

(52) 淀川水系における医薬品類の存在実態

花本征也*・中田典秀・山下尚之・田中宏明

京都大学大学院工学研究科附属流域圏総合環境質研究センター (〒520-0811 滋賀県大津市由美浜1-2)

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

本研究では、淀川水系において医薬品類の存在実態の季節変動を把握することを目的とし、10月から3月までの6ヶ月間に渡り週に1度の高頻度で河川調査を行った。下水処理水において、Sulpirideなど8物質の濃度の推移は調査期間内でほぼ横ばいであったが、Trimethoprimなど5物質は秋季から冬季にかけて濃度が2倍程度に上昇した。また、調査区間の上端となる河川では、SulpirideとCaffeineの通過負荷量が調査期間内で継続的に上昇している地点も存在した。また、Caffeineなど5物質は、下水処理水において季節とは関係なく突発的に濃度が上昇しており、処理レベルの一時的な低下が原因であると示唆された。

Key Words : pharmaceuticals, PPCPs, river survey, seasonal variation

1. 背景と目的

近年の分析技術の進歩によって環境中の微量物質が測定できるようになったことで、人が服用・使用・廃棄した医薬品類 (Pharmaceuticals and personal care products : PPCPs) や畜産・養殖に使用された医薬品類が水環境中に存在することが分かってきた¹⁾。医薬品類は、低濃度で生体の特定の生理的調節機能に作用するように製造されているため、水生生物への生態影響、ヒトの健康への影響、薬剤耐性菌の発生、下水処理場や浄化槽の生物処理への影響などが懸念される。実際、消毒殺菌剤として使用されているTriclosanは環境中に存在するレベルの濃度で水生生物に影響を与えると報告²⁾されているし、病院排水には多剤耐性菌が多く含まれている (検出率: 0.58~40%) と報告³⁾されている。このような特徴を持つ医薬品類であるが、薬事法との二重規制を避けるため化審法が適用されておらず、水生生物への影響の確認が行われていない。

このような点から社会的にも関心の高い問題となっている医薬品類による水環境汚染であるが、対策を立てるにあたり、流域単位で管理を行うことが必要であると考えられる。流域管理を行う過程は、次の3段階に分けられる。

- I : 水環境中における濃度の予測
- II : リスク評価

III : 最適な対策の検討と施行

本研究では、河川における医薬品類濃度の予測を行うことを最終目的とした。

河川における濃度の予測を行うにあたり、以下の5つの知見が必要となる。

- i : 存在実態 (実測値)
- ii : 負荷源
- iii : 排出負荷量の原単位
- iv : 河川流量
- v : 河川中での動態

まずは、存在実態の把握を行うこととした。河川中における医薬品類の存在実態に関しては、これまでに、空間的な分布について把握を行った事例 (広範囲の河川を対象にした調査¹⁾ など) は見られるが、その時間的な分布 (季節変動や雨天時の合流式下水道の影響) についての

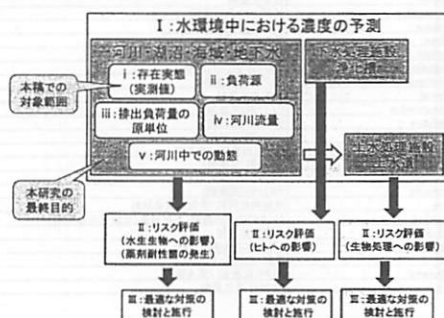


図1 本研究の全体像

目的：淀川水系において医薬品類存在実態の調査期間における変動を把握する

表2 調査の概要

地点名	調査	第1週	第2週	第3週	第4週	第5週	第6週	第7週	第8週	第9週	第10週	第11週	第12週	第13週
1 区間上流点①	綾川	10/7	10/13	10/14	10/21	10/28	11/4	11/11	11/18	11/25	12/2	12/9	12/16	12/23
2 区間上流点②	平治川	11時	13時	-	12時	12時	11時	12時	-	12時	12時	11時	-	14時
3 区間上流点③	木津川	11時	10時	-	11時	11時	11時	11時	-	15時	11時	15時	-	11時
4 処理場A	合流式	11時	12時	-	12時	11時	12時	-	12時	12時	11時	-	13時	11時
5 処理場B	合流式	12時	13時	-	12時	12時	12時	-	12時	12時	12時	-	14時	12時
6 処理場C	分置式	欠測	-	コンボジット	コンボジット	コンボジット	コンボジット	-	コンボジット	コンボジット	コンボジット	-	コンボジット	欠測
7 処理場D	分置式	欠測	-	コンボジット	コンボジット	コンボジット	コンボジット	-	コンボジット	コンボジット	コンボジット	-	コンボジット	欠測
8 処理場E	オン・オフ	11時	12時	-	12時	11時	11時	12時	-	12時	12時	11時	-	14時
9 区間下流点①	淀川(右岸)	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
10 区間下流点②	淀川(左岸)	10時	-	9時	10時	10時	10時	10時	9時	-	10時	-	9時	10時
11 区間下流点③	淀川(左岸)	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
降水量(mm)	観測	1.5	0.0	-	0.0	0.0	0.0	74.0	-	0.0	6.5	0.0	-	0.0
※	観測	6.0	0.0	-	0.0	0.0	1.5	15.5	-	0.0	6.5	0.0	-	0.0
※	観測	4.0	0.0	-	0.0	14.0	6.0	0.0	-	17.5	0.0	0.0	-	0.0
※	観測	7.0	0.0	-	0.0	0.0	17.0	0.0	-	0.0	6.5	0.0	-	0.0

