

ゼオライトを用いた下水放流水中の抗菌剤除去に関する研究

岩手大学 学生会員 ○加藤輔 小林大晟

岩手大学 非会員 笹本誠 正会員 石川奈緒 伊藤歩

岩手県環境保健研究センター 伊藤朋子 岩渕勝己* 高橋律久

*現 岩手県大船渡保健福祉環境センター

1 背景

抗菌剤は人に投与後、完全には消化されずに排泄物とともに体外に排出され下水に流入する。下水処理施設では一部の抗菌剤は除去することが困難であり、放流水とともに河川へ放流され、水域生態系への悪影響や薬剤耐性菌発生助長の原因となる。

本研究では、天然鉱物であるゼオライトによる抗菌剤の除去を検討した。下水放流水から検出された6種類の抗菌剤を対象とし、各抗菌剤溶液とゼオライトを接触攪拌し、抗菌剤の除去率を求めた。さらに実際の下水放流水について、ゼオライトでの処理を行い、対象抗菌剤の除去率について求めた。

2 実験方法

2-1 材料

研究対象の抗菌剤は、予備調査により下水放流水から検出された6種類（ニューキノロン系であるレボフロキサシン(LEV)、マクロライド系であるアジスロマイシン(AZM)、ロキシスロマイシン(RXM)、クラリスロマシム(CLM)、サルファ剤であるスルファメトキサゾール(SMZ)、スルファピリジン(SPD))とした。

抗菌剤除去に用いたゼオライトは、新東北化学工業から購入したモルデナイト型ゼオライトである。

2-2 溶液中の抗菌剤除去試験

褐色沈殿管にゼオライト 300 mg と初期濃度 0.1、0.5、1、5、10 mg/L の各抗菌剤溶液(LEV、RXM、CLM、SMZ、SPD)を 30 mL 加え、25℃、150 rpm で1時間振とうした。ゼオライトを入れず、抗菌剤溶液のみでの振とう条件も実施した。試料を 3,000 rpm で5分間遠心分離し、上澄み液を孔径 0.3 μm のガラス繊維ろ紙でろ過し、高速液体クロマトグラフ-タンデム質

量分析装置 (LC-MS/MS) でろ液中の抗菌剤濃度を測定した。抗菌剤除去率を以下の式により算出した。

$$\text{除去率 (\%)} = \frac{C_0 - C_1}{C_0} \times 100$$

 C_0 : 抗菌剤初期濃度 (μg/L) C_1 : 1時間振とう後の抗菌剤濃度 (μg/L)

2-3 下水放流水中の抗菌剤の除去実験

本実験は夏(2021年8月24日)と秋(2021年11月29日)に行った。下水放流水(消毒前)は岩手県内のT浄化センターで採取し、褐色ガラス瓶にて保存した。孔径 1.2 μm のガラス繊維ろ紙でろ過したろ液を試験液として実験に用いた。振とうフラスコに下水放流水とゼオライトを固液比 1 g : 100 mL で加え、25℃、150 rpm で1時間振とうした。その後、孔径 1.2 μm のガラス繊維ろ紙で試料を2回ろ過した。ろ液中の抗菌剤濃度について、夏の試料は固相抽出後、LC-QTOFMS(サイエックス, X500R)、AIQS-LCにて半定量した。秋の試料は、固相抽出と標準添加法を用い、LC-MS/MSで定量した。

3 結果と考察

3-1 溶液中の抗菌剤除去試験

図-1、図-2には各抗菌剤の初期濃度ごとの除去率を示す。ゼオライトを加えず抗菌剤溶液のみを1時間振とうした場合(図-1)、LEVのみ低濃度で除去率が比較的高くなったが、その他の抗菌剤は除去率が30%以下であり、ほとんど液中に残留することを確認した。一方、ゼオライトと接触した場合(図-2)、LEV、RXM及びCLMの3種類はどの初期濃度でも90%以上の除去率を示しており、これらの抗菌剤の除去にゼオライトは有効であった。しかし、SMZと

SPD の除去率は 10 %程度となり、サルファ剤に対してゼオライト処理は効果が低いため、他の除去方法を検討する必要がある。

3-2 下水放流水中の抗菌剤の除去実験

図-3 と図-4 は下水放流水を用いて、ゼオライト処理を行う前後での対象抗菌剤の濃度を示す。LEV、CLM、RXM 及び AZM はゼオライト処理後に濃度が低下しており、除去率は 98%以上であった。この結果は 3-1 の抗菌剤溶液での除去試験の結果と同様であり、溶存有機物や夾雑物が含まれる下水放流水中であっても、これらの抗菌剤除去にゼオライト処理が有効であることが確認された。

