

(34) UVおよびUV/H₂O₂を用いた連続処理実験での 下水2次処理水中のPPCPsの除去特性

金 一昊^{1*}・山下 尚之¹・田中 宏明¹・
田久保 剛²・岩崎 達行²

¹京都大学大学院工学研究科 (〒520-0811滋賀県大津市由美浜1の2)

²岩崎電気株式会社光応用開発部 (〒361-8505 埼玉県行田市老里山町1-1)

* E-mail: jinker123@biwa.eqc.kyoto-u.ac.jp

本研究では日処理量10m³規模の連続実験装置を用い、実下水処理水に存在しているPPCPsのUVおよびUV/H₂O₂処理による除去特性を把握した。除去特性は連続装置の2槽目まで(接触時間:10分、紫外線投入エネルギー量:0.4kW_{UV}・h/m³)の残存率を用いて評価した。接触時間10分間で、UV単独では、41PPCPs中39PPCPsの残存率が0.003(diclofenac)~0.867(ethenzamide)の範囲であったが、diclofenacおよびsulfonamide系のPPCPs以外の残存率は大きかった。一方、UV/H₂O₂の場合、殆どのPPCPsの残存率が0.001以下となり、UV/H₂O₂プロセスがPPCP除去に有効であることが示された。

Key Words : PPCPs, UV, UV/H₂O₂, LC-MS/MS, AOP

1. はじめに

近年、水道水や下水処理水の安全性についての関心が高まってきているなか、PPCPs(Pharmaceuticals and Personal Care Products)のような微量汚染物質が注目されている^{1), 2)}。環境中に存在しているPPCPsの主な排出源としては下水処理場の放流水と推定されている^{3), 4)}。特に、下水処理水は河川に放流され、その河川の下流側で水道水源として使用される場合が多いこと、また、下水処理水は都市域で貴重な水資源、つまり再利用水として用いられることから、今後は下水処理場においてもより良質な処理水が求められると考えられる。近年、水中の有機物質の除去においても、今までは主に消毒のために使われることの多かった紫外線(UV)プロセスについての関心が高まっている。これはUVプロセスを用いた場合、オゾンあるいは過酸化水素などとの併用によりOH radicalsを生成させることができ、このOH radicalsが難分解性物質の分解に有効と考えられるからである。Diclofenac, carbamazepine, diazepam, bezafibrate, sulfamethoxazole および ibuprofen などのPPCPsを対象とした紫外線処理についての研究では、UV/H₂O₂プロセスがPPCPsを分解するのに有効であ

ると報告されている^{5), 6), 7)}。

一方、水中に含まれるPPCPsの除去に関して多くの研究が行われているが、そのほとんどは水処理法ごとのPPCPsの除去特性や紫外線あるいはオゾン、塩素などの酸化剤とPPCPsとの反応機構の検討を主に扱ったものである^{8), 9), 10)}。しかし、紫外線あるいはオゾンを連続的に稼動するという実処理条件下でのPPCPsの除去性についての評価はほとんど行われていない。そこで、本研究では、UV処理用連続実験装置を、連続的に運転するという実処理条件下で、下水処理中に存在しているPPCPsを対象にUVおよびUV/H₂O₂処理による除去特性を把握することを目的とした。そのため、まず、連続実験装置を用い、下水2次処理水に含まれるPPCPsを対象として紫外線単独処理実験を行った。次に、筆者らが既に行った研究⁷⁾から、紫外線単独処理では分解が困難であったPPCPsが確認されたため、紫外線処理と同時に過酸化水素を添加した促進酸化処理方法によるPPCPsの除去性能を検討した。