※ 観測日 2009年10月7日から2010年1月5日
 ※ 京都府の気象台(35.01°N, 135.732°E)の観測値
 ※ 調査日の午前12時から調査日の午前12時までの降水量の総和

採水方法は、下水処理場C、Dについてはコンボジット採水とし、その他の採水地点についてはスポット採水とした。コンボジット採水は、調査日前日の9時から調査日の9時までの計24時間のコンボジットであり、スポット採水は表2に示した時刻で採水を行っている。

3. 結果と考察

(1) 測定結果

a) 濃度

採水地点を、1.処理場A,B,C,D,2.処理場E,3.区間上流点①,4.区間上流点②,5.区間上流点③,6.区間下流点(枚方大橋)の6つに分類し、計24回の調査の測定濃度の平均値と標準偏差を図3に示した。また、回収率を表3に示した。処理場A,B,C,Dは運転条件や人由来排水の混入率などの条件が異なるが、本稿ではこれら4つの処理場をまとめて評価することで、より一般性のあるマクロな視点で議論を行うこととした。

表3 医薬品類の回収率の平均値

採水地点	分類	70~130	>130	<70
1	49物質	82.6(15.6)	Salbutamol(40%), Nicotiazin(30%), Novobiocin(12%)	Lincomycin(48%), Norfloxacin(48%), Nicotiazin(48%), Ampicillin(39%), Salbutamol(31%), Novobiocin(28%)
2	48物質	-	Enrofloxacin(44%), Levofloxacin(44%), Nicotiazin(43%), Ampicillin(42%), Ciprofloxacin(28%), Norfloxacin(27%), Salbutamol(12%), Novobiocin(11%)	Levofloxacin(49%), Atazidol(48%), Nicotiazin(47%), Ciprofloxacin(45%), Ampicillin(40%), Norfloxacin(28%), Nicotiazin(12%), Salbutamol(12%)
3	44物質	-	Nicotiazin(44%), Ampicillin(42%), Acetaminophen(36%), Enrofloxacin(33%), Ciprofloxacin(31%), Levofloxacin(29%), Salbutamol(12%), Novobiocin(12%)	Levofloxacin(48%), Nicotiazin(44%), Ciprofloxacin(47%), Ampicillin(40%), Norfloxacin(28%)
4	48物質	-	Salbutamol(16%), Novobiocin(12%)	-
5	48物質	-	-	-
6	48物質	-	-	-

表3から、どの地点においても、対象とした61物質のうち45物質程度の物質は回収率が70~130%の良好な値を示しているが、SalbutamolやNovobiocinは全地点で回収率が50%を下回る低い値を示していることが分かる。

図3から、下水処理場放流水より、外用薬のCrotamiton(1035ng/L)、精神神経剤のSulpiride(864ng/L)、

抗生物質のClarithromycin(517ng/L)などの物質が高い濃度で検出されたことが分かる。オゾン処理を施している処理場Eでは、処理場A,B,C,Dと比較してほとんどの物質で濃度が大幅に低下しており、オゾン処理の有効性が示唆された。区間上流点①は、調査区間の上流にある下水処理場などの負荷源の影響を受けているが、多くの物質では処理場A,B,C,Dと比較して濃度は大幅に低下していることから、河川水による希釈効果や河川流下過程での分解・吸着などのメカニズムが寄与していると考えられる。しかし、区間上流点①ではOxytetracyclineが、区間上流点②ではTiamulinが、区間上流点③ではThiamphenicol, Sulfamonomethoxin, Lincomycin, Tiamulinの4物質が、処理場A,B,C,Dを大きく上回る濃度で検出された。これらの物質は全て、動物用医薬品としても使用されている物質であることから、畜産場が負荷源となっていることが原因の1つとして考えられる。また、地域によってこれら医薬品類の使用量や処理場における除去特性が異なっていて、このことが原因となっている可能性も考えられる。

