教授 塩谷 捨明 教授 盛岡 通 教授 吉田 敏臣

論文内容の要旨

本論文は、代表的ポリオキシエチレン型非イオン界面活性剤であるアルキルフェノールエトキシレイト(APE)の水環境における生分解性とその分解経路、下水処理場流入水中の濃度分布と処理性、代謝産物の塩素処理により生成する臭素置換体の検出と実験的確認、およびその生態毒性に関する研究成果をまとめたもので、緒論、本論4章、総括ならびに結論からなっている。

緒論では、研究背景と既往研究について述べている。

第1章では、河川微生物による化学物質の生分解性評価法として開発されたTOC阪大法により、他の合成界面活性剤とその生分解性の比較を行い、難分解性のものは分解時間が長いだけではなく、植種源の違いによる分解時間の差も大きくなるという結果を得ている。また、試験の結果残存したAPE(NPE[ノニルフェノールエトキシレイト])の分解産物は、その親水基であるEO鎖末端がカルボキシル基となったNP1ECであることが判り、従来水環境中より必ずEO鎖末端が水酸基のままであるNP1~2EOと共に検出されていた結果とは異なる知見を得ている。

第2章では、活性汚泥よりAPE資化菌を分離、固定し、本株のNPE分解特性を明らかにしている。その結果、NPEの最終分解産物がNP2EOとNP2ECであることを明らかにすると共に、第1章の結果も併せると、これらの分解産物をさらにNP1ECまで分解するには、他種の微生物が関与しなければならないことを示唆している。また、本株のAPEのEO鎖代謝系の誘導には、EO鎖そのものではなく疎水基が重要であるという新しい知見を得ている。

第3章では、国内各地の公共下水処理場における一連のNPE関連化合物の濃度分布調査を行い、調査した処理場全ての流入下水にNPEが含まれており、その濃度は工場廃水受け入れの有無と廃水源の業種に依存することを明らかにしている。また、滅菌放流水中に臭素置換されたNPE生分解産物が存在する処理場があることを明らかにしている。

第4章では、第3章で検出された臭素化NPE生分解産物の生成条件を検討し、臭素化は化学量論的に行われないと、アルカリ域のpHでは臭素化が著しく鈍化すること、そして塩素置換体はほとんど生成しないことを明らかにしている。また、その生態毒性について、umu試験では、代謝活性の有無に関わらず遺伝毒性は認められなかったが、オオミジンコを用いた急性毒性検査では臭素置換されることにより顕著にその毒性が上昇することを明らかにしている。

最後に、総括ならびに結論では、本研究で得られた結果を考察し、芳香族系合成界面活性剤の分子構造上の問題点について水環境的側面より考察し、将来への展望を述べている。

論文審査の結果の要旨

現在使われている各種界面活性剤の中で、非イオン系のポリオキシエチレン型界面活性剤であるアルキルフェノールエトキシレート（APE）は、洗剤としてよりも主として工業用の分散剤、乳化剤としての用途が多く、生産・消費量共に増加する傾向にある。従って、それらは処理後あるいは未処理のままで大量に水環境中に排出され、水生生物などに影響を及ぼしていると予想される。本論文では、上記の視点からAPEの各種河川水中での生分解性とその分解経路、各地の下水処理場における流入水中の濃度分布と生物処理過程での挙動、さらに分解産物を塩素処理した際に生成する臭素置換体の検出と実験室内での再現、およびその生態毒性について検討している。本論文の成果を要約すると以下の通りである。

- (1) 河川微生物を用いた生分解性評価法であるTOC阪大法により、各種界面活性剤の生分解性を比較し、難分解性のものは分解時間が長いだけでなく、植種源の違いによる分解時間の差も大きくなることを明らかにしている。さらに、残存したAPE（NPE〔ノニルフェノールエトキシレート〕）の分解産物は、その親水基であるEO鎖末端がカルボキシル基となったNP1ECであることを示し、従来の知見とは異なることを明らかにしている。
- (2) 活性汚泥よりAPE資化菌を分離・同定し、本菌株のNPE分解について検討した結果、最終分解産物はNP2EOとNP2ECであることを明らかにしている。河川水中での分解産物の結果も併せると、さらにNP1ECまで分解する微生物が水環境中に存在することを示唆している。また、本株のAPEのEO鎖代謝系の誘導には、EO鎖そのものではなく、疎水基が重要であるという新しい知見を見いだしている。
- (3) 国内各地の公共下水処理場の流入水、処理水および放流水について、NPEとその関連化合物の濃度分布調査を行い、全処理場の流入水からNPEを検出し、それは工場排水の受け入れの有無と廃水源の業種と相関する傾向を得ている。また、滅菌放流水中に塩素置換されたNPE生分解産物が検出される処理場が在ることを明らかにしている。
- (4) 臭素化されたNPE生分解産物の生成条件を検討し、臭素化は化学量論的に行われないこと、アルカリ域のpHでは臭素化が著しく鈍化すること、そして塩素置換体はほとんど生成しないことを明らかにしている。また、その生態毒性について、umu試験では代謝活性の有無に関わらず遺伝毒性は認められなかったが、オオミジンコを用いた急性毒性検査では、臭素置換されることにより、顕著にその毒性が上昇することを明らかにしている。

以上のように、本論文ではアルキルフェノールエトキシレートの生分解性と水環境中での挙動解明を通じて、次の4つの新しい成果を得ている。(1) APEのEO鎖代謝系の誘導には疎水基が重要である。

(2) 分離したAPE資化菌によるNPE最終代謝産物はNP2EOとNP2ECで、NP1ECまでの分解には複数の微生物が関与している。(3) 下水処理過程で臭素化されたAPEの代謝産物が検出される。(4) 臭素化された代謝産物は、もとの化合物に比べオオミジンコにより強い毒性を示す。これらの成果は、生分解性の視点から、芳香族系合成界面活性剤の分子構造上の問題点を指摘し、今後の製品開発への指針を提示したもので、水質管理工学および化学生態学分野に対して貢献するところが大である。よって、本論文は博士論文として価値あるものと認める。