

## 学 位 論 文 内 容 の 要 旨

学位論文題目	Monitoring of Chemicals and Toxicity Discharged from Residential Areas in Developing Countries.
氏 名	ASHRAF SHOKRY AHMED ELSHEIKH

Assessment of water is not only for suitability for human consumption but also in relation to its agricultural, industrial, recreational, commercial uses and its ability to sustain aquatic life. Water quality monitoring is a fundamental tool in the management of freshwater resources. However, water pollution has become one of the most serious problems in many countries, especially in the developing countries. The quality of surface water is a major factor affecting human health and ecological systems, especially around residential areas, since rivers and their tributaries passing through cities often impacted by chemical pollution, originating from municipal and industrial wastewater effluents, airborne deposition as well as runoff from urban and agricultural areas. Therefore, the investigation of chemicals and their corresponding toxicity effect is very important. Since, the complex mixtures of toxic substances occurring in surface waters are difficult to characterize by chemical analyses because each compound occurs at a very low concentration and requires a specific analytical method to be identified. Ecotoxicological tests on water extracts can be used as a screening tool to evaluate quickly and simply the overall quality of a water body with regard to micropollutant contamination.

Timor-Leste is a developing country with inadequate pollution control facilities, surface water and sanitation systems are very poor quality. Since, there are few researches about the toxicity from residential areas in developing countries, then the purpose of this study was to

- Introduce information about chemicals and their corresponding toxicity that discharged from residential areas into water streams in Dili city, Timor-Leste.
- Investigate the applicability of passive sampling for larval himedaka acute toxicity assay.

In chapter 3, the toxicity of organic chemicals that discharged from residential areas into water streams in Dili city was evaluated using concentrated water samples via Sep-Pak® Plus PS-2 cartridges combined with larval himedaka acute toxicity assay. The possible sources of organic pollutants were identified using GC/MS simultaneous analysis. The detection of coprostanol and many hydrocarbon components of fuel oils in Timor-Leste streams reflects the negative effects of anthropogenic activities on water streams as a result of discharging the house hold waste water without any treatment. Toxicity levels of water streams in Timor-Leste were comparable or higher than those of the Japanese water streams that were investigated in 2013. Those results were interesting and referred to the need for regular monitoring of the toxicity conditions in Timor-Leste water streams, but it is difficult because of unsafe monitoring sites, limited resources in Timor-Leste like shortage in laboratory, transportation facilities and unstable electricity therefore another sampling technique should be considered to avoid such these problems. In Chapter 4, we investigated the applicability of chemcatcher passive sampling disks as a substitute of active sampling via Sep-Pak® Plus PS-2 cartridges for larval himedaka acute toxicity assay, to evaluate the surface water quality. In order to select the most suitable passive sample disk among Styrene Divinyl Benzene (SDB) disks, a field and laboratory experiments were conducted and the results indicated that styrene divinyl benzene reverse phase sulfonated (SDB-RPS) disks were the most suitable to conduct a comparative toxicity study with active sampling via Sep-Pak® Plus PS2 cartridges and 10-L river water sample. SDB-RPS disks were deployed along 10 and 4 days as a long and short investigation periods, respectively. The Long deployment results showed that no toxicity was observed neither in the PS 3-day sample nor in any of the interval passive samples. Even though the amount of adsorbed chemicals in the PS 3-day and PS 2<sup>nd</sup> interval samples were higher than that in the PS 7- and 10-day samples, which both showed a little toxicity only at 100-fold concentrated samples. The amount of adsorbed chemicals in the PS 10-day sample was not equivalent to the sum of chemicals adsorbed in the individual PS interval samples. Whereas, the short deployment results showed that, the 4-day deployment period showed higher bioassay toxicity even the number of detected chemicals was the lowest. Whereas, more chemicals

were detected by other deployment periods and showed same bioassay toxicity value. Many chemicals were missed from the deployment samples. The decomposition of adsorbed chemicals is increasing with longer deployment, 80% of chemicals might be completely decomposed during the four days deployment period. Whereas, the lowest percentage 25% of chemicals might be completely decomposed into other chemicals during the 1-day deployment period. It is concluded that According to GC/MS and bioassay toxicity results, the application of SDB-RPS passive sampler disks with 1-day or shorter deployment to evaluate toxicity levels via bioassay might be considered as a substitute for active sampling via Sep-Pak® Plus PS-2 cartridges.