次に、図3に示した処理場A,B,C,Dの放流水中医薬品類濃度の平均値(α_1)と関西圏の5箇所の下水処理場(いずれもリンあるいは窒素除去を目的とした高度処理を行っている)の放流水中医薬品類濃度⁹⁾の検出濃度の範囲(β_1)との比較を行ったところ、対象物質が一致した59物質のうち、49物質は α_1 が β_1 に含まれたが、Acetaminophen, Caffeine, Furosemide, Indomethacin, Ketoprofen, Ofloxacin, QCA, Trimethoprim, Tylosinの9物質は α_1 が β_1 の最大値よりも高い値を示した。特に、Caffeine, Ofloxacin, QCA, Tylosinの4物質は α_1 が β_1 の最大値の2倍以上の値を示した。また、Primidoneは α_1 が β_1 の最小値よりもやや低い値を示した。これらの違いは、

対象とした処理場の違いによるものか、もしくは、本研究で秋季から春季にかけての変化を詳細に追っていることによるものであると考えられる。次に、図3に示した区間上流点3地点と区間下流点の計4地点の医薬品類濃度 (α_2) と日本の主要河川37河川の医薬品類濃度¹⁾の検出濃度の範囲 (β_2) との比較を行ったところ、対象物質が一致した8物質に関して、4地点の α_2 が全て β_2 に含まれた。

b) 負荷量

次に、測定濃度に下水処理場からの放流量や河川の流量をかけ合わせ、下水処理場の放流負荷量と区間上流点の通過負荷量を算出した。そして、算出された負荷量を用いて調査区間に流入する医薬品類の負荷量の寄与率を算出した(図4)。調査区間は下水道普及率が高く、調査区間に流入する負荷量は下水処理場と区間上流点大部分を占めると考えられる。また、負荷量は24回行った

