

(83) 藻類付着生物膜のエストロゲン(E2)浄化能力 に関する基礎的研究

榊原 豊^{1*}・中井 壮洋¹・森本 紗代¹・Andre Rodrigues dos REIS¹

¹早稲田大学大学院創造理工学研究科 (〒169-8555 東京都新宿区大久保3-4-1)

* E-mail: sakaki@waseda.jp

異なる照度条件下で藻類付着生物膜を培養し、生物膜内の優占種および17β-エストジオール(E2)の除去能力について実験的検討を行った。その結果、生物膜内の優占種は培養条件に大きく影響され、低照度条件 (1,000 lux) では珪藻類が、高照度条件 (5000 lux) では藍藻類及び緑藻類が優占した。両生物膜共に、E2を連続的に除去可能であり、比除去速度はE2負荷速度の増加につれ増加する傾向にあった。また、比除去速度は生物膜の種類によらず概ね $1\sim 21(\mu\text{g}\cdot\text{mg-Chl.a}^{-1}\cdot\text{h}^{-1})$ であり、既往研究における硝化活性汚泥や硝化菌に対する比除去速度と比べて同程度か、あるいは大きい値であった。これらの結果より、藻類付着生物膜は易分解性有機物やアンモニアを殆ど含まない二次処理水等の高度処理に有効であると考えられた。

Key Words : estrogen, 17β-estadiol, algal biofilm, advanced water and wastewater treatment.

1. はじめに

天然女性ホルモンはヒトや家畜の尿から排出され¹⁾、下水処理場等を経由して河川等の公共用水域に流出している²⁾。これらの物質は従来の発生源対策が難しく、また、ng/l レベルの濃度で魚類の血中ビテロジェニン濃度を上昇させることが報告されている³⁾。

下水あるいは下水処理水中に存在する天然女性ホルモンの処理技術として、活性炭吸着や膜分離といった物理化学的処理法、オゾンや過酸化水素にUV照射を組合わせた促進酸化処理法、フェントン法等の酸化処理法が提案されている⁴⁾。しかしながら、これらの多くは大量のエネルギーを必要とする⁵⁾。一方、活性汚泥^{6,7)}、硝化菌⁸⁾、白色腐朽菌⁹⁾、藻類¹⁰⁾等を用いた生物学処理法に関する研究が行われている。これらの処理法は物理化学的処理法に比べて消費エネルギーや処理コストが低く、その処理能力が注目されている。

筆者らは先に藻類付着生物膜は女性ホルモンを含めた環境ホルモンの浄化能力を有していることを報告した¹¹⁾。また、任ら¹²⁾は水路内の糸状藻類がエストロゲン低減化作用を有していることを報告している。本研究は異なる照度条件下で培養した2種類の藻類付着生物膜を用い、女性ホルモンの中で最も攪乱活性が高いと考えられる¹³⁾ 17β-エストラジオール(E2)の連続処理実験を異なる負荷

条件下で行い、浄化速度に及ぼす諸因子の影響について検討した。また、既往研究の生物処理速度と比較して、本生物膜の有効性について検討した。

2. 実験装置および方法

(1) 実験装置

図-1 に実験装置の概略を示す。装置本体は塩化ビニール製の水路 (幅 5cm、長さ約 1m) であり、水路内面にはテフロンテープ (サンブラテック製) を、また底面にはテフロン網 (穴径 1.5mm) (アズワン㈱) を設置して E2 の装置内吸着を抑えた。また、水路内の流速を所定の値に維持させるために、水路出口の処理水は循環ポンプにより水路入口に循環させた。ここで、水路底面に形成される藻類付着生物膜の観察及びバイオマス等の測定用にテフロン網の一部を脱着できるようにした。送液用のチューブは全て PTFE チューブあるいはバイトン管を使用し、循環ポンプやコネクター等はテフロン製のものを用いた。水路入口にはガラスビーズを詰め、流れが均一になるようにした。

光照射は水路の真上から蛍光灯を使って行い、16h 明、8h 暗の明暗サイクルを維持した。水路水面の照度は蛍光灯/水路間の距離により調整し、実際の照度は照度計 (アズワン㈱LM-332) により測定した。実験装置は4系