2. 実験方法

(1) 対象 PPCPs

表-1 対象物質の種類と用途

No.	Name of PPCPs	Use
1	Clarithromycin	抗生物質
2	Levofloxacin	
3	Erythromycin	
4	Sulfamethoxazole	
5	Nalidixic acid	
6	Azithromycin	
7	Trimethoprim	
8	Sulfadimethoxine	
9	Licomycin	
10	Tetracycline	
11	Chlorotetracycline	
12	Norfloxacin	
13	Mefenamic acid	解熱鎮痛剤
14	Diclofenac	
15	Indomethacin	
16	Ethenzamide	
17	Antipyrine	解熱鎮痛消炎剤
18	Acetaminophen	
19	Naproxen	鎮痛、消炎剤
20	Fenoprofen	
21	Isopropylantipyrine	血管拡張剤
22	Crotamiton	
23	Ketoprofen	不整脈用剤
24	Diltiazem	
25	Dipyridamole	
26	Disopyramide	抗てんかん剤
27	Atenolol	
28	Metoprolol	
29	Propranolol	気管支拡張剤
30	Carbamazepine	
31	Primidone	精神神経用剤
32	Teophylline	
33	Sulpiride	消化性潰瘍用剤
34	Pirenzepine	
35	Clofibrate acid	抗がん剤
36	Cyclophosphamide	
37	Bezafibrate	高脂血症用剤
38	2-QCA	
39	N,N-diethyl-m-tolamide	防虫剤
40	Ifenprodil	
41	Caffeine	強心剤

表-1には本研究で対象とした41PPCPsの名称と用途を示す。対象 PPCPs は主に抗生物質、解熱鎮痛剤、不整脈用剤および鎮痛消炎剤などで構成されており、分子量は 151.165 (acetaminophen) ~ 747.964 (clarithromycin)、water-octanol 分配係数である LogK_{ow} 値は-1.30 (tetracycline)から 5.12 (mefenamic acid)の範囲である¹²⁾。

(2) 実験装置の構成および処理実験の条件

本研究では、実下水処理中に残存する PPCPs の除去性能を検討するため、UV 単独処理および UV/H₂O₂ の促進酸化処理を用い、ベンチスケールでの連続処理実験を行った。図-1には本研究で使用された連続実験装置を示す。図-1から分かるように、連続処理装置は3槽(有効容積: 35L/槽、平均滞留時間: 5分/槽)のステンレス製の反応槽が直列に連結されてい

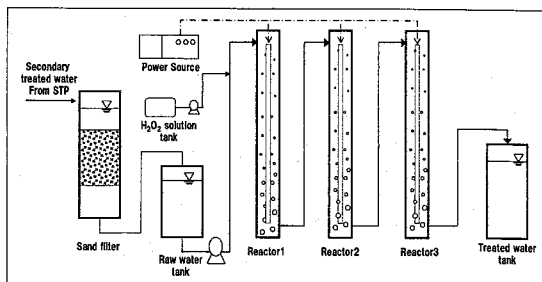


図-1 連続実験装置の概略図

る。ここではいずれの処理方法においても2槽目まで(有効容積: 70L、滞留時間: 10分)の除去率をもとに、各処理方法のPPCPs除去効果を比較、評価した。

試験原水として使われた下水2次処理水は、実下水処理場の場内再利用水であり、本実験では濁質を除去するため砂ろ過槽を通してから、連続反応槽に注入した。砂ろ過槽を通した下水2次処理水のpHは6.5、DOC濃度は3.7mg/L、UV254値は0.0691/cmであった。また、サンプルの採取は試験水へのUV照射が安定していることを保証するため、UV照射開始から45分(全体HRTの3倍)が経過してから行った。実験条件としては、まず、UV単独処理実験では、1槽および2槽の内部に28Wの紫外線出力値を持つ低圧水銀ランプ(波長: 254nm、長さ: 1,556mm)を3本ずつ挿入し、処理実験を行った。

UVランプの出力値から求められた各槽ごとのUV投入エネルギー量は $0.2\text{kW}_{UV} \cdot \text{h}/\text{m}^3$ であり、本実験では $0.4\text{kW}_{UV} \cdot \text{h}/\text{m}^3$ のUVエネルギー量を投入した。本実験で用いたランプを消毒で使用する時の投入エネルギー量は通常 $0.0054\text{kW}_{UV} \cdot \text{h}/\text{m}^3$ であることから、本実験では消毒で使用する場合のおよそ70倍以上のエネルギー量を投入したことになる。また、試験水に対するUV照射効率を上げるため、UVが照射される間、各槽の下部から0.5L/minの流量で曝気を行った。

