鉱物接触およびプラズマ放電による下水放流水中抗菌剤除去処理水の藻類への安全性評価

岩手大学 学生会員 〇野村咲希 岩手大学 非会員 高橋克幸 榊原哲 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

人が摂取した抗菌剤の一部は体内で代謝されずに下水に流入し、下水処理場を経由して排出された水環境に影響を及ぼすことが予想される。本研究では、鉱物(ゼオライト)接触、水中プラズマ放電の2つの処理方法を用いて下水放流水中抗菌剤の除去を行った後、その処理水について、生産者として水域生態系を支える藻類に対する抗菌剤の影響を評価した。淡水産単細胞藻類 Raphidocelis subcapitata を被験生物として用いて短期毒性試験を行い、水域生態系に対する処理水の安全性を検討した。

### 2. 実験方法

# 2.1 材料

消毒前の下水放流水を夏(2021 年 8 月 24 日)と 秋(2021 年 11 月 29 日)に岩手県内の T 浄化センタ 一から採取した。実験には孔径  $1.2~\mu m$  のガラス繊維 ろ紙(Whatman, GF/C)でろ過したものを使用した。 ゼオライトは新東北化学工業から購入したモルデナ イトを用いた。

本研究の対象抗菌剤は、予備調査により下水放流 水から多く検出された 6 種類 (表-1) とした。また、 夏は LC-QTOFMS (サイエックス, X500R)、AIQS-LC で半定量し、秋は LC-MS/MS (LC: Waters, Acquity, MS/MS: Waters, XevoTQD) で定量を行った。結果を 表-1 に示す。

### 2.2 鉱物接触処理

振とうフラスコでゼオライトと下水放流水を固液 比  $1g:100\,\mathrm{mL}$  で加え、1 時間振とう( $25^{\circ}\mathrm{C}$ 、 $150\,\mathrm{rpm}$ ) した。その後、孔径  $1.2\,\mathrm{\mu m}$  のガラス繊維ろ紙でろ過 を 2 回行い、このろ液を処理水として短期毒性試験 に用いた。処理水中の抗菌剤濃度を表-1に示す。

表-1 下水放流水中に含まれる主な抗菌剤

	抗菌剤濃度[ng/L]				
対象抗菌剤	夏(鉱物接触)		秋		
	処理前	処理後	処理前	処理後	
				(鉱物)	(プ ラス゚ マ)
レポ・フロキサシン	348	N.D.	1636	17.2	675
アシ、スロマイシン	115	N.D.	643	1.2	374
クラリスロマイシン	166	1	670	5.3	482
ロキシスロマイシン	43	0.2	112	0.736	47.4
スルファメトキサゾール	44	57	236	263	459
スルファヒ゜リシ゛ン	60	83	347	236	365

N.D. 不検出

## 2.3 水中プラズマ放電処理

500 mL の下水放流水を入れたリアクタ (図-1) に線電極を挿入したガラス管を設置した。ガラス管内に Ar を注入し、線電極にパルス電圧を印加することにより、ガラス管先端で生成する気泡内で放電を発生させた。処理時間を1時間とし、



図-1 リアクタ

この処理水(表-1)を短期毒性試験に用いた。

### 2.4 短期毒性試験

短期毒性試験はOECDのテストガイドラインに基づいて実施し、被験生物として緑藻 R. subcapitata を用いた。継代培養は室温  $23\pm2$   $^{\circ}$ Cの恒温室で、植物育成ランプと蛍光灯により、 $60\sim120~\mu mol/m^2/s$  で 24時間明期の環境下で行い、培地はC 培地を使用した。

試験はそれぞれ 4 連で行った。試験液に 100 倍濃縮培地と前培養を行っていた藻類培養液を緑藻 R. subcapitata の初期濃度が  $5\times10^3$  cells/mL となるように添加した。夏と秋の実験条件を表-2 に示す。培養開始後、0、12、24、48、72 時間目に試料を採取し、ディスポ細胞計算盤で藻類の細胞数を計数した。相