列(水路 A~D)作製し、照度は 1000, 5000 lux の 2 条件に設定した。実験は室温 (22~32℃) で行った。

供試水の組成は Antonella ら¹⁴⁾を参考にして、レッドフィールド比を C:N:P:Si=106:16:1:15 となるよう調整した。ここで、硝化菌の増殖を抑制するために、窒素源は硝酸態窒素とした。E2 (WAKO) はアセトンに一旦溶解させた後、イオン交換水により希釈してステンレスタンク内で所定濃度になるように調整した。

(2) 実験方法および実験条件

(a) ブランク実験

E2 の装置内への吸着および光照射による分解反応¹⁸⁾の程度を把握するために、生物膜形成前の水路に E2 溶液を連続的に供給して水路流入水と流出水の E2 濃度を測定した。ここで、照度=1,000, 5,000 lux、流入 E2 濃度=0.1, 1.0 mg/l、水路内流速=20 cm/s、HRT=6h とした。

(b) 生物膜の培養

都内の A 公園内にある池水を採取して、水路内に接種した。同時に、表-1 の供試水を連続供給した。ここで、4 水路の内、水路 A, B は 1000lux、水路 C, D は 5,000lux に設定した。また、早期に生物膜形成を図るために表-1 の 10 倍濃度の供試水を最初の 8 日間供給した。しかしながら顕著な生物膜の形成が確認されなかったため、表-1 の 40 倍濃度の供試水を水路 A, B に 10 日間、水路 C, D に 5 日間供給した。水路 C, D はこの 5 日間の供給により緑色の生物膜が水路内にほぼ均一に形成されたため表-1 の濃度に戻した。一方、水路 A, B はこの時点 (実験開始後 12 日経過後) でも均一な生物膜が形成されなかったため、照度を 5,000lux に増加させた。その結果、水路 A, B もほぼ均一な生物膜が形成されたため、18 日目に照度を 5,000lux から 1,000lux に戻した。以上の生物膜形成過程の概略を図-2 に示した。

(c) 連続実験

生物膜が水路底面の全体に形成された時点で、無機塩組成を表-1 の条件に戻し、E2 の連続浄化実験を開始した。実験条件を (b) 生物膜形成過程と合わせて図-2 に示した。ここで、水路 A~D の流速は 20cm/s、水深は約 1cm、HRT=6h、照度は水路 A, B が 1,000lux、水路 C, D が 5,000lux である。pH は生物膜形成初期に 9 前後であったが、それ以降は HCl 溶液を用いて 6.5~8.5 の範囲に調整した。連続実験①、②の終了後 (実験開始 38 日目以降)、水路 A, C では流入 E2 濃度をほぼ 2 倍にして遮光条件下の処理性能について検討した。一方、水路 B, D では E2 流入濃度をゼロにして吸着量の有無について検討した。

実験は連続実験①と②よりなり、実験①の E2 流入濃度を 0.1 あるいは 0.5mg/l、実験②の E2 流入濃度を 1, あるいは 2mg/l とした。各実験において、E2 の流出濃度がほぼ定常状態に達した後、生物膜のクロロフィル a (Chl. a) 量、乾燥重量 (TS)、ペロオキシダーゼ (PO) 活性を測定した。

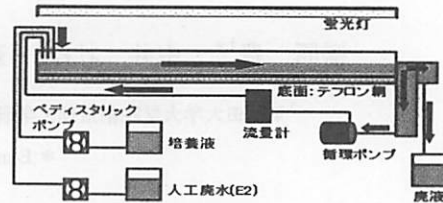


図-1 実験装置図

表-1 供試水の組成

成分組成	水路への流入濃度 (mg/l) (連続実験時)	成分組成	水路への流入濃度 (mg/l) (連続実験時)
NaHCO ₃	52	ZnCl ₂	0.0022
NaNO ₃	7	CuSO ₄ · 5H ₂ O	0.0008
K ₂ HPO ₄	0.4	CoCl ₂ · 6H ₂ O	0.0005
Na ₂ SiO ₃ · 9H ₂ O	11	Na ₂ MoO ₄ · 2H ₂ O	0.0039
MgSO ₄ · 7H ₂ O	0.75	H ₃ BO ₃	0.0286
CaCl ₂ · 2H ₂ O	0.36	Cyanocobalamin	0.0004
Fe-EDTA	0.113	Biotin	0.0004
MnCl ₂ · 4H ₂ O	0.0181	Thiamin HCl	0.0004