UV/H₂O₂処理実験は1槽および2槽でUV照射をしながら、1,747mg/LのH₂O₂溶液を定量ポンプを用い、1.9L/hrの流速で下水2次処理水とともに配管を通して1槽に注入した。1槽目の入口でのH₂O₂の濃度は7.8mg/Lであった。いずれの実験でも、サンプルは反応槽への入口と1槽目および2槽目の出口から採取し、直ちに固相抽出を用いた前処理を行ったのちLC/MS/MSで測定した。

(3) サンプルの前処理方法

各処理実験で採取したサンプルは、LC/MS/MSで測定する前にWaters社製のOasis HLB Extraction

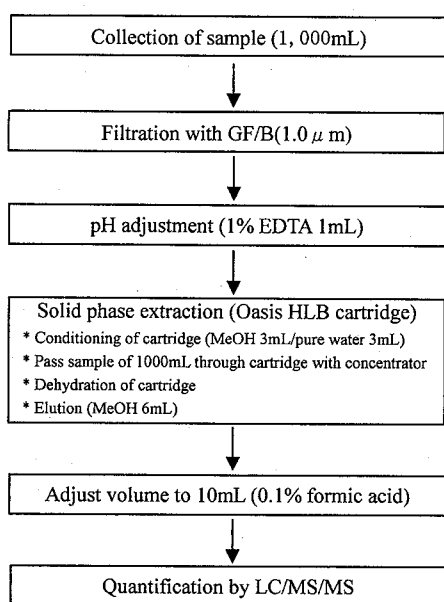


図-2 LC/MS/MS 分析のための固相抽出過程

Cartridge(6cc/100mg)で直に固相抽出を行った。

下水 2 次処理水や紫外線処理後のサンプル中の PPCPs 濃度は ng/L のオーダーで非常に低かったため、連続実験から採水したサンプルは GF/B(1.0 μm)ろ紙でろ過した後、そのろ液(1L)を固相カートリッジで濃縮した。ろ液は濃縮する前に、1mL の 1%EDTA 溶液を添加し、約 pH4 の酸性条件に調整した。

固相抽出に用いた Oasis HLB カートリッジは、3mL のメタノールであらかじめコンディショニングし、コンセントレーター(流量：10ml/min)を用いて 1L のサンプルを濃縮した。固相抽出過程は図-2 に示すようにカートリッジへのサンプルの通水およびカートリッジの脱水、続いてメタノールによる PPCPs の溶出の順で行った。固相抽出が終わったサンプルは LC/MS/MS により PPCPs の定量を行った。

(4) PPCPs の分析

41 種類 PPCPs の濃度は LC/MS/MS により定量したが、数多くの PPCPs を同時に分析するため、移動相の極性を時間ごとに变化させる gradient 溶離を行う方法を採用した。

詳しい LC/MS/MS の測定条件は表-2 に示す。また、溶存有機炭素(DOC)濃度の分析は焼却-非分散形赤外線ガス分析法 (TOC-5000A、島津製作所)で行い、全炭素濃度から無機炭素濃度を差し引いて DOC 濃度を求めた。サンプル中の過酸化水素の濃度は 2,9-dimethyl-1,10-phenanthroline (DMP)法を用いて測定した。

表-2 LC/MS/MS の測定条件

<HPLC : Waters 2659>

- Column :	Waters SunFire C18 2.1mm×150 mm, 5 μm		
- Column Temp. :	20℃		
- Flow rate :	0.2 ml/min		
- Injection volume :	10 μl		
- Mobile Phase :	A Water, B Methanol, C 1% Formic acid		
- Gradient :	Time(min)	A(%)	B(%)
	0	70	20
	15	0	90
	20	70	20
			10

<MS/MS : Quattro micro API>

- Ionization :	Electrospray Ionization(ESI)
- Spray Voltage :	3500 V
- Capillary Temp. :	350℃

3. 実験結果および考察

(1) 下水 2 次処理水中の PPCPs の種類および濃度

図-3 には UV および UV/H₂O₂ 処理実験時、試験水として用いた下水 2 次処理水の砂ろ過水に含まれていた PPCPs の種類およびその平均値を示す。ここで、平均値は UV および UV/H₂O₂ 処理実験時の試験水から検出された PPCPs 濃度の平均値である(n=2)。