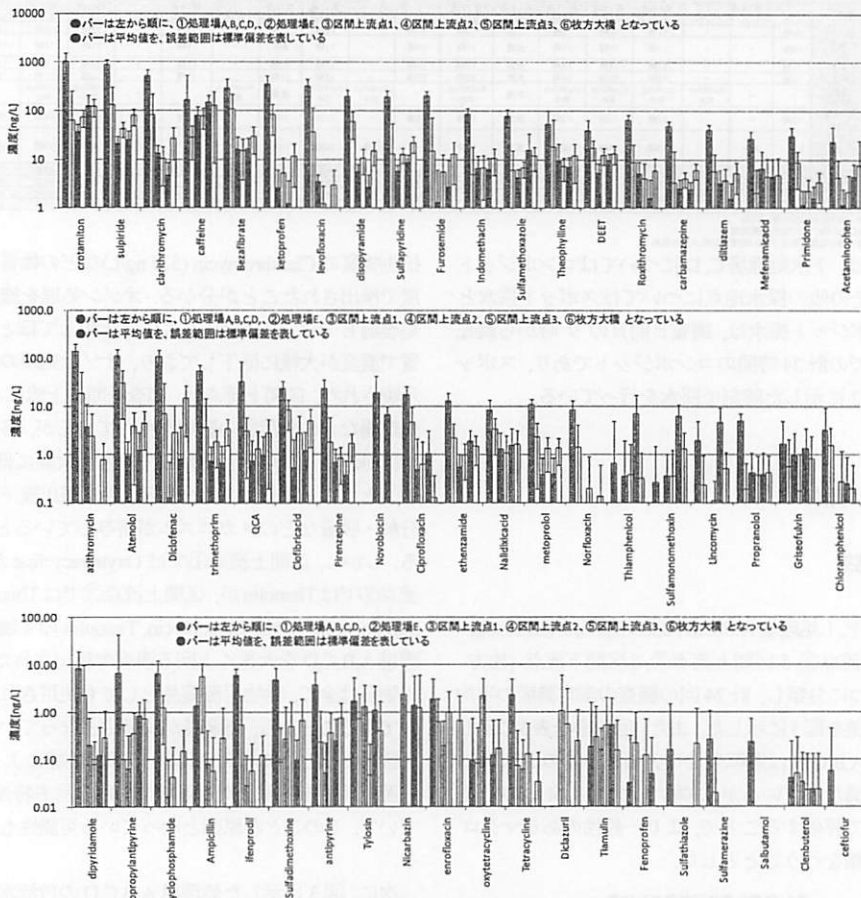


図3 医薬品類の測定濃度の平均値と標準偏差

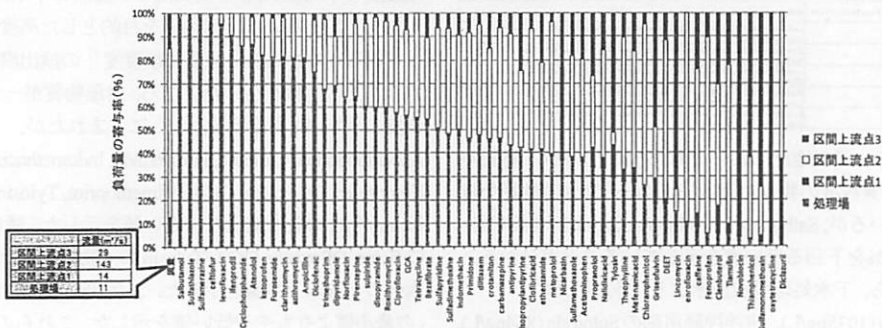


図4 調査区間に流入する医薬品類の負荷量の寄与率

調査の平均値を用いており、図4に示す処理場は、下水処理場5地点の放流負荷量の総和である。

図4から、流量の寄与率は10%にも満たない下水処理場であるが、多くの医薬品類について調査区間に流入する負荷量の寄与は大きいことが分かる。

(2) 濃度と負荷の変動傾向

a) 処理場 A,B,C,D

次に、調査を行った10月から3月までの6ヶ月間における医薬品類の濃度と負荷量の変動について考察を行う。まず、処理場A,B,C,Dの処理水中に含まれる医薬品類濃度の変動について把握を行うため、24回の調査で得られた測定濃度の変動係数を算出した ($n=4$ 地点 $\times$ 24回=96)。変動係数の算出にあたっては、処理場ごとの濃度の違いによる影響を排除するため、処理場ごとに算出した平均化濃度を用いた。各物質について得られた変動係数を図5に示す。なお、低濃度の物質は分析過程における変動などにより測定結果が変動しやすいと考えられたため、図5では測定濃度の最大値が30ng/L以上の物質を中心に示している。また、図5に示した35物質のうち、6物質をピックアップし、調査期間における平均化濃度の推移を示した(図6)。

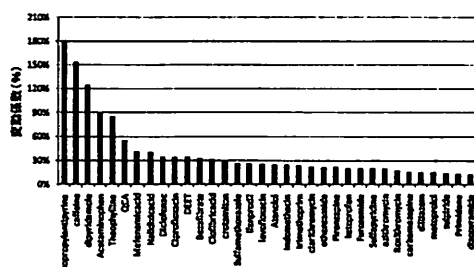


図5 調査期間における医薬品類濃度の変動係数
(処理場A,B,C,D:n=96)

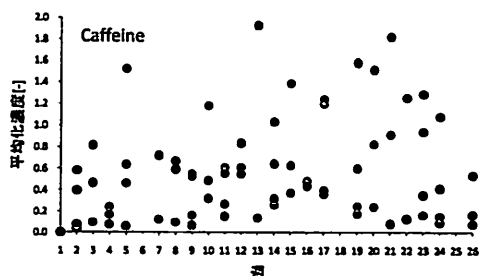
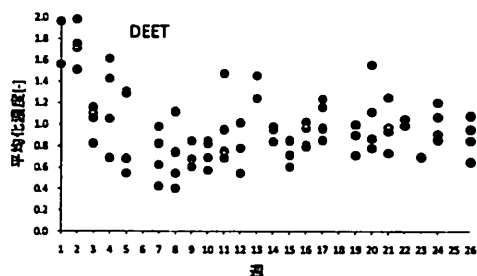
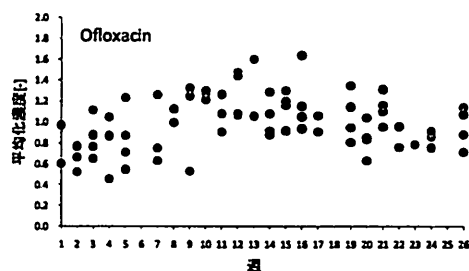
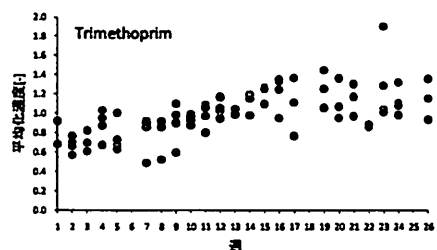
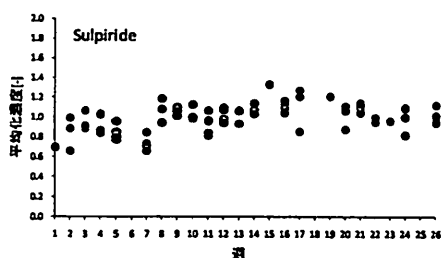


図6 調査期間における医薬品類の平均化濃度の推移
(処理場A,B,C,D:n=96)

図5に示した34物質のうち、21物質は変動係数が30%を下回っており、調査期間中の濃度の変動は小さいが、6物質は変動係数が50%を上回っており、調査期間中に濃度が大きく変動していた。

そこで、これら34物質を平均化濃度の調査期間中の推移傾向により以下の5つに分類した(表4)。なお、括弧内の数値は図5に示した調査期間内の変動係数である。

- 分類1. Sulpiride (15%), Disopyramide(13%) のように濃度の推移が調査期間内でほぼ横ばいである物質
 分類2. Trimethoprim (24%), Ofloxacin(26%) のように濃度が秋季から冬季にかけて2倍程度に上昇している物質
 分類3. DEET (34%) のように濃度が秋季から冬季にかけて1/2倍程度に減少している物質
 分類4. Caffeine (153%) のように濃度の変動が大きく濃度の推移に傾向が見られない物質
 分類5. 1~4のいずれにも該当しない物質