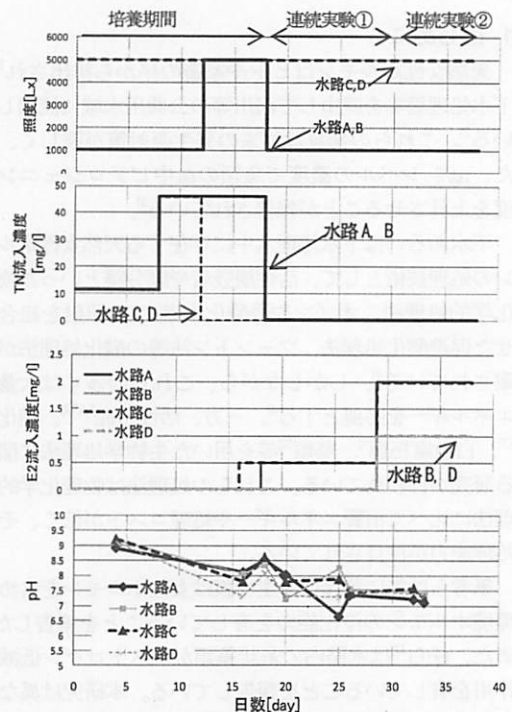


図-2 生物膜の培養及び連続実験条件

(d) 分析方法

E2の分析は既往文献¹⁵⁾を参照し、サンプルはSep-Pak Plus C18 カートリッジ(Waters)を用いて固相抽出、窒素乾固、酢酸エチルで抽出後、GC/MS (島津, GC/MS7000で分析した。固相抽出時における通水速度は約10ml/min、溶出速度は約3ml/minとした。

生物膜のペルオキシダーゼ(PO)活性はPandolfineら¹⁶⁾の方法に準じて、可溶性成分、イオン結合性細胞壁成分、及び共有結合性細胞壁成分を分析した。ここで、粗酵素溶液のタンパク質含有量は牛血清アルブミン(BSA)を用いてBradford法により分析した。

生物膜の観察はデジタルマイクロスコープ(キーエンス(株)VHシリーズ)を用いて行った。また、生物膜のChl.a量は生物膜を剥離後、ろ過(ガラス繊維ろ紙)、アセトン抽出後、次式より求めた¹⁷⁾。

$$\text{Chl.a}(\text{mg/l}) = 11.64e_{663} - 2.16e_{645} + 0.10e_{630}$$

(1)

ここで、 e_{λ} は各波長の吸光度である。

3. 実験結果および考察

(1) ブランク実験

生物膜形成の前にE2溶液を供給したブランク実験の結果を図-3に示す。Leechら¹⁸⁾は夏の太陽光によって水溶液中のE2濃度が減少することを報告しているが、水路B(照度1,000lux)及び水路D(照度5,000lux)共に、E2の流入濃度と流出濃度はほぼ等しかった。すなわち、本研究で用いた装置内の吸着および1,000~5,000lux程度の照度によるE2の除去はほとんど無視できる。なお、流出濃度が流入濃度に比べて若干高くなっているが、水の蒸発量を考慮すると流入濃度と流出濃度はより良く一致した。

(2) 生物膜の観察結果

連続実験に用いた水路A, Bおよび水路C, Dの生物膜の状態は大きく異なった。1,000 luxの条件(水路A, B)では全体的に褐色の生物膜が、5,000 lux(水路C, D)では緑色の生物膜が形成された。なお、水路A, Bは図-2に示したように生物膜形成過程で照度を1,000から一旦5,000 luxに増加させて生物膜を形成させたが、一部緑色部分が観察されたものの全体的には褐色の生物膜であった。

写真-1は連続処理期間中における水路Aおよび水路Cの生物膜内の微生物観察結果の一例である。水路A, Bでは*Navicula* spp.や*Nitzschia* spp.等の珪藻類が優占しているのに対して、水路C, Dでは*Merismopedia* spp.等の藍藻類あるいは*Gloeocystis gigas* spp., *Chlorella* spp.等の緑藻類が優占していた。生物膜内にはこれらの藻類の他に微生物や原生動物も一部観察された。

図-4は連続処理期間中の生物膜のChl.a, TS及びChl.a/TSを示したものである。Chl.aの付着量は水路Aで一部大きく変動したが、実験期間では5~60 $\mu\text{g-Chl.a}/\text{cm}^2$ の範囲にあった。これらの付着量は、汚濁河川の生物膜に