図-3 から分かるように、試験原水である下水 2 次処理水には、抗生物質が 12 種、解熱鎮痛剤が 7 種、不整脈用剤が 4 種、その他鎮痛・消炎剤や血管拡張剤など 18 種の合計 41 種類の PPCPs が含まれていた。抗生物質では clarithromycin、erythromycin および azithromycin などの macrolide 系 (111~656 ng/L)、sulfamethoxazole および sulfadimethoxine などの sulfonamide 系 (42~187 ng/L)、tetracycline および chlorotetracycline などの tetracycline 系 (4~17 ng/L)、さらに nalidixic acid および norfloxacin などの quinolone 系 (4~148 ng/L)が多く含まれ、特に macrolide 系の抗生物質は他の抗生物質に比べ、高濃度で存在していることが分かった。

また、鎮痛・消炎剤の crotamiton を含め、精神神経用剤 sulpiride、抗生物質 clarithromycin、不整脈用剤 disopyramide など 13 種類の PPCPs の濃度は 100ng/L を超えていた。特に crotamiton は、処理実験時の平均濃度が 1,359ng/L (1,345~1,373ng/L)であり、検出された物質の中で最も高い濃度で存在していた。Sulpiride も、842ng/L~873ng/L の濃度で試験水中に含まれていた。

また、抗がん剤として用いられる cyclophosphamide やコレステロール降下剤の clofibric acid など 6 種類の PPCPs の濃度も 2~6 ng/L と低濃度ながら検出された。

一方、本実験での下水 2 次処理水から検出された

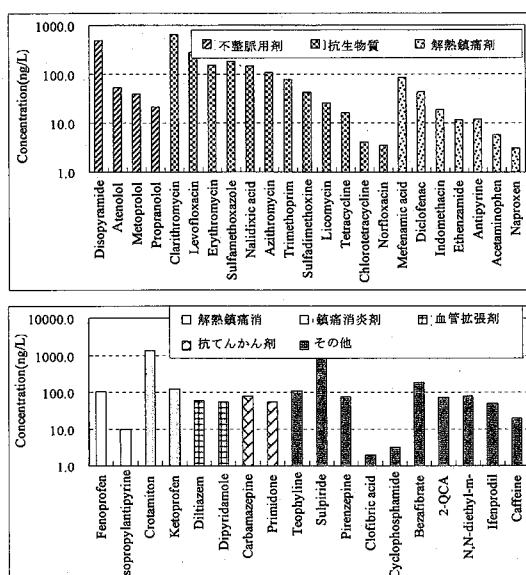


図-3 UV および UV/H₂O₂ 処理実験における初期濃度の平均値

41 種類の PPCPs のうち、atenolol、acetaminophen、naproxen、N,N-diethyl-m-toluamide (DEET) および ketoprofen は、下水高度処理システムにおける医薬品の動態を把握した研究結果から、生物反応槽で約 70% 以上除去されており、比較的活性汚泥により生分解を受けやすい物質であると報告されている³⁾。小林らの研究³⁾から、生分解性が低い物質と分類された disopyramide、crotamiton の平均濃度はそれぞれ 499 ng/L、1,359 ng/L であり、他 PPCPs に比べて非常に高濃度で試験水中に残留していることが分かった。また、diclofenac、diltiazem、carbamazepine、pirenzepine など生分解性が低いとされているが、これらは 44 ng/L (diclofenac)～79 ng/L (carbamazepine) の濃度範囲で検出された。

特に、生分解性も低く、SS や汚泥への吸着性も低い物質とされている clofibric acid は 2ng/L であり、最も低い濃度で下水 2 次処理水から検出された。

(2) UV 処理および UV/H₂O₂ による PPCPs の除去特性

連続処理系における UV 処理による PPCPs の除去性能を検討するため、PPCPs を添加せずに下水 2 次処理水に含まれる 41 種類の PPCPs を対象に、254nm の波長を出力する UV ランプを単独で用いた処理実験、および UV 照射と同時に H₂O₂ を連続的に反応槽へ加えた促進酸化処理実験を行った。

