

## 医薬品の粉末活性炭への吸着量の活性汚泥懸濁液や溶存有機物による消費

東京工業大学大学院理工学研究科	学生会員	金巻賢二郎
東京工業大学大学院理工学研究科	正会員	浦瀬太郎
東京工業大学大学院理工学研究科	非会員	Bo Longli
ハルビン工科大学都市環境工学科	非会員	Zhang Liqiu

## 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、水道水で検出されている。これらの物質のうちかなり多くのは活性汚泥法での除去は十分ではない。我々は膜分離活性汚泥法に少量の粉末活性炭を添加すると難分解性のカルバマゼピンの除去が可能になることを報告した<sup>1)</sup>。本研究ではさらに活性炭の持つ吸着容量がどの程度活性汚泥懸濁液や溶存有機物によって消費されるのかを調べた。

## 2. 実験概要・分析方法

実験に用いた活性汚泥は廃棄物処分場の浸出水処理施設(実験 A)および都市下水の処理場(実験 B, C)から譲り受けたものである。活性汚泥を 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。流入水は実験 A, B では水道水に、実験 B では下水処理水にグルコース・ペプトンなどを加え TOC が 100mg/L 程度になるように調製したものをを用いた。さらに、実験 A ではカルバマゼピン(CBZ) 100  $\mu$ g/L、ビスフェノール A(BPA) 500  $\mu$ g/L、実験 B では CBZ 100  $\mu$ g/L、ニトロベンゼン(NB) 500  $\mu$ g/L、実験 C では CBZ、イブプロフェン(IBP)、ジクロフェナク(DCF)、クロフィブリック酸(CA) 100  $\mu$ g/L の濃度で添加した。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。実験 A では 10 日目、B では 39 日目、C では 22 日目に活性炭を 50mg/L とリアクター内濃度でなるように添加した。

膜は三菱レーヨン社製、材質ポリエチレン(孔径 0.4  $\mu$ 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°C に保った。粉末活性炭は一定期間後に投入し、活性炭の有無

および流入水溶存物質による CBZ 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に含まれる医薬品をそれぞれ固相抽出し HPLC によって測定した。

また粉末活性炭に対する、CBZ 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  $\mu$ m)を使用した。水道水 10L を三角フラスコに入れ、活性炭濃度がそれぞれ 0, 2, 5, 10, 15mg/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。CBZ(100  $\mu$ g/L) を活性炭懸濁液に入れ、24 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。

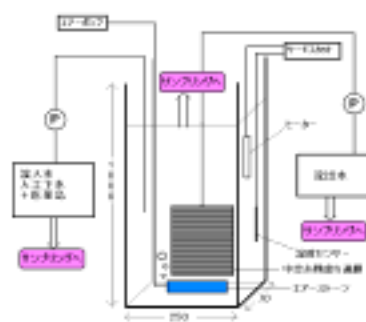


図1 活性汚泥リアクター概要図

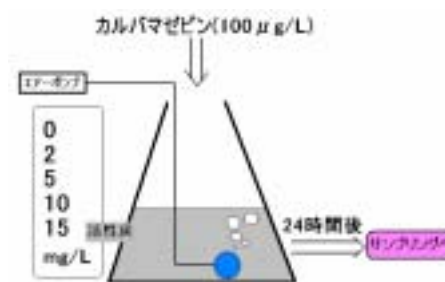


図2 バッチ試験概要図

## 3. 実験結果および考察

## 3.1 連続処理実験

連続実験 B の CBZ 流入出濃度を図 3 に示す。連続実験 B において 8 日目以降の流出濃度は流入濃度と近くなり、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。

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

39 日目に 50mg/L で粉末活性炭添加後の CBZ の流出濃度は一時的に 14.8 μg/L まで下がり、その後次第に活性炭が CBZ で飽和し、実験 A と同様の結果を得ることができた。

連続実験 C の全医薬品流入出濃度を図 4 に示す。IBP は実験開始時から流出されず、初発物質からは分解あるいは他の物質へ転換したと考えられる。DCF は実験開始から徐々に濃度が上がり流入濃度に近づき分解は見られなかった。22 日目の粉末活性炭添加後は一時的に 37.8 μg/L まで流出濃度が減少し、その後徐々に増加した。CA は当初分解できなかったが、粉末活性炭添加前である 12 日目からほとんど検出されなくなり分解あるいは他の物質へ転換した。CBZ は他の実験と同様に活性汚泥だけでは除去できず、粉末活性炭添加後は 10.7 μg/L まで減少した後、徐々に濃度が増加した。活性炭添加後、徐々に粉末活性炭は医薬品や活性汚泥懸濁液、溶存有機物で吸着能力が低下したと考えられる。

