

氏名	RIYANTO HARIBOWO
授与学位	博士(工学)
学位記番号	理工博甲第638号
学位授与年月日	平成26年9月24日
学位授与の要件	学位規則第4条1項
研究科, 専攻の名称	理工学研究科(博士後期課程)システム設計工学系専攻
学位論文題目	Study on management of river toxicity from residential area using Medaka(<i>Oryzias latipes</i>) bioassay as an index for aquatic habitat condition
論文審査委員	主査 山口大学 教授 関根 雅彦 山口大学 教授 今井 剛 山口大学 教授 新苗 正和 山口大学 准教授 樋口 隆哉 山口大学 准教授 通阪 栄一

【学位論文内容の要旨】

Trace chemicals such as endocrine disruptors and dioxins can cause many problems in the ecosystem, especially if released into environmental water. Previous studies have determined the acute toxicity levels of such chemicals. However, the observed concentrations of such chemicals in environmental water are usually much lower than the levels that cause acute toxicity. Furthermore, various other chemicals also exist in environmental water. Therefore, it is difficult to obtain information about the acute toxicity levels of each chemical, especially for the purpose of protecting the ecosystem.

A bioassay is an approach that can be used to obtain comprehensive information about the toxicity levels of chemicals. However, this approach is not well suited to environmental management, because it cannot be used to identify the chemicals. As an alternative, toxicity management methodologies based on bioassays, such as Whole Effluent Toxicity (WET), have recently attracted considerable attention. This method can be used to measure the toxicity of industrial wastewater without necessarily identifying the chemical.

This study had two objectives. The first objective was to demonstrate the applicability of a toxicity test using Medaka and 100-fold concentrated water and to determine the relationship between the toxicity of 100-fold concentrated water and aquatic habitat conditions. The second objective was to conduct a preliminary investigation of the relationships among chemical concentration, toxicity, and basin characteristics, which can be used to develop an approach for managing river toxicity.

On the basis of the analysis in Chapter 3, the results of the toxicity test using Medaka and 100-fold concentrated water indicated that the high levels of biodegradable organic matter (BOD) released from household wastewater also contains hydrophobic toxic matter and that the toxicity and chemical oxygen demand (COD) of seawater in industrial areas do not exhibit a clear relationship. Furthermore, the relationship between the toxicity of 100-fold concentrated water and aquatic habitat conditions was revealed; the number of clear-stream macrobenthic animals sharply decreased over an inverse if median lethal time (LT_{50}^{-1}) of 0.25 or an inverse of median effect time (ET_{50}^{-1}) of 0.5, and tolerant fish became dominant over an LT_{50}^{-1} of 0.3 or ET_{50}^{-1} of 0.5–1.0. Although this method has an advantage in that it reduces the amount of time and sampling needed to perform toxicity tests, it also has a disadvantage in that the toxicity index required for calculating toxicity load is LT_{50}^{-1} , which is based on time and hence cannot be treated as a concentration. Therefore, in Chapter 4, the lethal dilution rate (LDR_{50}), which can be treated as a concentration, is used as a toxicity index. LDR_{50} is defined as the dilution rate at which 50% of fish survive the acute toxicity test. The equation obtained for the relationship between LDR_{50} and LT_{50}^{-1} is $y = 0.1752x$, where $y = LDR_{50}$ and $x = LT_{50}^{-1}$, with $R^2 = 0.9306$.

Chapter 5 describes a preliminary investigation of the relationships among chemical concentration, toxicity, and basin characteristics. The results suggest that the detected toxicity in residential areas is, at times, sufficiently high to affect the aquatic habitat, and therefore the toxicity should be managed. On the basis of the GC/MS analysis and cluster analysis, the toxicity tends to be highly stable even when the composition and concentration of chemicals fluctuate. Furthermore, the chemical compositions taken at sampling points that are not adjacent to commercial or industrial facilities are different from basin to basin, but almost all toxic substances present are detected in low concentrations. In contrast, sampling points adjacent to commercial or industrial facilities exhibit various differences and, at times, show higher concentrations of toxins. A model analysis shows that LDR_{50} discharged from a basin dominated by residential areas can be explained using a simple model with two parameters, k' (toxicity decrease ratio) and d_w (LDR_{50} discharged from the population without sewer coverage). The obtained k' is 0.03 km^{-1} , and d_w is 0.08. Furthermore, when a sampling point is adjacent to commercial or industrial facilities, explaining LDR_{50} using the simple model is difficult. This fact might imply that even when commercial or industrial facilities discharge specific chemicals in river basins dominated by residential areas, such chemicals will not be retained in the stream for a long duration, and chemicals discharged from residences eventually dominate the toxicity profile. These findings suggest that toxicity from residential area should be managed, and the

pollution analysis procedure for sewerage designing can be applicable for toxicity management in the river the majority of which catchments are residential area.