表-3 には連続実験装置を用いて UV 処理および UV/H₂O₂ 処理を行った場合、2 槽目(滞留時間: 10 分、紫外線投入エネルギー量: 0.4kW_{UV} h/m³) での

表-3 各処理方法による各 PPCPs の残存率(2 槽目)

Name of PPCP	Relative residual ratio	
	UV treatment	UV/H ₂ O ₂ treatment
Ethenzamide	0.867	0.000
Erythromycin	0.860	0.001
Primidone	0.824	0.000
Clarithromycin	0.818	0.002
N,N-diethyl-m-tolamide	0.780	0.056
Carbamazepine	0.746	0.000
Metoprolol	0.740	0.022
Trimethoprim	0.706	0.001
Pirenzepine	0.678	0.000
Licomycin	0.651	0.000
Sulpiride	0.616	0.001
Mefenamic acid	0.612	0.001
Atenolol	0.597	0.007
Cyclophosphamide	0.584	0.095
Propranolol	0.567	0.016
Teophylline	0.546	0.001
Acetaminophen	0.537	0.031
Levofloxacin	0.511	0.002
Bezafibrate	0.416	0.001
Naproxen	0.349	0.014
Crotamiton	0.320	0.009
Indomethacin	0.318	0.016
Fenopropfen	0.303	0.008
Tetracycline	0.299	0.000
2-QCA	0.275	0.023
Ifenprodil	0.169	0.003
Norfloxacin	0.120	0.154
Isopropylantipyrene	0.080	0.059
Sulfadimethoxine	0.071	0.004
Nalidixic acid	0.051	0.007
Ketoprofen	0.033	0.002
Sulfamethoxazole	0.016	No data
Disopyramide	0.011	0.001
Diltiazem	0.006	0.003
Dipyridamole	0.004	0.005
Diclofenac	0.003	0.001
Antipyrine	0.000	0.000
Chlorotetracycline	0.000	0.000
Clofibric acid	0.000	0.000
Azithromycin	No data	0.006
Caffeine	No data	0.096
Average value of Relative residual	0.387	0.016

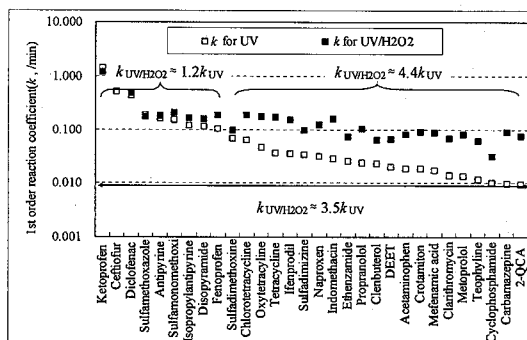
*10 分処理後の濃度が LOD 以下であった PPCP は 0.000 にした。

PPCPs の残存率を示す。

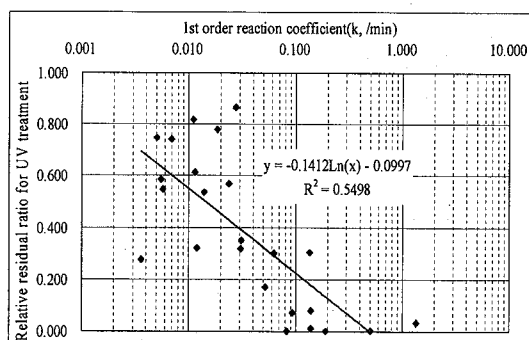
UV 処理時、azithromycin、caffeine 以外の 39PPCPs の残存率は 0.003 (diclofenac)～0.867 (ethenzamide) の範囲にあり、その平均値は 0.419 であった。

39PPCPs のうち、UV 処理時の残存率が 0.100 以下 (90% 以上の除去率) であった PPCPs は sulfadimethoxine および sulfamethoxazole などの sulfonamide 系の抗生物質、血管拡張剤の diltiazem と dipyridamole、鎮痛消炎剤の ketoprofen、さらに解熱