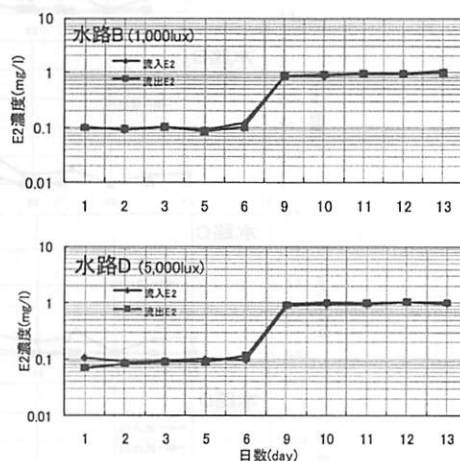


図-3 ブランク実験の結果

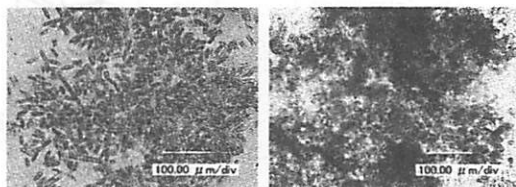


写真-1 生物膜の観察例(左:水路A(1,000lux), 右:水路C(5,000lux))

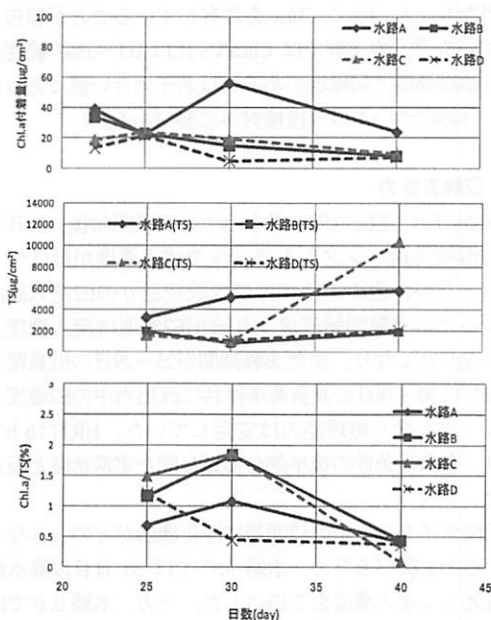


図-4 実験期間中のChl.a, TSおよびChl.a/TSの時間変化

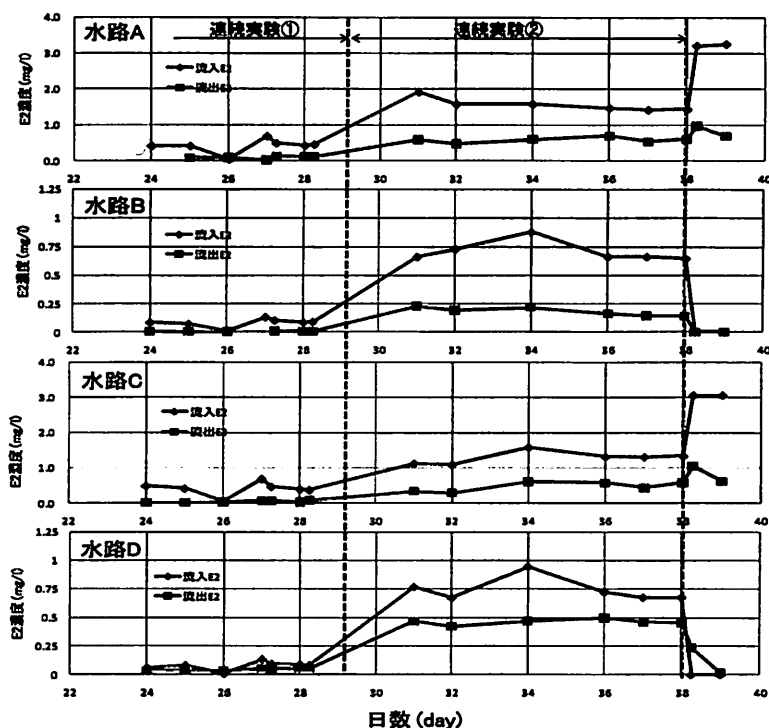


図-5 E2の連続処理結果

対して報告されている $100 \mu\text{g-Chla}/\text{cm}^2$ ¹⁹⁾より小さく、一方、澄澄な河川の $10\mu\text{g-Chla}/\text{cm}^2$ あるいはそれ以下の付着量²⁰⁾に相当している。また、通常の微細藻類は乾燥重量当たり 0.5~1%の Chla を含有していることが報告されている²⁰⁾。本実験では Chla/TS 比は 0.1~2%の範囲にあり微細藻類と同程度かあるいは若干大きい値であったが、詳細については今後検討が必要である。