【論文審査結果の要旨】

河川の生物生息状況と物理化学指標の関係は明確ではない。急性毒性を持つことが知られている微量化学物質の影響も考えられるが、個々の物質の環境中の濃度は急性毒性が出るレベルより桁違いに低い場合がほとんどであり、化学物質濃度による管理は難しい。一方、バイオアッセイによる毒性試験は有力な手段であるが、原因物質が特定できないため、管理には用いづらいとされてきた。近年、必ずしも物質を特定しないバイオアッセイによる工業廃水管理手法 WET が注目されているが、住居地域からの排水には適用しづらいものとされている。本研究では、河川水の毒性と生物生息状況の関係を明らかにするとともに、住居地域における河川水の毒性と化学物質の挙動調査に基づき、毒性管理の考え方を示すことを目的とした。

本論文の構成と内容は以下の通りである。

第1章では、研究の背景、目的および論文の構成について述べている。

第2章では、従来の研究についてまとめた。

第3章では、既存の手法より短時間で定量的に環境水の毒性を調べるためのメダカを用いた濃縮毒性試験法を提案し、住宅地河川では本毒性試験結果である50%致死時間の逆数(LT_{50}^{-1})と有機汚濁の間に相関がある一方、工業地帯の海水の LT_{50}^{-1} と有機汚濁は明確な関係性を有していないことを明らかにした。これは、工業地帯では有機汚濁と関係しない種々の毒性排出源があり得る一方、住宅地河川では有機汚濁主体の家庭排水が毒性にも寄与していることを示唆している。さらに、河川生物調査と本毒性試験結果から、清流の底生生物の数が $LT_{50}^{-1} > 0.25$ で急激に減少し、強耐性種が $LT_{50}^{-1} > 0.3$ で優勢になることを示した。これは、毒性と生物生息状況を関連付けた数少ない事例である。

第4章では、 LT_{50}^{-1} が濃度に関して比例尺度であることが保障されないことから、分析に要するサンプル量や器具・試験魚数は LT_{50}^{-1} より数倍多いが濃度に関して比例尺度である半数致死濃縮率(LDR_{50})を定義し、 LT_{50}^{-1} と LDR_{50} の関係性を求めた。これにより、本研究の濃度範囲では $LDR_{50} = 0.1752LT_{50}^{-1}$ の関係を得た。

第5章では、有機物汚染と毒性の間に関係が見られる住宅地河川に注目し、GC/MS一斉分析による化学物質濃度、毒性、および土地利用や下水道処理人口などの流域特性との関係を調べた。その結果、住宅地河川で検出された毒性が水生生物に影響を及ぼすレベルに達する可能性があること、それゆえその毒性は管理されるべきであることを示した。また、化学物質の種類や濃度は同じ流域内でも大きく変動するが、その毒性は比較的安定性があること、商工業施設に隣接しないサンプリング点で採取された化学組成は流域によって異なるが、ほとんどすべての毒性物質が低濃度であるのに対し、商工業施設に隣接したサンプリング点ではしばしば高い化学物質濃度が観察されることを示した。さらに、住宅地河川から排出される LDR_{50} は、毒性減少比 k' と下水道非処理人口に対する LDR_{50} 排出負荷量 d_w の2つのパラメータで説明できることを示し、 $k' = 0.03 [km^{-1}]$ 、 $d_w = 0.08 [-]$ を得た。これらのパラメータは、下水道計画で用いられる単純なモデルでも使用されるもので、既存の下水道計画の汚濁解析の枠組みによって住宅地河川の毒性が管理できることを示している。また、住宅地河川であってもサンプリング点が商工業施設に隣接している場合には、 LDR_{50} を上述のモデルで説明することは困難であることから、住宅地を主体とする流域の商工業施設から排出される化学物質は急速に分解され、最終的には住宅地から排出された化学物質により河川水の毒性が説明できると推察した。

第6章の結論では、本論文を総括しその成果と今後の研究課題について述べている。

公聴会には、学内外から 26 名の参加があり、活発な質疑応答がなされた。公聴会での主な質問内容は、① LT_{50} そのものではなくその逆数を指標とした理由、② LT_{50}^{-1} が濃度について比例尺度でないと考えた理由、③ LDR_{50} が濃度について比例尺度である理由、④化学物質のクラスタ分析によるグルーピングと距離の意味、⑤住宅地に注目した理由、⑥河川名の実名が伏せられている理由、⑦毒性値を求める際の関数の意味とグラフ表示との関係など多数であった。以上のいずれの質問に対しても発表者から適切な回答がなされた。

以上より、本研究は独創性、信頼性、有効性、実用性および完成度ともに非常に優れており、博士（工学）の学位論文に十分値するものと判断した。