図-4 には下水 2 次処理水に 30 種類の PPCPs を添



一方、UV 単独処理で 0.100/min 以上の k 値が得られた ketoprofen、diclofenac、sulfamethoxazole など 9PPCPs の k 値は平均で約 1.2 倍に増加した。特に diclofenac は脱塩素反応により UV 分解されるが、UV/H₂O₂ 処理時、初期 30 分間の分解速度が H₂O₂ の添加の有無により殆ど変わらなかったことから、



- 287 -

図-5 には純水に 30 種類の PPCPs を添加した試験水に UV 照射を行ったバッチ実験から得られた PPCP ごとの 1 次反応速度常数(k , /min)値¹¹⁾と、本実験で確認された UV 処理時の各 PPCPs の残存率の関係を示す。グラフから 1 次反応速度常数値と残存率とは負の相関が見られ、バッチ実験での k 値が高くなるほど、連続実験での残存率も低くなることが確認できた。

(3) 処理方法別各槽の PPCPs 除去特性

図-6 には、UV および UV/H₂O₂ 処理時、本実験系における槽ごとの PPCPs の除去への寄与度を確認するため、各 PPCP における 2 槽目までの全除去率に対する 1 槽目の除去率の比を示す。UV 処理の場合、図-6 から分かるように、antipyrine、chlorotetracycline、diclofenac など 12PPCPs は 1 槽目で 2 槽目までの全除去率の 90%以上が分解され、本実験で対象とした他の PPCPs に比べ 1 槽目での分解が非常に速やかに進んでいた。また、これら PPCPs の cyclophosphamide を除く 11 の PPCPs の 2 槽目までの全除去率は 90%以上であり(表-3)、他 PPCPs に比べ比較的 UV で分解しやすい物質であると思われた。

一方、acetaminophen、tetracycline、naproxen など 12PPCPs の場合、各 PPCPs の 2 槽目までの全除去率の 50%以上が 2 槽目で分解されたが、2 槽目までのこれらの PPCPs の残存率は 0.299 (tetracycline)～0.860 (erythromycin)であった。つまり、2 槽目までの残存率が高い物質ほど全除去率への 2 槽目の寄与度も高くなる傾向が見られた。このことは、1 槽目では投入した UV エネルギーが antipyrine など UV に分

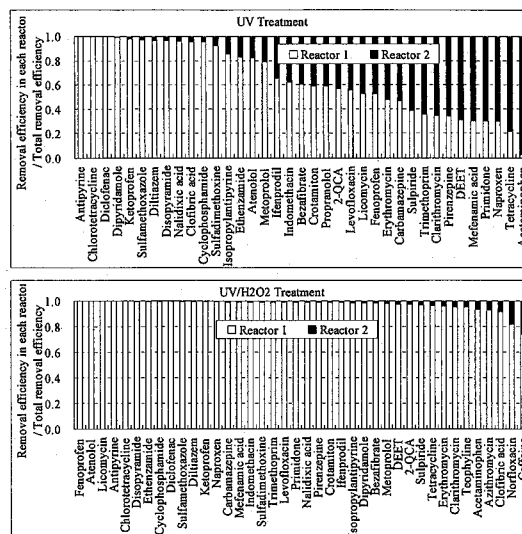


図-6 UV および UV/H₂O₂ 処理時、槽ごとの PPCPs 除去への寄与率の比較

解されやすい PPCPs、あるいは下水処理水由来の有機物質に主に消費され、2 槽目では acetaminophen など UV で分解しにくい PPCPs の分解に使われるためであると考えられる。なお、波長 254nm における吸光度(UV254)は、試験原水では 0.069/cm であったが、1 槽目では 0.057/cm、2 槽目では 0.053/cm と、徐々に減少した。

しかし、試験原水および槽ごとの DOC 濃度は 3.6mg/L~3.8mg/L で殆ど変わらず、有機物質のうち芳香族や不飽和結合などを持つ部位の割合を表す指標である SUVA (UV254/DOC) 値も試験原水の 0.019 L/mg・cm から 2 槽目出口で 0.014 L/mg・cm とわずかな減少しか見られなかった。UV を単独に使用して行ったパッチ実験(反応時間 10 分)においても、SUVA 値は 0.035 L/mg・cm~0.033L/mg・cm の範囲で殆ど変化していなかった。下水 2 次処理水中の PPCPs のように不飽和結合を持つ化合物の UV 単独処理による分解にはかなりの UV 照射量が必要であると考えられる。