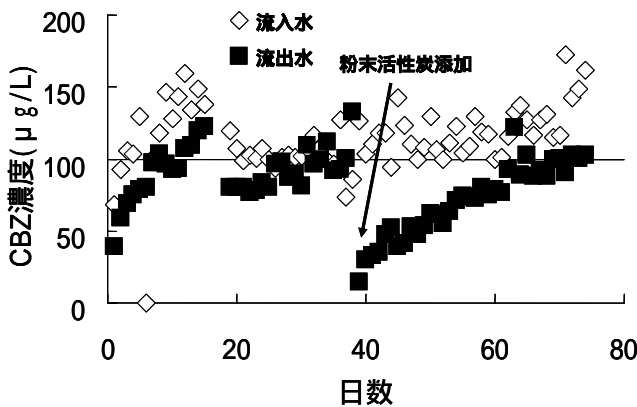


図 3 連続実験 B CBZ 流入および流出濃度

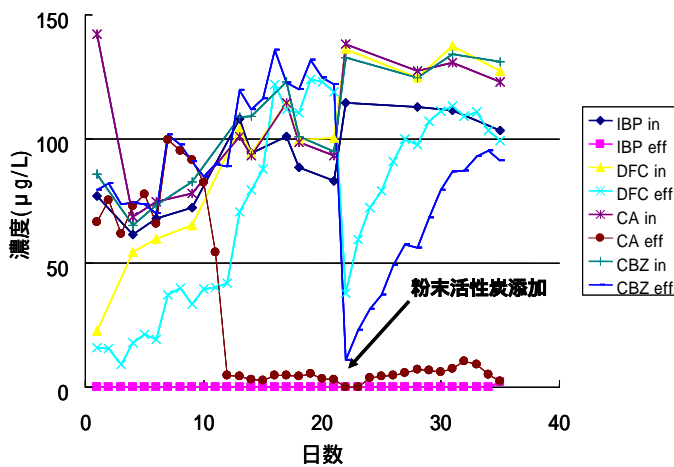


図 4 連続実験 C 医薬品流入および流出濃度

3.2 バッチ試験による吸着特性との比較

3 種類のバッチ試験の結果と活性炭混入後の連続実験 A, B, C の結果を、横軸に液相中の CBZ 濃度  $C(\mu g/L)$ 、

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 量と流出 CBZ との差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よりも連続実験の吸着等温線の方が 1/2~1/5 ほど低い値となった。これは活性汚泥の吸着能力が活性汚泥懸濁液や溶存有機物によって低下したからだと推測される。また溶媒としての水道水と下水処理水の違いを連続試験とバッチ試験のデータでそれぞれ比べると、下水処理水を用いたデータの方が CBZ 吸着能力が低いことから、下水処理水の含まれる有機物が活性炭の吸着容量を消費したと考えられる。しかし実験 C においても活性炭添加後 5 日間(水理滞留時間の 5 倍)は 50%以上の CBZ 除去率を得ていることから、流入水量ベースで 10mg/L の連続添加を行えば、50%の CBZ の除去が期待できる。

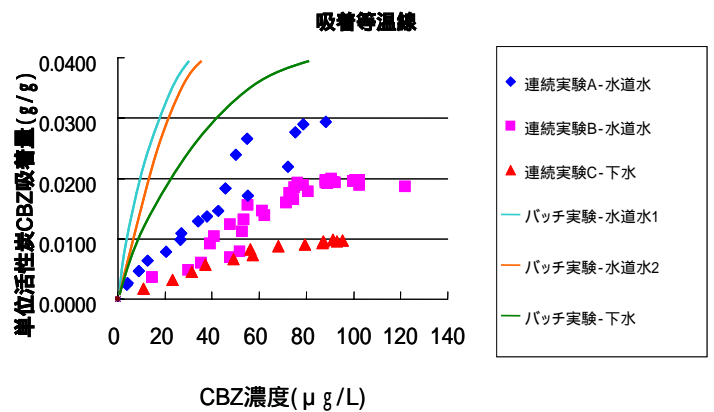


図 5 CBZ の粉末活性炭への吸着平衡

4. 結論

- 1) 連続実験の結果から下水処理水に含まれる有機物が共存する場合でも流入水量あたりで 10mg/L の粉末活性炭を膜分離活性汚泥槽に添加することで 50%以上の Carbamazepine を除去することができると考えられる。
- 2) 粉末活性炭の添加により吸着される Carbamazepine の量は活性汚泥懸濁液あるいは溶存有機物が存在することにより、同じ CBZ 残留濃度に対して、1/2~1/5 ほどに減少した。

5. 参考文献

1) 浦瀬太郎、金巻賢二郎(2006) : 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除去, 土木学会年次講演会, 61. V11-24