(3) E2除去能力

図-5にE2の連続処理結果を示す。実験開始後、26日目にE2溶液供給ポンプのトラブルで流入濃度がほぼゼロになったが、他の条件ではほぼ設定通りのE2流入濃度になった。実験開始直後より流出E2濃度は流入濃度よりかなり低くなり、また実験期間が23~29日の低負荷条件並びに30~38日の高負荷条件共に流出水中のE2濃度はほぼ一定となり処理能力は安定していた。HRTは6 hであり、各負荷条件の後半部分の数日間を定常状態と仮定した。

明暗サイクルの暗の時間帯に浄化機能がどのようになっているかを調べるため、水路A, Cでは38日目以降水路を遮光して流入濃度を2倍にした。一方、水路B, Dでは生物膜内へのE2吸着量の有無を確認するために38日目以降E2の流入濃度を0mg/lにした。図より、水路A, C

の流出濃度は大きく変化することがなかったことから、光合成反応が進行している明条件でも、進行していない暗条件でもE2浄化能力を有していると考えられる。一方、水路B, Dでは生物膜内に吸着されたE2の脱着による、流出E2濃度の顕著なテーリング現象は見られなかった。実験終了後(38日目のE2濃度測定直後)に生物膜を一部剥離させてE2蓄積濃度を測定した。その結果、生物膜内に蓄積するE2濃度は殆どなく、吸着によるE2除去はあまり重要でないと考えられた。

図-6に定常状態における比(E2)除去速度 ν とE2負荷速度との関係を示した。

$$\nu = (C_{in} - C_{out}) \times \frac{Q}{AX} \quad (2)$$

ここで、 ν : ($\mu\text{g}/\text{mg-Xh}$)、 C_{in} :E2の平均流入濃度、 C_{out} :E2平均流出濃度、 Q :流入流量(ℓ/h)、 X :生物量(Chla or TS)(mg/cm^2)である。

図より、Chla当りのE2比除去速度は負荷速度の増加につれ増加した。また、比除去速度は水路によらずほぼ図中の一点鎖線上にあり、本実験条件下では1~21($\mu\text{g} \cdot \text{mg-Chla} \cdot \text{a}^{-1} \cdot \text{h}^{-1}$)の範囲にあった。図中の点線は負荷速度と除去速度とが等しい場合であり、流入するE2の除去率が100%の状態である。本研究の測定値の大半はこの値に比べて70~90%程度の値であった。即ち、本研究の

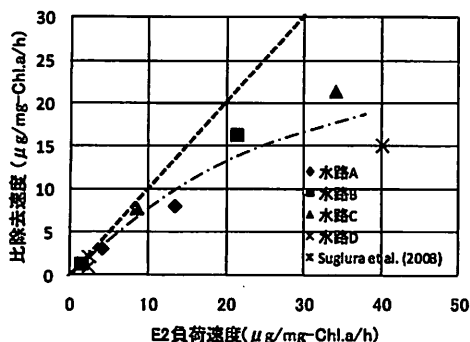


図-6 負荷速度と比負荷速度との関係

実験条件下（図-2）では生物膜の有する浄化能力と流入負荷がほぼ等しいため流入E2の大半が除去され、その結果、E2負荷とほぼ同程度の除去速度になったと考えられる。したがって、本実験条件に比べてより大きな負荷条件を設定すれば生物膜の除去能力あるいは優占種等により異なった除去性能になると思われる。