表4 医薬品類の平均化濃度の調査期間における推移傾向による分類

分類	該当する医薬品類(濃度)	物質数
1	Disopyramide(13%), Primidone(14%), Sulpiride (15%), Metoprolol(15%), Diltiazem(16%), Carbamazepine(16%), Sulfapyridine(21%), Ethenzamide(22%)	8
2	Flunitrazepam(22%), Trimethoprim (24%), Atenolol(25%), Ofloxacin(26%), Ciprofloxacin(34%)	5
3	Sulfamethoxazole(26%), DEET (34%), Mefenamicacid (41%)	3
4	Isopropylantipyrene(181%), Caffeine(153%), Dipyrindamole(124%), Acetaminophen(80%), Theophylline(85%), QCA(55%)	6
5	その他	12

※括弧内の数値は調査期間における平均化濃度の変動係数である

分類2で濃度が上昇した要因としては、冬季に使用量が増加した、冬季に下水の水温が低下して生物反応槽での除去率が低下したなどが考えられる。

分類3で濃度が減少した要因としては、DEETに関しては殺虫剤として使用されていることから、冬季に使用量が減少したことが原因として考えられる。

分類4に関して、下水処理場の入口(流入水)と出口(放流水)における秋季から春季の変動を把握した研究により、Isopropylantipyrene と QCA に関しては入口における変動、すなわち使用量の変動が、Caffeine, Theophylline, Acetaminophen, Dipyrindamole に関しては除去率の変動が要因となっていることが示唆された⁹⁾。そこで次に、処理場Aに関して、Caffeine, Theophylline, Acetaminophen, Dipyrindamole の平均化濃度の推移を示した(図7)。ここから、これら4物質は、第8週と第12週に濃度が上昇しており、濃度の変動傾向が類似していることが分かる。これら4物質は、下水処理場での除去率が非常に高いという点では性質が一致している⁹⁾が、用途は異なる物質であるため使用量の変動は必ずしも一致しないと考えられる。ここから、何らかの原因で一時的に処理レベルが

低下したために、通常の処理レベルでは高い除去率を示すこれら4物質に影響が大きく現れたと考えられる。これらのことから、下水処理場放流水中のCaffeine, Theophylline, Acetaminophen, Dipyrindamole の濃度の変動は、除去率の一時的な変動が原因であることが示唆された。

次に、調査期間における処理場A,B,C,Dからの放流負荷量について、濃度と同様の方法で、変動係数を算出した(図8)。放流負荷量についても、濃度と同様の結果が得られた。これは、調査日による下水処理場の放流水量の変化が小さいためであると考えられる。

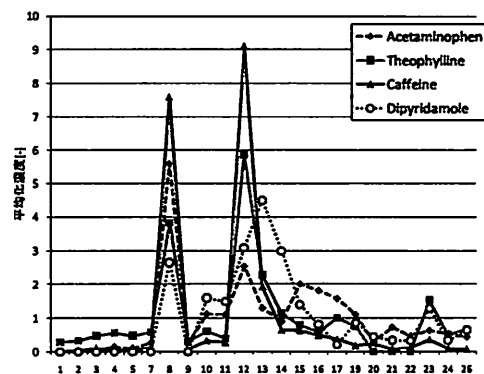


図7 調査期間におけるCaffeine等4物質の平均化濃度の推移(処理場A)

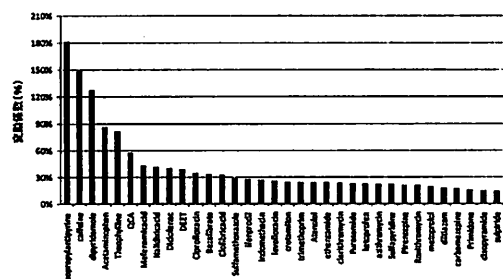


図8 調査期間における医薬品類放流負荷量の変動係数(処理場A,B,C,D:n=96)

b) 区間上流点

a) と同様の方法で、区間上流点1,2,3について、調査期間における濃度と通過負荷量の変動傾向を把握した。

まず、区間上流点1,2,3のそれぞれについて、測定濃度の変動係数(n=24)を算出し、測定濃度の最大値が30ng/L以上の物質を図9に示した。次に、これらの物質について通過負荷量の変動係数を算出した(図10)。また、区間上流点1,2,3におけるSulpirideの濃度の推移を図11に、通過負荷量の推移を図12に示した。

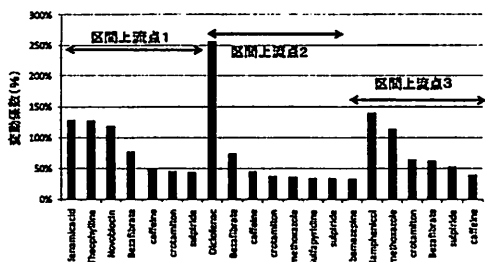


図9 調査期間における医薬品類濃度の変動係数
(区間上流点1,2,3)