Key words: concentrated water sample, toxicity bioassay, Timor-Leste

# 学位論文審査の結果及び最終試験の結果報告書

## (博士後期課程博士用)

山口大学大学院理工学研究科

報告番号	理工博甲 第 740 号	氏名	Ashraf Shokry Ahmed Elsheikh
最終試験担当者		主査	関根 雅彦
		審査委員	新苗 正和
		審査委員	今井 剛
		審査委員	山本 浩一
		審査委員	鈴木 祐麻
【論文題目】			
Monitoring of Chemicals and Toxicity Discharged from Residential Areas in Developing Countries (開発途上国の居住地域から排出される化学物質および毒性のモニタリング)			
【論文審査の結果及び最終試験の結果】			
<p>先進国では一般家庭からも化学物質が排出され、生態毒性が検出されることが明らかになってきた。しかし生活様式が異なる開発途上国の住居地区からの化学物質と生態毒性の排出状況はほとんど知られていない。本研究では、近年急速に人口集中が進行している東ティモールの首都ディリを例にとり、化学物質と生態毒性の排出状況を調査して、先進国である日本のそれらとの比較を行った。また、時間変化が大きいこれらの水質項目を正しく測定するためには、連続ないし高頻度の採水が欠かせないが、電力の安定性や治安の問題から開発途上国では実現が難しい。この問題に対応できる方法として近年、固層抽出に用いる吸着材を直接水中に比較的長期間設置するパッシブサンプリングが注目されている。本研究では、化学物質と生態毒性研究へのパッシブサンプリングの適用可能性について検討した。</p> <p>本博士論文は5章で構成されており、その内容は以下の通りである。</p> <p>第1章では、本研究の背景と目的、本論文の構成について述べている。</p> <p>第2章では、化学物質と生態毒性の測定方法およびパッシブサンプリングに関する従来の研究についてまとめている。</p> <p>第3章では、流域のほとんどが山林と住居地域からなる東ティモールの首都ディリの4水路4地点および宇部市の2水路3地点における化学物質と生態毒性について、既存手法であるGrabサンプリングによる比較を行った。東ティモールの対象流域ではし尿は主に腐敗槽か落とし便所で処理され、越流水は雑排水とともに水路に排出される。日本の対象流域では合併浄化槽と汲み取り便所が主だが、単独浄化槽も残っている。分析の結果、東ティモールでは日本より農薬は少ないが炭化水素が多いこと、含酸素化合物やPPCPsはそれぞれの国の生活様式を反映して化学物質の組成が異なることが判明した。またこれらの化学物質の違いにもかかわらず両国のサンプルから水生生物相に影響を与えるレベルの生態毒性が検出され、一人当たりの生態毒性排出量は両国を通じて単一の流域面積の関数でおおむね説明できること、生態毒性の大小と検出された化学物質の間には明確な関係が見られないことを示した。</p> <p>第4章では、パッシブサンプラーとして近年使用例の増加している Chemcatcher を使用し、ディリの1水路において2~10日間、および0.5~4日間の異なるタイムスパンで短期間のパッシブサンプリング結果の合計が長期間のパッシブサンプリング結果を説明できるかを検討した。その結果、2~10日間では短期間のサンプリング結果と長期間のサンプリング結果がほとんど一致しないこと、0.5~4日間においても、サンプリング期間が長くなると化学物質の組成変化が大きくなることが明らかになった。また生態毒性はサンプリング期間が長くなるほど大きくなることから、分析対象となっていない分解生成物の毒性の影響が示</p>			

唆された。これまでの単一の化学物質に注目したパッシブサンプリング研究では1週間から1か月程度の長期のサンプリング例が多いが、多くの化学物質を一度に取り扱う生態毒性研究では、0.5~1日程度以下の短いサンプリング期間設定が必要であることが明らかになった。

第5章では、以上をまとめて結論とし、今後の展望について述べている。

公聴会には、学内外から30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日本と東ティモールの居住地域の状態の違いが化学物質や生態毒性の排出に与える影響、②市民が無秩序に投棄する固形廃棄物が化学物質の排出に寄与する可能性、③パッシブサンプラーの捕集効率や自然の有機物が化学物質の測定に与える影響、④環境中の化学物質濃度が異なる場合のサンプリング期間への影響、⑤カイコリ地域の生態毒性が特に高い理由、⑥本研究の知見から得られる東ティモール政府に対する提言、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の的確で具体的な回答がなされた。

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。

論文内容および審査会、公聴会での質疑に対する応答などから、最終試験は合格とした。

なお、主要な関連論文の発表状況は下記の通りである(関連論文:2編)。

- 1) Ashraf Elsheikh, Masahiko Sekine, Yuko Horikiri, Sergio Freitas, Ariyo Kanno, Takaya Higuchi, Tsuyoshi Imai, Koichi Yamamoto. Applicability of Passive Sampler Disks for Collection of Time-integrated River Water Samples for Toxicity Bioassay. *Journal of Water and Environment Technology*, 15(4), 129-142, August 2017.
- 2) Ashraf Elsheikh, Masahiko Sekine, Sergio Freitas, Yuko Horikiri, Ariyo Kanno, Takaya Higuchi, Tsuyoshi Imai, Koichi Yamamoto. Comparison of Surface Water Toxicity and Chemicals from Residential Areas in Timor Leste and Japan using Larval Himekaka (*Oryzias Latipes var*) Acute Toxicity Assay. *Journal of Japan Society of Civil Engineers (G)*, 73(7), III\_525-III\_533, November 2017.