図-7は比除去速度と流出E2濃度との関係を示したものである。水路内は高速度(20cm/s)で循環しているため、完全混合状態とみなせる。図より、一部のデータにばらつきがあるが、生物膜の比除去速度は流出水あるいは水路内のE2濃度の上昇により増加する傾向にあった。本研究で得られたE2除去速度を既往研究結果と比較すると表-2のようである。これまで白色腐朽菌⁹⁾、活性汚泥^{5,6,7,8)}、硝化菌^{5,7)}に対してE2除去速度が報告されている。既往研究の多くが回分実験によりE2濃度に対する一次速度係数 k を求めているが、本研究では次式に従って比除去速度 v に換算して比較した。なお、本研究の比速度は表-2では単位TS量当りに換算して示した。

$$v = k \times C_{i=0} / \text{MLSS} \quad (3)$$

ここで、 $C_{i=0}$ は回分実験の初期E2濃度、MLSSは混合液浮遊物濃度である。

本研究の藻類付着生物膜のE2除去速度は白色腐朽菌や活性汚泥に比べて大きく、硝化菌や硝化が進行している活性汚泥の速度とほぼ同程度か、あるいは大きな値である。したがって、本研究の藻類付着生物膜は易分解性有機物やアンモニア成分を殆ど含まない二次処理水等の高度処理に有効であると考えられる。ここで、藻類付着生物膜が高いE2除去活性を有することは、筆者らの知る限りでは他に見受けられず、今後はより低濃度域の除去速度も含めて詳細な検討が必要である。

なお、Hashimo and Murakami⁸⁾は活性汚泥を用いたエストロゲンの回分実験に関して、E2等は実験初期に急激に減少することを報告している。したがって、回分実験

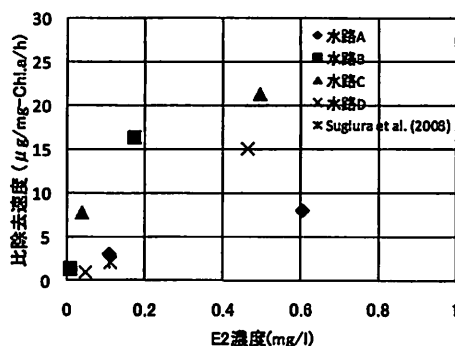


図-7 比除去速度と水路内E2濃度との関係

による速度論的解析の際にはこのような現象を十分に考慮するか、あるいは本研究のように連続条件下における検討が必要であると考えられる。

(4) 生物膜の酵素活性

ノニルフェノール(NP)、ビスフェノールA(BPA)、オクチルフェノール(OP)等は魚類等への内分泌攪乱性が確認されている。E2も含めてこれらフェノール基を有する内分泌攪乱物質は、ペロオキシダーゼ(PO)の作用により、過酸化水素(H_2O_2)との酸化還元反応の進行によって除去されると考えられる^{21, 22)}。ここで、 H_2O_2 は光合成反応と呼吸反応により生成されることが知られている。したがって、図-5の暗条件下でE2が除去されたのは、呼吸反応により生成された H_2O_2 がE2酸化反応に関与していることによると思われる。なお、内分泌攪乱物質が遮光条件下で植物によって除去されることはTabei and Sakakibara²³⁾、Imaiら²⁴⁾も報告している。

図-8に供試生物膜のPO活性を示した。連続実験を開始する直前（図-8の枠内のグラフ）では水路A,Bのように

表-2 E2に対する比除去速度の比較

微生物 (回分/連続実験)	一次速度係数 (h ⁻¹)	比除去速度 (μg/mg-SS/h)	E2濃度 (μg/l)	MLSS濃度 (mg/l)	文献
Activated sludge/ <i>Nitrosomonas europaea</i> (回分)	0.056	0.021*	1,000	2,700	5)
Activated sludge (回分)	0.23~4.79	0.015~0.10*	10~50	435~1750	6)
Nitrifying activated sludge (回分)	0.005~0.04	0.002~0.018*	100~300	220~1420	7)
<i>Trametes versicolor</i> (回分)	—	0.04	10,000	11,000	9)
<i>Trametes versicolor</i> (連続)	—	0.05	3,000~18,800	3,200	9)
Algal biofilm (連続)	—	0.05~0.14	100~2,000		本研究

*:式(3)による推算値

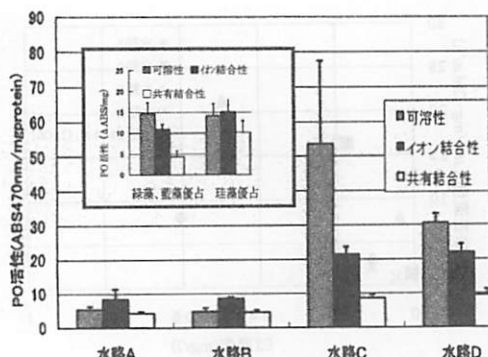


図-8 生物膜PO活性 (枠内の数値は連続実験前の値)