一方でサルファ剤の SMZ と SPD は、処理前後で濃度に差がなく、除去されていないことが分かった。この結果も 3-1 の結果と同様であった。

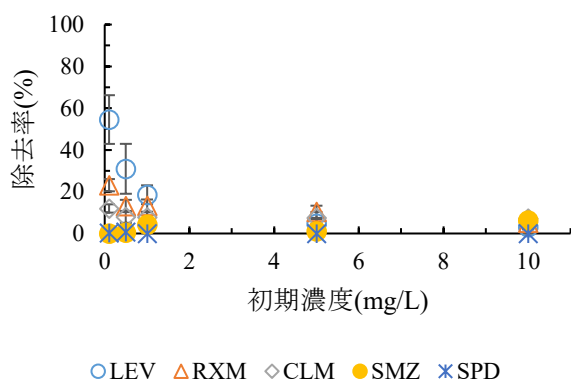


図-1 抗菌剤の初期濃度と除去率の関係
(ゼオライトなし)

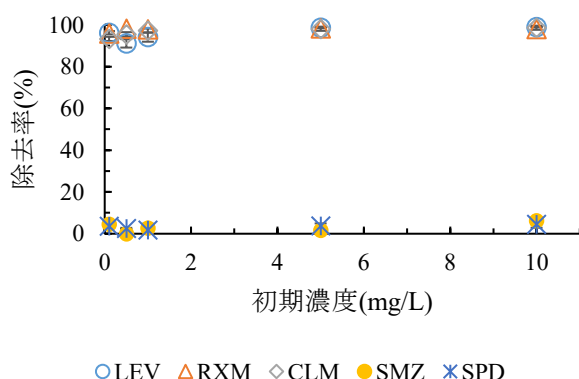


図-2 抗菌剤の初期濃度と除去率の関係
(ゼオライトあり)

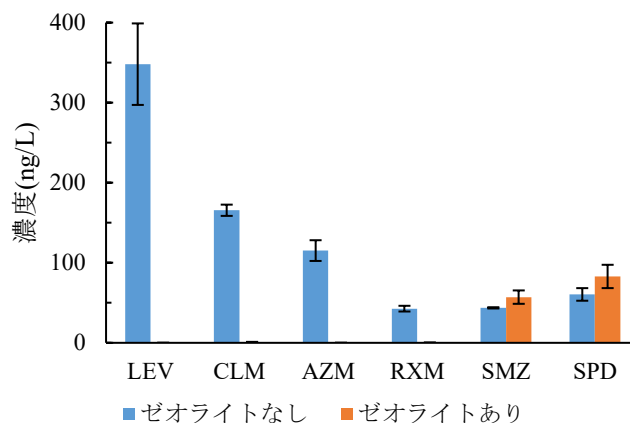


図-3 対象抗菌剤の濃度(夏)

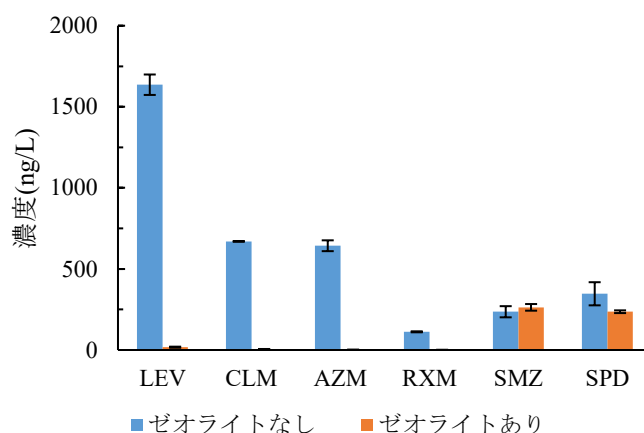


図-4 対象抗菌剤の濃度(秋)

4 まとめ

本研究で行ったゼオライトとの攪拌による各抗菌剤の除去率については、ニューキノロン系の LEV とマクロライド系の RXM、CLM では高い除去率となり、サルファ剤の SMZ、SPD ではほとんど除去されなかった。これらのことから、ゼオライトはニューキノロン系、マクロライド系の抗菌剤の除去には適しているが、サルファ剤の除去には適していないことが分かった。このことから、ゼオライトでの除去処理に有効な抗菌剤の種類が存在すると考えられるため、他の系列の抗菌剤でもゼオライト処理の有効性を検討する必要がある。

謝辞

本研究の一部は公益財団法人日立財団倉田奨励金(1442)および岩手大学ソフトパス理工学部センター補助金で実施された。