一方、UV/H₂O₂ 処理の場合は、caffeine と norfloxacin 以外の全ての物質で、初期濃度の 90%以上が 1 槽目で分解される傾向が見られ (図-6)、2 槽目までの処理を行う必要性はほとんどないといえる。UV 処理時と同じく DOC 濃度はあまり変わらなかったが、UV254 値は試験原水の 0.070/cm から 1 槽目出口で 0.034/cm、2 槽目出口では 0.023/cm と、大きく減少したことから、OH radicals の酸化作用が PPCPs や共存有機物質の分解に大きく寄与したと考えられた。特に 1 槽目で UV254 値が急激に減少しているのは、

多くの PPCPs について、2 槽目までの全除去率の 90%以上が 1 槽目で分解されていることと同じ傾向である。したがって、PPCPs の処理を考慮した場合、多くの照射量を必要とする UV 単独処理より、OH radicals の分解作用による処理時間の短縮や省エネルギーが期待できる UV/H₂O₂処理プロセスが望ましいと考えられる。

4. まとめ

本研究では、連続処理系における UV による数多くの PPCPs の除去性能を検討するため、10m³/日の処理規模の実験装置を用いた UV 処理実験を行った。この結果、実際に PPCPs の除去を目的として UV 処理が下水処理水に適用される場合、UV 処理により下水処理水に含まれるそれぞれの PPCPs の除去率が概ね予想可能となった。

本研究から得られた知見を以下に示す。

1)試験水として使用した下水 2 次処理水中には、macrolide 系、sulfonamide 系および tetracycline 系などの抗生物質が 12 種類、diclofenac、mefenamic acid などの解熱鎮痛剤 7 種類、disopyramide などの不整脈用剤 4 種類など、合わせて 41 種類の PPCPs が 2ng/L ~1,359ng/L の平均濃度で存在しており、生物処理後にも数多くの PPCPs が水中に残留していることが示された。

2) UV 単独処理では、41PPCPs のうち 39PPCPs の残存率が 0.003 (diclofenac)~0.867 (ethenzamide)(全体残存率の平均値 : 0.419)の範囲であり、ketoprofen、diclofenac および sulfonamide 系の PPCPs 以外は除去されにくいと考えられた。特に、ethenzamide、clarithromycin、N,N-diethyl-m-toluamide の残存率はそれぞれ 0.867、0.818、0.780 であり、対象物質の中でも紫外線で分解しにくい物質であることが分かった。

3)UV 処理と H₂O₂(試験水中の初期 H₂O₂ 濃度 : 7.8mg/L)併用することにより、殆どの PPCPs の残存率は 0.001 以下となった。また、41PPCPs の平均残存率も UV 単独処理時よりもおよそ 1/20 倍程度に低減され、PPCPs の除去を目的とした場合、UV/H₂O₂ プロセスは紫外線照射時間や紫外線投入エネルギー量の短縮が期待できる有効な処理方法であることが示された。

4) Antipyrine、chlorotetracycline および diclofenac など 12PPCPs は連続実験装置の 1 槽目で 2 槽目までの全除去率の 90%以上が分解され、他 PPCPs に比べ 1 槽目での分解反応が速やかに進むことが明らかになった。Acetaminophen、tetracycline および naproxen

などは 2 槽目までの残存率が高い PPCPs であり、1 槽目よりも 2 槽目での除去率の割合の方が高い傾向が見られた。これは紫外線との反応が速い PPCPs もしくは下水 2 次処理水中の共存有機物質などによる紫外線エネルギーの消費により 1 槽目ではその分解が妨害されたためと考えられた。