珪藻が優占する生物膜と水路C,Dの藍藻および緑藻が優占する生物膜のPO活性はほぼ同様で、可溶性PO、イオン結合性POおよび共有結合性POはほぼ5~20 (Δ ABS/mg-protein/min)前後であった。

一方、連続実験終了時(図中の水路A,B,C,D)では、水路A,Bの可溶性POが相対的に減少し、逆に水路C,Dの可溶性PO成分及びイオン結合性PO成分が増加した。これらの活性変化については生物膜の培養条件や生物膜の受けたストレス等に依存していると考えられるが、測定された活性の範囲は多くの水生植物の酵素活性と概ね同程度である²⁾。E2除去速度は生物膜内のPO活性、 H_2O_2 濃度、E2濃度等に影響されると考えられ、今後はこれらとの関係も含めた速度論的解析が必要であると考えられる。

4. まとめ

藻類付着生物膜のエストロゲン(E2)浄化能力について実験的検討を行った。その結果、以下の知見が得られた。

- 1) 生物膜内の優占種は培養条件に大きく影響され、低照度条件(1,000 lux前後)では珪藻類が、高照度条件(5000 lux前後)では藍藻類及び緑藻類が優占した。
- 2) 藻類付着生物膜はE2を連続的に除去することが可能であり、比除去速度は負荷速度の増加につれて増加する傾向にあった。本実験条件下の比除去速度は、生物膜の種類によらず $1 \sim 21 (\mu g \cdot mg\text{-}Chl.\ a^{-1} \cdot h^{-1})$ あるいは $0.05 \sim 0.14 (\mu g \cdot mg\text{-}SS^{-1} \cdot h^{-1})$ の範囲にあった。
- 3) 本研究のE2除去速度は活性汚泥あるいは硝化菌に対して報告されている速度と概ね等しいか、あるいは大きい値であった。したがって、有機物やアンモニア成分を殆ど含まない二次処理水等の高度処理に有効であると考えられた。

謝辞：本研究の一部は、JST/JICA 地球規模課題対応国

際科学技術協力事業「熱帯地域に適した水再利用技術の研究開発」の補助を受けて実施した。

参考文献

- 1) Ying G. G., Kookana R. S., Ru Y. J.: Occurrence and fate of hormone steroids in the environment. *Environment international* **28**, 545-551, 2002.
- 2) 国土交通省河川局：平成16年度全国一級河川における微量化学物質に関する実態調査の結果について(ダイオキシン類、内分泌攪乱物質)，2004.
- 3) Purdon C.E., Hardiman P.A., Bye V.J., Eno N.C., Tyler C.R. and Sumpter J.P. (1994) Estrogenic effect of effluent from sewage treatment works. *Chemical Ecology*, **8**, 275, 1994.
- 4) 榊原 豊ら：環境ホルモンの無害化と暴露量削減に関する研究開発、平成 15・16 年度国土交通省建設技術研究開発制度 研究成果報告書，2005.
- 5) Shi J., Fujisawa S., Nakai S., and Hosomi M.: Biodegradation of natural and synthetic estrogens by nitrifying activated sludge and ammonia-oxidizing bacterium *Nitrosomonas europaea*, *Water Research*, **28**, 2323-2330, 2004.
- 6) Li F., Yuasa A., Obara A., Mathews A. P.: Aerobic batch degradation of 17 β -estradiol (E2) by activated sludge: Effects of spiking E2 concentrations, MLVSS and temperature, *Water Research* **39**, 2065-2075, 2005.
- 7) Ren Y. X., Nakano K., Momura M., Chiba N., and Nishimura O.: Effects of bacterial activity on estrogen removal in nitrifying activated sludge, *Water Research* **41**, 3089-3096, 2007.
- 8) Hashimoto T. and Murakami T.: Removal and degradation characteristics of natural and synthetic estrogens by activated sludge in batch experiments, *Water Research* **43**, 573-582, 2009.
- 9) Blaquez P. and Guieysse B.: Continuous biodegradation of 17 β -estradiol and 17 α -ethynylestradiol by *Trametes versicolor*, *Journal of Hazardous Materials* **150**, 459-462, 2008.
- 10) Lai K. M., Scrimshaw M. D., and Lester N. J.: Biotransformation and Bioconcentration of Steroid Estrogens by *Chlorella Vulgaris*, *Applied and Environmental Microbiology* **68**, 859-864, 2002.
- 11) Sugiyama H., Kishida N., and Sakakibara Y.: Removal of Trace Environmental Contaminants by Algal Biofilms, IWA Biofilm Technologies Conference, ABSTRACT HANDBOOK, 129-130, 2008.
- 12) 任 勇翔、中野和典、大堀雅人、千葉信男、野村宗弘、西村 修：養豚場排水処理施設におけるエストロゲンの季節変動と低減化処理の実態、水環境学会誌、**31**(3)、155-161, 2008.
- 13) Racz L.A. and Goel R. K.: Fate and removal of estrogens in municipal wastewater, *Journal of Environmental Monitoring*, **12**, 58-70, 2010.
- 14) Antonella G., Andreas B., Marco D. and Patrizia A.: Cultured phototrophic biofilms for phosphorus removal in wastewater treatment,

