

粉末活性炭添加膜分離活性汚泥法による医薬品カルバマゼピンの処理

東京工業大学 学生会員 金巻賢二郎

東京工業大学 正会員 浦瀬太郎

東京工業大学 非会員 Oh Hee-kyon

1. はじめに

人や家畜に使われている抗生物質、ホルモン剤、鎮痛剤、精神安定剤、がん患者に投与される化学物質などの医薬品が表層水や地下水、そして水道水で検出されている。人が服用した医薬品はほとんど下水処理場あるいは浄化槽を経由して環境中に排出される。既存の研究では下水処理で十分に除去することができていない Carbamazepine を対象物質とし、実験室内で膜分離活性汚泥の運転を行い、さらに粉末活性炭効果について実験を行った結果を発表する。

2. 実験概要・分析方法

実験に用いた活性汚泥は都市下水の処理場および廃棄物処理場の浸出水処理施設から譲り受けたものである。活性汚泥と水道水を 10L の反応タンク（図 1）に入れ、流入水量は水理滞留時間を 24 時間となるようにコントロールした。流入水としてグルコース・ペプトンを主成分とした人工下水を TOC が 100mg/L 程度になるように調製し、さらに、Carbamazepine (CBZ) を 100 μ g/L、Bisphenol A (BPA) を 500 μ g/L の濃度で加えた。反応タンクには中空糸精密ろ過膜を設置し、流出ポンプで透過水を引き抜いた。

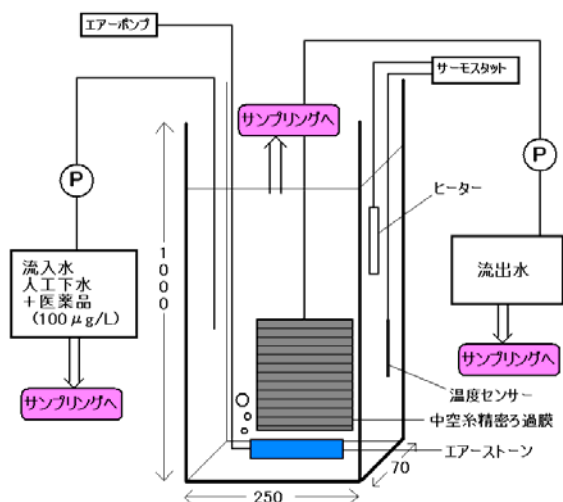


図1 活性汚泥リアクター概要図

膜は三菱レーヨン社製、材質ポリエチレン（孔径 0.4 μ m）の中空糸精密ろ過膜（UMF0234L1）で、リアクター内はサーモスタットとヒーターで水温を 20℃ に保った。また、粉末活性炭をある時点で投入し、活性炭の有無による CBZ と BPA の除去率への影響を調査した。分析対象は流入水と流出水、またリアクター槽内の水相と汚泥相に含まれる医薬品をそれぞれ固相抽出し HP/LC によって測定した。装置の運転状況を表 1 に示す。

表1 リアクター内汚泥種類および活性炭濃度

期間	日付	汚泥起源	MLSS(g/L)
A 期	1-37	下水処理汚泥	4.5~7.0
B 期	38-79	下水処理汚泥	3.0~6.0(うち 1g/L は活性炭)
C 期	80-93	浸出水処理汚泥	7.0~13
D 期	94-123	浸出水処理汚泥	6.0~7.0(うち 0.05g/L は活性炭)

また粉末活性炭に対する CBZ, BPA の吸着量を求めるバッチ実験を行った。粉末活性炭は関東化学株式会社製（粒子径 20 μ m）を使用した。水道水 10 を三角フラスコに入れ、活性炭濃度がそれぞれ 0, 0.001, 0.005, 0.01, 0.05, 0.1, 1.0 g/L となるように調製した。また、三角フラスコ内に図 2 で示すようにエアレーションを行うことにより攪拌した。はじめに連続実験と同様の濃度の医薬品（CBZ : 100 μ g/L、BPA : 500 μ g/L）を溶かした水道水入れ、2 時間後の活性炭混合液をサンプリングし、水相濃度を測定した。

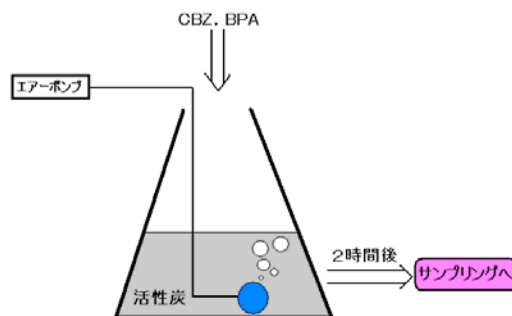


図2 バッチ試験概要図

キーワード カルバマゼピン 膜分離 活性汚泥法 粉末活性炭 下水処理

連絡先 東京工業大学土木工学科 〒152-8552 東京都目黒区大岡山 2-12-1

3. 実験結果および考察

3.1 連続処理実験

A, B 期における CBZ の流入出濃度を図 3 に示す。A 期においては 10 日目以降流出濃度はほぼ流入濃度と同じで、初期吸着が若干見られたものの活性汚泥による分解はほとんどなかった。

