

活性汚泥を用いた回分式実験による人用抗生物質の除去機構の解明

京都大学大学院工学研究科 学生会員 ○小林義和

正会員 田中宏明

東和科学(株)

八十島誠

(独) 土木研究所

小森行也

正会員 鈴木 稔

1. はじめに

近年、水環境における Pharmaceuticals and Personal Care Products (PPCPs) への関心が高まっている。PPCPs とは、医薬品や化粧品など我々が日常使用している物質のことであり、水環境中へコンスタントに排出されるという特徴を持った最近注目されている微量汚染物質である。医薬品の中でも抗生物質は人の感染症治療だけでなく、動物の感染症の予防・治療、家畜の成長促進、農薬等にも用いられ年間数千トンが使用されている。特に病院や家庭で使用された人用抗生物質はその多くが下水処理場を経由して排出されるため、生物処理への影響や処理過程での耐性細菌の発現、河川や湖沼・海域等の放流先での生態系への影響が懸念される。しかしながら、下水処理場での人用抗生物質の動態や除去機構はほとんど明らかになっていないのが現状である。そこで本研究では推定体外排出量¹⁾の多い人用抗生物質であるレボフロキサシン (LVFX: 14-16 t/y)、クラリスロマイシン (CAM: 5.4-11 t/y) および CAM と同じマクロライド系に属するアジスロマイシン (AZM: 0.3-0.9 t/y) を対象に、曝気槽を模した実験装置を用いて回分式実験を行い、活性汚泥による水相からの除去機構を検討した。

2. 方法

1) 実験方法

実験装置を図1に示した。下水処理場から採取した活性汚泥混合液をグルコースとペプトンを主成分とした合成下水とともに 500mL のコニカルビーカーに入れ、図1のようにセットした。そこに対象物質を添加しその直後と 1、3、6、12、24 時間後に水相中の対象 PPCP 濃度、DOC 濃度、pH、温度、DO、ORP を測定した。エアレーションは 0.8~1.0 L/min で行い、循環水は 22±2℃に保った。実験中の活性汚泥混合液は pH: 6.8~7.7、水温: 20.1~23.2℃、DO: 5.7~8.6 mg/L、ORP: 227~238 mV、MLSS: 2461~2498 mg/L であった。

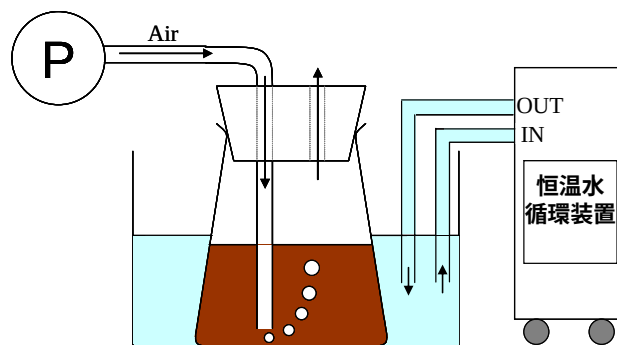


図1. 実験装置

2) 分析方法

実験装置から採取した試料約 10 ml を粒子保持能 1μm のガラス繊維ろ紙でろ過した後、ろ液 1 mL を約 1 g/L の EDTA を溶解した純水と混合し、コンデিশニング済の Oasis HLB カートリッジに 10ml/min で通水し、脱水後メタノール 6 ml で溶出した。溶出液を窒素気流で濃縮乾固し、アセトニトリル: 0.5%ギ酸水=7:3 の溶液 1 ml に転溶し、これを測定試料とした。測定は、LC/MS/MS を用いて行った。LC には HP1100 (Agilent) を、MS/MS には API4000 (Applied Biosystems) を使用した。

キーワード：PPCPs、抗生物質、下水処理、活性汚泥、除去機構

連絡先：京都大学大学院工学研究科附属流域圏総合環境質研究センター

〒520-0811 滋賀県大津市由美浜 1-2 TEL077-527-6329 FAX: 077-524-9869

3. 結果および考察

添加濃度約 100 $\mu\text{g/L}$ のときの DOC の濃度と水相中の対象 PPCP 濃度の時間変化をそれぞれ図 2 と図 3 に示した。図 1 より DOC 濃度は時間毎に指数関数的に減少しており、活性汚泥による有機物の分解は良好に行われていた。図 2 より LVFX、CAM、AZM は添加 1 時間後までに初期濃度に対する割合としてそれぞれ 6%、31%、13% まで減少し、24 時間後には 4%、21%、15% となった。特に添加から 1 時間後までは、水相では著しい PPCP 濃度の減少が認められた。このことから主に活性汚泥への吸着による PPCP の水相からの除去が示唆された。LVFX、CAM、AZM の LogKow はそれぞれ、

