

家畜ふんの堆肥化、および鉍物接触による廃水処理での家畜排せつ物中抗菌剤除去の試み

岩手大学 学生会員 ○小林大晟 千葉駿太

岩手大学 非会員 笹本誠 前田武己 正会員 石川奈緒 伊藤歩

岩手県環境保健研究センター 岩渕勝己 伊藤朋子

1 背景

近年、家畜への抗菌剤使用量が増加している。家畜に投与された抗菌剤の一部は完全に消化されず、排せつ物とともに環境中に拡散している。その排せつ物を堆肥として使用する際に、土壌やその周辺の水環境に悪影響を及ぼす可能性がある。

本研究では、日本でも販売量の多いスルファモノメトキシシン(SMM)を投与しためん羊から排せつされた糞を堆肥化し、糞中のSMMの分解性を検討した。加えて、5種類の抗菌剤溶液と鉍物の振とう接触を行い、廃水中の抗菌剤除去を試みた。

2 実験方法

2-1 対象抗菌剤

堆肥化試験ではSMM、鉍物による抗菌剤の除去試験ではサルファ剤であるSMMとスルファメサジン(SMT)の他、テトラサイクリン系抗菌剤のオキシテトラサイクリン(OTC)、ドキシサイクリン(DOC)、マクロライド系抗菌剤のタイロシン(TYL)を対象抗菌剤とした。

2-2 堆肥化試験

SMMを投与しためん羊から採取した糞を小型堆肥化装置2台(リアクターA、B)に乾燥重量で600g(湿潤重量で2,000g)入れ、試料下部より通気することにより堆肥化を開始した。試料は自己発熱により室温から65°Cまで昇温する予定であったが、今回の試験では自己発熱により65°Cまで昇温しなかったため強制的に65°Cに温度を上昇させ、7日目まではその温度を維持した。7日目以降はリアクターAを40°C、リアクターBを60°Cで一定とし、合計28日間堆肥化を行った。堆肥化試験中は経時的に試料を採取し、試料中のSMM濃度を測定した。

試料中のSMM濃度の測定は相馬ら¹⁾の方法を用いて行った。糞試料2gをガラス製の褐色沈殿管に採取し、Mcllvaine緩衝液(pH8.0)を10mL混合し、10分間超音波抽出を行った。その後、遠心分離機により3,000rpmで5分間の遠心分離を行い、その上澄み液を200mL三角フラスコに採取し、これを抽出液とした。再度、沈殿管にMcllvaine緩衝液を10mL加え同様の抽出工程を繰り返した。次に固相抽出処理を行った。本研究では、固相抽出カートリッジとしてOasis HLB plus (HLB: Waters)を使用した。まず、HLBカートリッジの調整のためにメタノール5mLとMcllvaine緩衝液の20倍希釈5mLを導入した。その後、2回分の抽出液を超純水200mLで希釈し、コンセントレーターを用いて抽出液をカートリッジに導入し、アスピレーターにより10分間の空気乾燥を行った。最後に2mLのメタノールで溶出し、溶出液中のSMM濃度を高速液体クロマトグラフ-タンデム質量分析装置(LC-MS/MS; LC: Waters, Acquity, MS/MS: Waters, XevoTQD)で分析した。次式を用いて堆肥化中のSMM残留率を求めた。

$$\text{SMM 残留率 (\%)} = \frac{\text{残留 SMM 量}(\mu\text{g})}{\text{初期 SMM 量}(\mu\text{g})} \times 100$$

2-3 粘土鉍物による抗菌剤の分解実験

本実験で使用した鉍物はイエローライト、ゼオライトの2種類である。褐色沈殿管に鉍物を300mg入れ、初期濃度50μg/Lに調整した各抗菌剤溶液(SMM, STZ, OTC, DOC, TYL)を30mL加え、25°C、150rpmで3日間(TYLのみ2日間)振とうした。その後試料を3,000rpmで5分間遠心分離し、上澄み液を孔径0.3μmのガラス繊維ろ紙でろ過し、LC-MS/MSでろ液中の抗菌剤濃度を測定した。除去率を以下の式により算出した。

キーワード: 堆肥化 廃水処理 鉍物 サルファ剤 テトラサイクリン系抗菌剤

連絡先: 岩手大学 岩手県盛岡市上田4-3-5 TEL: 019-621-6982

$$\text{除去率 (\%)} = \frac{C_0 - C_3}{C_0} \times 100$$

C_0 : 抗菌剤初期濃度 (μg/L)

C_3 : 3日間振とう後の抗菌剤濃度 (μg/L)