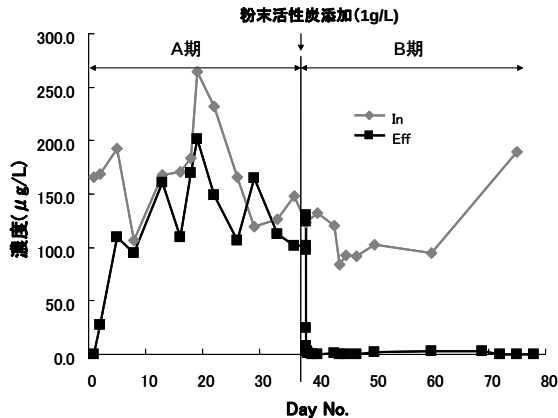


図 3 A, B 期 CBZ 流入および流出濃度

38 日目に 1 g/L で粉末活性炭添加した後 10 時間以降では、CBZ の流出濃度は 0~3.3 $\mu\text{g/L}$ の範囲となった。よって CBZ の粉末活性炭に対する吸着は十分行われており、1g/L の粉末活性炭を一度添加すれば、40 日間以上にわたって継続的な吸着が可能であることがわかった。

C, D 期の流入、流出濃度を図 4 に示す。浸出水処理汚泥では CBZ は実験開始後 2 日目までは流出水から検出されず、その後 100 $\mu\text{g/L}$ 付近で安定した。このことから、廃棄物処分場の浸出水処理汚泥を用いても CBZ の分解はほとんど認められないが、初期においては汚泥への吸着が確認できた。

D 期では粉末活性炭を 0.05g/L で添加したが、CBZ の流出濃度は添加 8 時間後には 3.9 $\mu\text{g/L}$ となり、以降徐々に増加した。活性炭添加後、徐々に粉末活性炭は Carbamazepine で飽和していったと考えられる。

BPA の除去率は常に 80% 以上であった。

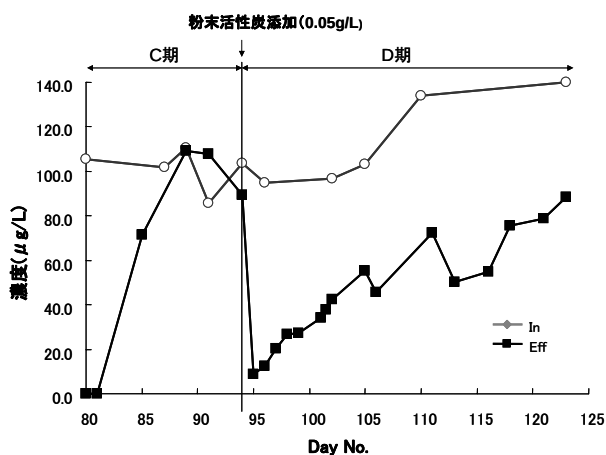


図 4 C, D 期 CBZ 流入および流出濃度

3.2 バッチ試験による吸着特性との比較

バッチ試験の結果と活性炭混入後の D 期における連続実験の結果を、横軸に液相中の CBZ 濃度 C ($\mu\text{g/L}$)、縦軸を単位活性炭量あたりの固相中 CBZ 濃度 q (g/g) として図 5 にプロットした。ここで連続実験における固相中 CBZ 濃度とは、流入 CBZ 量から流出 CBZ をひいたものがすべて活性炭に吸着されているとして算出した。

図 5 に示すようにバッチ試験の吸着等温線より D 期の連続実験での吸着量のほうが大きかった。これはバッチ試験の活性炭よりも D 期連続実験の活性炭の方が、より多くの CBZ を吸着したことを示す。つまり、水道水中のバッチ試験での粉末活性炭よりも、活性汚泥の懸濁液中での粉末活性炭の方が多くの CBZ を同じ溶液濃度で吸着できたことになる。

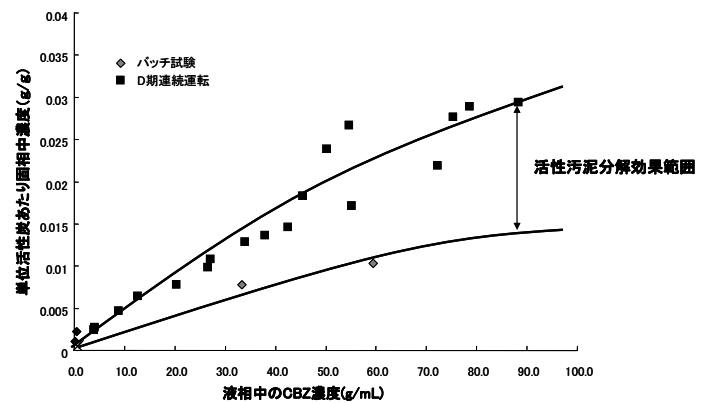


図 5 CBZ の粉末活性炭への吸着平衡

4. 結論

1) 膜分離活性汚泥法の室内実験において、活性炭の添加のない場合では Carbamazepine は、ほとんど除去されなかった。また、既存の研究で若干の除去が可能であった廃棄物処理場浸出水の処理汚泥を用いたところ、初期には吸着除去があったが、長期間では、除去効果はほとんどなかった。

2) 粉末活性炭の添加により、Carbamazepine はよく吸着された。特に 1 g/L の添加率では Carbamazepine の除去率をほぼ 100 パーセントで最低 40 日間維持することができた。また 0.05 g/L の添加率では徐々に効果が低減した。

3) 活性汚泥中の粉末活性炭の方が、水道水環境での粉末活性炭よりも、単位活性炭量あたり多くの Carbamazepine を除去もしくは吸着できることがわかった。