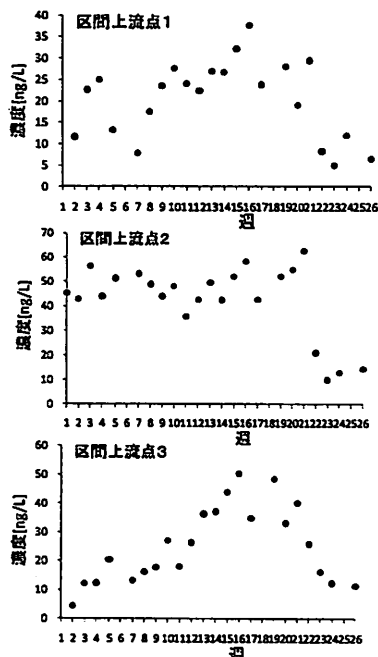


図11 調査期間におけるSulpirideの濃度の推移
(上から順に区間上流点1,2,3)

図 9, 10 から、濃度の変動係数は全物質について 30% 以上の高い値を示しているが、通過負荷量の変動係数は濃度の変動係数よりも低い値をとる傾向にあり、区間上流点②では Sulpiride (14%), Sulfapyridine (18%) など 5 物質が 30% を下回っていることが分かる。

そこで、図9, 10に示した物質の濃度と通過負荷量を調査期間中の推移傾向により以下の5つに分類した(表5)。

分類Ⅰ 秋季から春季にかけてほぼ横ばいである

分類Ⅱ 秋季から春季にかけて増加している

分類Ⅲ 秋季から春季にかけて減少している

分類Ⅳ 秋季から冬季にかけてはほぼ横ばいであるが、春季に増加している

分類Ⅴ 秋季から冬季にかけてはほぼ横ばいであるが、春季に減少している

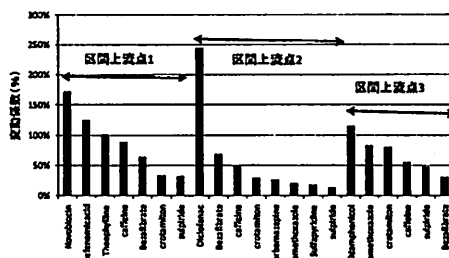


図10 調査期間における医薬品類負荷量の変動係数
(区間上流点1,2,3)

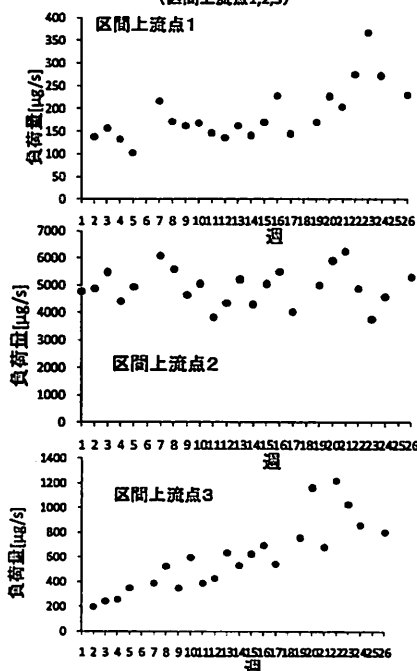


図12 調査期間におけるSulpirideの負荷量の推移
(上から順に区間上流点1,2,3)

分類Ⅵ 秋季から冬季にかけて上昇した後、冬季から春季にかけて減少している

分類Ⅶ I～Ⅴのいずれにも該当していない

表5 医薬品類の温度と負荷量の調査期間における推移傾向による分類

		I		II		III		IV		V		VI	
I 上置点 位置	位置			Metamorphic acid	-					Subsidiary Oxigenation	Caffeine	Oxigenation	Thiosulfate
	位置			Metamorphic acid	-					Thiosulfate	Oxigenation	Thiosulfate	Thiosulfate
II 上置点 位置	位置			Metamorphic acid	-					Subsidiary Oxigenation	Caffeine	Oxigenation	Thiosulfate
	位置			Metamorphic acid	-					Thiosulfate	Oxigenation	Thiosulfate	Thiosulfate
III 上置点 位置	位置			Metamorphic acid	-					Subsidiary Oxigenation	Caffeine	Oxigenation	Thiosulfate
	位置			Metamorphic acid	-					Thiosulfate	Oxigenation	Thiosulfate	Thiosulfate
IV 上置点 位置	位置			Metamorphic acid	-					Subsidiary Oxigenation	Caffeine	Oxigenation	Thiosulfate
	位置			Metamorphic acid	-					Thiosulfate	Oxigenation	Thiosulfate	Thiosulfate
V 上置点 位置	位置			Metamorphic acid	-					Subsidiary Oxigenation	Caffeine	Oxigenation	Thiosulfate
	位置			Metamorphic acid	-					Thiosulfate	Oxigenation	Thiosulfate	Thiosulfate
VI 上置点 位置	位置			Metamorphic acid	-					Subsidiary Oxigenation	Caffeine	Oxigenation	Thiosulfate
	位置			Metamorphic acid	-					Thiosulfate	Oxigenation	Thiosulfate	Thiosulfate