Water Research 42, 4357-4367, 2008.

- 15) 環境庁：外因性内分泌攪乱化学物質調査暫定マニュアル (水質、底質、水生生物), 1998.
- 16) Pandolfini T., Gabbriellini R., and Comparini C.: Nickel toxicity and peroxidase activity in seedlings of *Triticum aestivum* L. *Plant Cell Environ.*, 15, 719-725, 1992.
- 17) 西澤一俊、千原光雄：藻類研究法、共立出版、392-399, 1979.
- 18) Leech D. M., Snyder M. T., Wetzel B. G.: Natural organic matter and sunlight accelerate the degradation of 17 β -estradiol in water, *Science of the Total Environment* 407, 2087-2092, 2009.
- 19) 野崎健太郎、内田朝子：河川における糸状緑藻の大発生、矢作川研究 No.4, 159-168, 2000.
- 20) 都留信也、須藤隆一、中山大樹：微生物とその応用 6 環境と微生物(1979, 231、共立出版, 1979.
- 21) Caza, N., Bewtra, J. K., Biswas, N., and Taylor, K. E.: Removal of Phenolic Compounds from Synthetic Wastewater Using Soybean Peroxidase, *Water Research* 33(13), 3012-3018, 1999.
- 22) Reis A. R.D., Maruyama N. and Sakakibara Y.: Effectiveness of aquatic plants in batch and continuous treatments of trace endocrine disrupting chemicals, 3rd IWA-ASPIRE Conference, Taipei, 2009.
- 23) Tabei, K. and Sakakibara Y.: Removal of Endocrine Disrupting Chemicals by Phytoremediation, Paper M-17, Proceedings of the Fifth International Conference on Remediation of Chlorinated and Recalcitrant Compounds, Monterey, CA; Battelle Press, 2006.
- 24) Imai, S., Shiraishi, A., Gamo, K., Watanabe, I., Okuhata, H., Miyasaka, H., Ikeda, K., Bamba, T., and Hirata, K. : Removal of phenolic endocrine disruptors by *Portulaca oleracea*, *J. Biosci. Bioeng.*, 103(5), 420-426, 2007.

(2010. 5. 21受付)

Removal Performance of An Estrogen (E2) by Algal Biofilms

Yutaka SAKAKIBARA¹, Takehiro NAKAI¹, Sayo MORIMOTO¹ and Andre Rodrigues dos REIS¹

¹Dept. of Civil and Environmental Engineering, Waseda University

Cultivations of algal biofilms were conducted under two different illumination conditions (1,000 and 5,000 lux), and observation of biofilms and measurements of 17 β -estradiol (E2) removal rates were made under different E2 loading conditions. Predominant species in biofilms were diatoms species and cyanobacteria and chlorophyta species at 1,000 and 5,000 lux illuminations, respectively. Continuous and stable E2 removals were achieved by the biofilms. Specific E2 removal rates tended to increase with an increment of E2 loading rates, and were in the range of 1 to 21 ($\mu\text{g-E2} \cdot \text{mg-Chl.a}^{-1} \cdot \text{h}^{-1}$) under experimental conditions in this study, regardless of differences in the predominant species. Furthermore, it was considered that the algal biofilms possess relatively larger removal rates corresponding to those of nitrifying activated sludge or nitrifying bacteria reported in former studies. From these results, we thought that algal biofilms would be effective for the treatment of E2 in secondary effluents containing limited amounts of NH_4^+ and biodegradable organic matters.