3 結果と考察

3-1 堆肥化試験

図-1 に堆肥化中(0-7 日目)の SMM 残留率の経時変化を、図-2 には堆肥化中(7-28 日目)の SMM 残留率を示す。堆肥化初日から7日目までリアクターA、B共に糞中の SMM 量が増加していた。温度を変更した7日目以降から糞中の SMM 量が減少し始め、最終的な SMM 残留率はリアクターA(40°C)が 14.2%、リアクターB(60°C)が 157.2%となり堆肥化中の温度の違いにより残留率に差が見られた。堆肥化中の SMM 残留率の上昇は糞中に含まれている SMM の代謝物が温度上昇により再合成されたのではないかと考えられるが、今後詳細な検討が必要である。

3-2 粘土鉱物による抗菌剤の分解実験

図-3 に鉱物接触による各抗菌剤の除去率を示す。サルファ剤 (SMM、SMT) では鉱物接触による除去は見られなかった。一方、OTC と DOC のテトラサイクリン系抗菌剤とマクロライド系抗菌剤の TYL では、鉱物がない場合でも濃度が低下しており、その理由について今後検討する必要がある。一方で、鉱物がない条件よりも鉱物と接触させた条件の方が高い除去率を示したことから、鉱物による除去効果が見られた。富山と白石²⁾は、タイロシンの抗菌性は加熱のみでは失活しないが、加熱の際に酸化剤を加えると失活することを報告している。さらに粘土鉱物は酸触媒能を持つことが知られているため³⁾、粘土鉱物が酸化剤の役割を果たしタイロシンを分解している可能性がある。

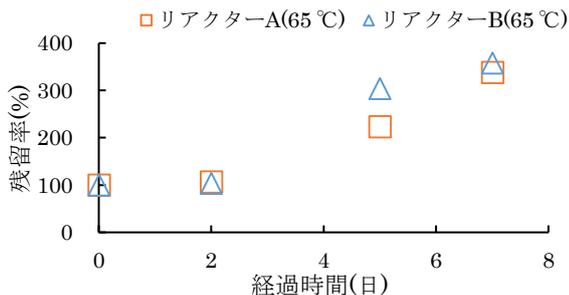


図-1 堆肥化中(0-7 日目)の SMM 残留率の経時変化

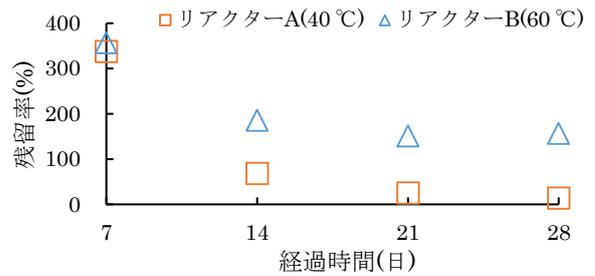


図-2 堆肥化中(7-28 日目)の SMM 残留率の経時変化

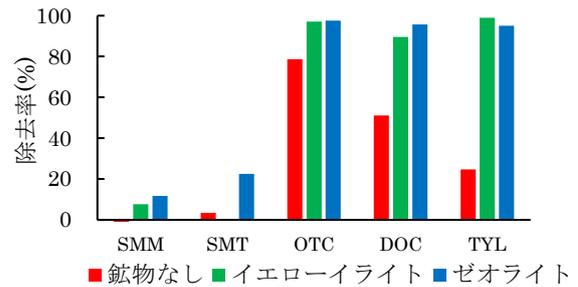


図-3 鉱物接触による抗菌剤除去率

4 まとめ

本研究で行った SMM 含有糞の堆肥化による SMM 含有量の変化については、65°Cでは SMM 含有量が増加し、40°Cと 60°Cでは減少傾向が見られた。この結果に関しては、堆肥中の SMM 関連物質の分析など詳細な検討が必要である。また、鉱物接触による液中の抗菌剤除去の検討では、サルファ剤(SMM, SMT)では除去効果が見られず、テトラサイクリン系抗菌剤(OTC, DOC)、マクロライド系抗菌剤(TYL)では除去効果が見られ、抗菌剤の種類により除去率に差があることが示された。このことから、鉱物との接触処理により廃水中のテトラサイクリン系抗菌剤とタイロシンが除去できる可能性を示した。

謝辞

本研究の一部は岩手大学共同研究支援およびニッセイ財団環境問題研究助成の支援を受けています。

引用文献

- 1) 相馬美咲ほか, 環境科学会誌, 32(3), 83-90, 2019.
- 2) 富山哲夫, 白石悦子, 日本水産学会誌, 31(4), 312-318, 1965.
- 3) 白井誠之, 粘土科学, 44(4), 199-203, 2005.