表5から、以下のようなことが分かる。

- 1 Caffeine の通過負荷量は区間上流点の3地点全てにおいて秋季から春季にかけて増加している
- 2 Mefenamic acid の通過負荷量は区間上流点①で秋季から春季にかけて減少している
- 3 Sulpiride の通過負荷量は区間上流点①と②では秋季から春季にかけて安定しているが、区間上流点③では秋季から春季にかけて増加している
- 4 区間上流点①もしくは②において、Sulfapyridine, Sulfamethoxazole, Carbamazepine, Crotamiton の通過負荷量は秋季から春季にかけて安定しているが、濃度は安定しておらずVもしくはVIの傾向で変動している

1～3に関して、河川において通過負荷量の変動する要因としては、負荷源からの排出負荷量の変動と河川中での動態の変動が考えられる。区間上流点③では、区間上流点①と②で安定であった Sulpiride の通過負荷量が増大していたが、Sulpiride は環境中で安定であると報告されている⁷⁾ことから、区間上流点③の上流には①や②とは異なった排出傾向を示す負荷源が存在することが示唆された。また、3、4から、区間上流点①と②に関しては、Sulpiride, Sulfapyridine, Sulfamethoxazole, Carbamazepine, Crotamiton の濃度の変動は河川流量の変動が原因となっていることが示唆された。また、このことから、通過負荷量が安定している物質、すなわち負荷源からの排出負荷量と河川中での動態が季節により変化しない物質に関しては、濃度の推移はこれら5物質と同様の傾向を示すことが示唆される。

c) 処理場 E

a,bと同様の方法で処理場Eについて、濃度と放流負荷量の変動係数 ($n=24$) を算出したところ、濃度の変動係数の中央値が205%となり、濃度、負荷量共に全物質について変動係数が大きな値を示した。処理場Eはオゾン処理を行っているが、オゾン処理装置を停止している日もあり、オゾン注入率が大きく変化したことが原因であると考えられた。そこで、オゾン注入率と放流水中の濃度との相関 ($n=24$) をとったところ、多くの物質で負の相関が得られた。Sulpiride におけるオゾン注入率と放流水中の濃度との関係を図13に示す。ここから、オゾン注入率によって除去率が異なることが示唆された。図13によると、オゾン注入率が3mg/L～5mg/Lの範囲では、相関は得られていないが、これは接触時間などの他の因子が調査日によって異なっているためであると考えられる。

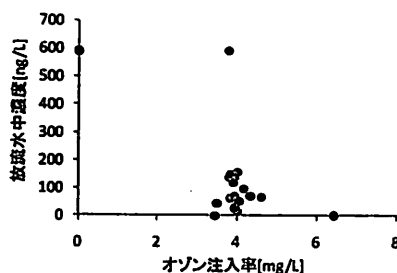


図13 処理場Eのオゾン注入率と放流水中に含まれるSulpirideの濃度

4. まとめと今後の課題

本研究では、淀川水系において医薬品類の存在実態の季節変動を把握することを目的とし、10月から3月までの6ヶ月間に渡り高頻度で流域調査を行った ($n=24$)。これにより得られた知見を以下に記す。

(1) 測定結果のまとめ

下水処理場の放流水から、外用医薬品のCrotamiton (1035ng/L)などの医薬品類が高い濃度で検出された。オゾン処理を施している下水処理場の放流水中に含まれる医薬品類の濃度は低く、オゾン処理の有効性が示唆された。区間上流点からOxytetracyclineなどの動物にも使用されている医薬品類5物質が下水処理水よりも高い濃度で検出された。また、下水処理場と区間上流点を対象に調査区間に流入する医薬品類の負荷量の寄与率を把握したところ、多くの医薬品類について、流量の寄与率が10%にも満たない下水処理場の寄与が大きいことが分かった。

(2) 濃度と負荷の変動傾向のまとめ

a) 処理場A,B,C,D

分析過程における変動が小さいと考えられた34物質のうち、Disopyramide (13%), Sulpiride (15%)など21物質が調査期間内における濃度の変動係数が30%を下回っていた。また、放流負荷量も濃度と同様の傾向を示し、変動係数の小さい物質が多かった。ここから、対象とした医薬品類に関して、調査期間において下水処理場放流水中の濃度、放流負荷量は安定している物質が多いことが示唆された。ただ、一方で、Trimethoprim, Levofloxacinなどのように秋季から冬季にかけて濃度が2倍程度に上昇した物質 (5物質) やDEETのように秋季から冬季にかけて濃度が1/2倍程度に減少した物質 (3物質) も見られた。また、Caffeineなど6物質は調査期間における濃度の変動が非常に大きかったが、Caffeine, Theophylline, Acetaminophen, dipyrindamoleに関しては処理レベルの一時的な変動が、IsopropylantipyrineとQCAに関しては使用量の変動が、そ