キーワード: 鉱物 抗菌剤 分解生成物 ムレミカヅキモ 短期毒性試験 連絡先: 岩手大学 岩手県盛岡市上田 4-3-5 TEL: 019-621-6982 対細胞濃度と比生長速度 μ の算出にはそれぞれ次式 を用いた。

相対細胞濃度 
$$=\frac{t^{\text{時間目の細胞濃度 [cells/mL]}}}{0 \text{ 時間目の細胞濃度 [cells/mL]}}$$
 (1)

$$\mu = \frac{\ln N_2 - \ln N_1}{t_2 - t_1} \tag{2}$$

 $t_1,t_2$ : 藻類が対数増殖している任意の時間 [min]  $N_1,N_2$ : 時間  $t_1$  および  $t_2$  の細胞濃度 [cells/mL]

表-2 実験条件

条件	夏	秋	
1	Control	Control	
2	下水放流水	下水放流水	
3	②2倍希釈液	②10倍希釈液	
4	②振とうのみ	②メディウム瓶静置	
<b>⑤</b>	鉱物接触	鉱物接触	
6	鉱物のみ振とう	プラズマ放電	

## 3. 結果と考察

## 3.1 夏の下水放流水

図-2 に夏に実施した短期毒性試験における藻類の相対細胞濃度の経時変化を示し、図-3 に各条件での比生長速度  $\mu$  値を示す。下水放流水は Control よりも低い $\mu$ 値を示した(Turkey-Kramer の HSD 検定、p < 0.05)。また、鉱物接触処理前後で $\mu$  値に有意差はなかった (p > 0.05)。したがって、ゼオライトを用いた鉱物接触処理で生じた分解生成物が処理水中に存在したとしても、藻類に対して顕著な生態毒性を示さないことが考えられる。

#### 3.2 秋の下水放流水

図-4 に秋に実施した短期毒性試験における藻類の相対細胞濃度の経時変化を示し、図-5 に各条件での $\mu$ 値を示す。水中プラズマ放電での処理水は、他の条件よりも低い $\mu$ 値を示した(p < 0.05)。水中プラズマ放電での処理水以外の条件では $\mu$ 値に有意差はなかった(p > 0.05)。したがって、水中プラズマ放電処理により藻類に対して毒性を有する物質の生成が示唆された。

### 4. まとめ

本研究では、藻類を用いて鉱物接触、水中プラズ

マ放電の2つの処理方法を用いて水域生態系に対する処理水の安全性を検討した。鉱物接触処理により 藻類の生長は阻害されなかった一方、水中プラズマ 放電処理では抗菌剤の除去が見られたものの、処理 水中に藻類の生長を阻害する物質が新たに生成され た可能性があり、それらの物質について今後明らか にする必要がある。

## 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センター 補助金で実施された。

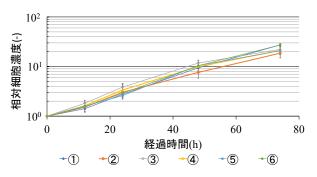


図-2 相対細胞濃度の経時変化(夏の下水放流水)

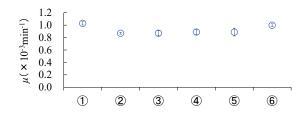


図-3 各試料の比生長速度(夏の下水放流水)

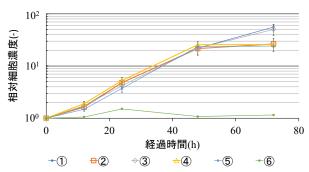


図-4 相対細胞濃度の経時変化(秋の下水放流水)

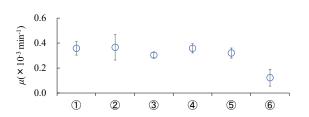


図-5 各試料の比生長速度(秋の下水放流水)