謝辞 : 本研究は環境省の環境技術開発等推進費の助成を受けて行われた。ここに感謝の意を表す。

参考文献

- 1) Thomas Heberer : Occurrence, fate and removal of pharmaceutical residues in the aquatic environment: a review of recent research data, *Toxicology Letters*, Vol.131, pp.5-17, 2002
- 2) Tvrtko Smital, Till Luckenbach, Roverta Sauerborn, Amro M.Hamdoun, Rebecca L.Vega, David Epel : Emerging contaminants-pesticides, PPCPs, microbial degradation products and natural substances as inhibitors of multixenobiotic defense in aquatic organisms, *Mutation Research*, Vol.552, pp.101-117, 2004
- 3) 小林義和・奥田隆・山下尚之・田中宏明・田中周平・藤井滋穂・小西千絵・宝輪勲 : 都市下水の高度処理システムにおける医薬品の動態, *Environmental Engineering Research*, Vol.43, pp.65-72, 2006
- 4) 清野敦子・古荘早苗・益永茂樹 : わが国の水環境における人用・動物用医薬品の存在, *Journal of Japan Society on Water Environment*, Vol.27, pp.685 - 691, 2004
- 5) Davide Vogna, Raffaele Marotta et al. : Advanced oxidation of the pharmaceutical drug diclofenac with UV/H₂O₂ and ozone, *Water Research*, Vol.38, pp.414-422, 2004
- 6) Davide Vogna, Raffaele Marotta et al. : Kinetic and chemical assessment of the UV/H₂O₂ treatment of antiepileptic drug carbamazepine, *Chemosphere*, Vol.54, pp.497-505, 2004
- 7) 金一昊、田中宏明、山下尚之ら : 紫外線処理による 30 種類の医薬品の除去特性に関する回分実験、*Environmental Engineering Research*, Vol.43, pp.47-56
- 8) Marc M.Huber, Silvio Canonica et al. : Oxidation of Pharmaceuticals during Ozonation and Advanced Oxidation Process, *Environ. Sci. Technol.*, Vol.37, pp.1016-1024, 2003
- 9) Marc M.Huber, Thomas A. Ternes : Oxidation of pharmaceuticals during water treatment with chlorine dioxide, *Water Research*, Vol.39, pp.3607-3617, 2005
- 10) Antonio Lopez, Anna Bozzi, Giuseppe Mascolo, John Kiwi : Kinetic investigation on UV and UV/H₂O₂ degradations of pharmaceutical intermediates in aqueous

solution, Journal of Photochemistry and Photobiology,
Vol.156, pp.121-126, 2003

- 11) 金一昊、田中宏明ら：PPCPs の紫外線処理時 PPCPs
の分解に及ぼす紫外線波長および過酸化水素添加の影
響、土木学会第 62 回年次学術講演会、投稿中

- 12) 小林義和、田中宏明ら：都市下水の高度処理システム
における医薬品の動態、環境工学研究論文集、第 43 巻、
pp.6572、2006

(2007. 5. 25 受付)

Removal of PPCPs in Secondary Treated Water during Continuous Treatment with UV and UV/H₂O₂ Processes

Ilho KIM¹, Naoyuki YAMASHITA¹, Hiroaki TANAKA¹,
Takeshi TAKUBO², Tatsuyuki IWASAKI²

¹Dept. of Urban and Environmental Engineering, Kyoto University

²Iwasaki Electric Co.,Ltd.

The removal efficiency of 41 PPCPs contained in secondary treated wastewater was investigated with continuous UV and UV/H₂O₂ processes having capacity of 10m³/d. In this study, in order to evaluate the removal potential of UV and UV/H₂O₂ processes for the PPCPs, a residual ratio that is defined a ratio of a residual concentration of a target PPCP after treatment to its initial concentration was selected at 10 min of contact time in UV or UV/H₂O₂ process (the amount of energy irradiated : 0.4kW_{UV}·h/m³). For UV process, the residual ratios of 39 PPCPs ranged from 0.003 (diclofenac) ~ 0.867 (ethenzamide), resulting in low degradation for most of the PPCPs investigated except for a few of the PPCPs including diclofenac and sulfonamides. Especially, the residual ratios of ethenzamide, clarithromycin and N,N-diethyl-m-toluamide were 0.867, 0.818 and 0.780, respectively and these values were considerably higher than those of the other PPCPs. On the other hand, for UV/H₂O₂ process, the residual ratios of most of the PPCPs were less than 0.001, which indicates that UV/H₂O₂ process would be an effective treatment method when the PPCPs in secondary effluent would be further removed.