-0.257、3.16、4.02 である。 Kow は LVFX の方が CAM と AZM よりも小さいにもかかわらず、CAM、AZM と同様に活性汚泥との混合直後に減少した。CAM と AZM は疎水性が比較的高いことから収着によって活性汚泥に吸着され、LVFX はカルボキシル基を持つため他の 2 物質とは異なる機構により吸着したのではないかと考えられる。添加 1 時間後から 24 時間後までの PPCP 濃度は多少の増減はあるが、顕著な変化は認められなかった。しかしながら、この間にも DOC 濃度は指数関数的に減少している。以上のことからこれらの

の PPCP は生物分解性が低いことが示唆される。活性汚泥処理による除去機構の解明には活性汚泥中の PPCP 濃度を測定する必要があるため、今後汚泥からの PPCP 抽出方法を検討し、水相と固相を含めた PPCP 濃度を検討する予定である。

以上の結果から溶解性の LVFX、CAM、AZM は活性汚泥への吸着による水相からの除去が主な除去機構であることが示唆された。これらの物質の除去機構について筆者らは実際の下水処理場において処理過程での動態を現地調査しており、この結果からは現段階で 3 物質ともに、曝気槽内での顕著な減少は認められず、むしろ最初沈殿池内や曝気槽の流入直後、さらに最終沈殿池内で徐々に減少していく現象が観察された²⁾。この結果と今回の実験結果を踏まえると下水処理において LVFX、CAM、AZM は生物処理によってあまり除去されず、むしろ最初沈殿池や曝気槽、最初沈殿池などで主に粒子や活性汚泥への吸着によって除去されることが示唆された。

4. まとめ

LVFX、CAM、AZM を対象に活性汚泥を用いた回分式実験を行った結果、3 物質ともに添加から 1 時間後までに著しい濃度の減少が確認されたが、その後は大きな減少は認められなかった。このことから水相中の LVFX、CAM、AZM は、活性汚泥への吸着により主に水中から除去されることが示唆された。

参考文献

- 1) 八十島誠, 山下尚之, 中田典秀, 小森行也, 鈴木穰, 田中宏明: 下水処理水中に含まれるレボフロキサシン, クラリスロマイシンの分析と藻類生長への影響, 水環境学会誌, Vol.27, No.11, pp.707-714, 2004
- 2) 小林義和, 田中宏明, 八十島誠, 小森行也, 鈴木穰: 下水処理場における人用抗生物質の動態, 第 42 回下水道研究発表会講演集 (現在投稿中)

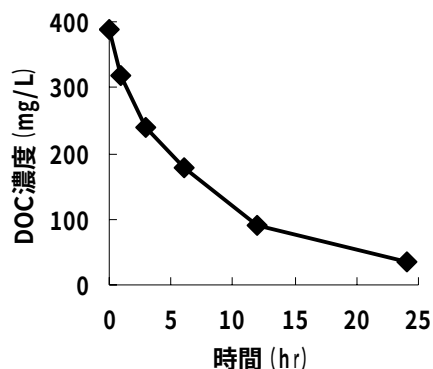


図2. DOC 濃度の時間変化

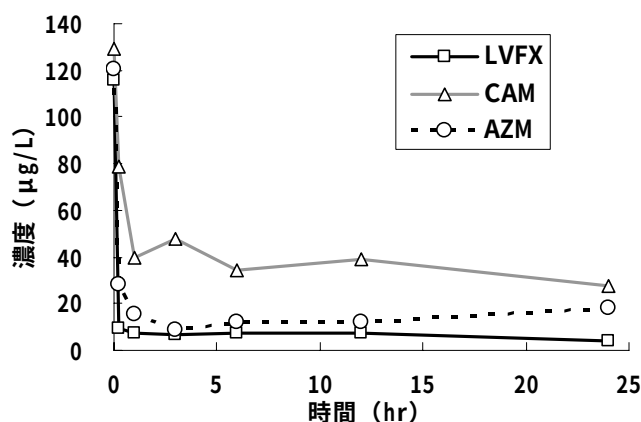


図3. PPCP 濃度の時間変化