れぞれ放流水中濃度変動の原因になっていることが示唆された。

b) 区間上流点

濃度の変動係数は全 21 物質について 30%以上の高い値を示したが、通過負荷量の変動係数は濃度の変動係数より低い値をとる傾向にあり、区間上流点②では、Sulpiride (14%), Sulfapyridine (18%) など 5 物質が 30%を下回った。これは、河川流量が変動していることが要因であると考えられた。また、区間上流点の 3 地点全てにおける Caffeine の通過負荷量と区間上流点③における Sulpiride の通過負荷量が秋季から春季にかけて増加しており、区間上流点①における Mefenamic acid の通過負荷量が秋季から春季にかけて減少していた。また、区間上流点①もしくは②における、Sulpiride, Sulfapyridine, Sulfamethoxazole, Carbamazepine, Crotamiton の通過負荷量は秋季から春季にかけて安定していた。また、区間上流点③の上流には①や②とは異なった排出傾向を示す負荷源が存在することが示唆された。

c) 処理場 E

多くの物質でオゾン注入率と放流水中の濃度とに負の相関が得られ、オゾン処理の有効性が示された。

(3) 今後の課題

今後の課題を以下に記す。

- ・医薬品類の月別使用量を把握し、本稿の結果と照らし合わせる
- ・区間上流点の上流域に関して流域情報の把握を行い、通過負荷量が増加していた物質に対して原因の考察を行う
- ・下水処理場における除去率の一時的変動が示唆されたが、これに関して一般水質項目などの観点から原因の考察を行う
- ・A,B,C,D 4つの下水処理場についてまとめて評価を行っていることに対する妥当性を評価する
- ・年間を通して季節変動の把握を行う
- ・冬季の季節変動の再現性を確認する
- ・濃度の日内変動について把握を行い、スポット採水の妥当性についても評価を行う

- ・存在実態の季節変動が把握できれば、その結果を利用して季節変動を考慮した原単位の把握を行う

謝辞:本研究を行うにあたり、淀川河川事務所様、近畿建設協会様、京都府流域下水道事務所様、京都市上下水道局様にご協力頂きましたので感謝の意を表します。また、科学技術振興機構、国土交通省、日本学術振興会、琵琶湖・淀川水質保全機構から支援を受けましたので感謝の意を表します。

参考文献

- 1) Norihide N et al. (2008) Evaluation of Pharmaceuticals and Personal Care Products as Water-soluble Molecular Markers of Sewage. *Environmental Science and Technology* 42: 6347-6353
- 2) Veldhoen, N. et al., The bactericidal agent triclosan modulates thyroid hormone-associated gene expression and disrupts postembryonic anuran development, *Aquat. Toxicol.*, 80, 217-227
- 3) Chitnis, V. et al. (2004) Bacterial Population Changes in Hospital Effluent Treatment Plant in Central India. *Water Research*, 38, 441-447
- 4) 梅澤喜夫 (1998) 分析化学, 岩波書店, 14-18
- 5) 花本ら (2010) 淀川水系における医薬品類の雨天時存在実態の把握, 下水道研究発表会講演集, 47, 293-295
- 6) 成宮ら (2009) 下水処理過程における医薬品類の存在実態と挙動, 環境工学研究論文集, 46, 175-186
- 7) 花本ら (2009) 淀川水系における医薬品類の動態に関する検討, 京都大学環境衛生工学会シンポジウム講演集, 23, 120-123
- 8) 花本ら (2010) 下水に含まれる医薬品類に関する研究, 京都大学環境衛生工学会シンポジウム講演集, 24, 140-143

(2010.5.21 受付)

Occurrence of Pharmaceuticals and Personal Care Products at Yodo River System

Seiya HANAMOTO, Norihide NAKADA, Naoyuki YAMASHITA, Hiroaki TANAKA
Research Center for Environmental Quality Management, Kyoto University

The objective of this study is to identify seasonal variation of occurrence of PPCPs at Yodo River System. River surveys were conducted from October to March at high frequency (once a week). Concentrations of 8 PPCPs (for example Sulpiride) in the effluent of WWTPs are stable from October to March, but that of 5 PPCPs (for example Trimethoprim) in the effluent of WWTPs doubled in the winter season (compared with concentrations detected in October). Loads of Sulpiride and Caffeine in a river (upper limit point in the survey area) increased in five times (compared with loads calculated in October). Concentrations of 5 PPCPs (for example Caffeine) in the effluent of WWTPs increased suddenly and for a short time. The reason of this is suggested that quality of treatment became poor temporary.