

## B-2 下水処理場における医薬品の動態

京都大学流域圏総合環境質研究センター ○小林義和 田中宏明

田中周平 藤井滋穂

ムラタ計測器サービス株式会社

小西千絵 宝輪勲

## 1.はじめに

近年、水環境における Pharmaceuticals and Personal Care Products (PPCPs)への関心が高まっている。PPCPsとは、医薬品や化粧品など我々が日常使用している物質のことであり、水環境中へコンスタントに排出されるという特徴を持った最近注目されている微量汚染物質である。医薬品は生分解性が低く、かつ高極性である物質が多いと考えられ、水環境中に多量に残留していることが懸念される。特に病院や家庭で使用された医薬品に関してはその多くが下水処理場を経由して排出されるため、河川や湖沼・海域等の放流先での生態系への影響が懸念される。そのような背景を受け欧米では近年医薬品を対象とした研究が数多く行われ下水処理場における医薬品の汚染実態に関して少しずつ明らかになっている<sup>1)</sup>が、日本ではほとんど明らかになっていないのが現状である。

そこで本研究では、21の医薬品およびその代謝物を対象として7箇所の下水処理場での放流水中の濃度を調査した。また、同物質について下水処理場での動態を明らかにするため、下水処理場の各処理プロセスでの24時間調査を行った。

## 2. 調査および分析方法

京都府内にある7箇所の下水処理場の計8地点の放流口で採水を行った。ただし、今回の調査では採水は各地点1回のみとし時間的な変動は考慮しなかった。採水は2005年3月16日に実施した。

対象物質は表1に示す計21物質とした。分析方法としてはまず試料500mLをろ過した後、Oasis HLB (Waters) を用いて固相抽出を行った。ろ紙上の残渣はメタノールを加えて超音波抽出を行い、固相抽出後の溶出液に加えた。この混合液を濃縮した後アセトニトリル/水=1:4で1mLに定容し、LC-MS/MSにて測定した。

## 3. 結果および考察

8地点の放流水試料を分析した結果、スルファジミジン、クレンブテロール、スルファモノメトキシン、セフオチル、ベンジルペニシリンは最大でも1地点しか検出されず、ほとんど不検出であった。それ以外の16物質は8地点の試料のうち7地点以上で検出された。それら16物質の濃度の最大値、75%値、25%値、最小値を図1に示した。まず、16物質全体では数ng/L～数μg/Lの濃度で検出された。特にクロタミトン、ジソピラミド、ケトプロフェンは中央値が100ng/L以上であり、今回対象とした物質の中では比較的高濃度で検出された。それ以外の物質では中央値が10～100ng/Lの物質が9種類、10ng/L以下の物質が4種類であった。また、それぞれの下水処理場での濃度差は小さく、一部の物質を除いて1オーダー以上の濃度差は無かった。薬剤耐性細菌の出現や生物処理への影響が懸念されている抗生物質に関しては、本調査では7種類

表1 対象物質

分類	物質名
解熱・鎮痛薬	アンチビリン、エテンザミド、イソプロピルアンチビリン、ケトプロフェン
抗癌剤	シクロホスフテミド
脳循環改善薬	イフェンプロジル
高脂血症用薬	クロフィリック酸(クロフィラートの代謝物)
抗不整脈薬	ジソピラミド
β遮断薬	メプロロール、プロプロノロール
気管支拡張薬	クレンブテロール
抗てんかん薬	カルバマゼピン
鎮痙薬	クロタミトン
昆虫忌避剤	N,N-ジエチル-m-トルアミド
抗生物質	ベンジルペニシリン、セフオチル、スルファジミジン、スルファジメトキシン、スルファメトキサゾール、スルファモノメトキシン、2-キノキサリンカルボン酸(カルバドックスの代謝物)

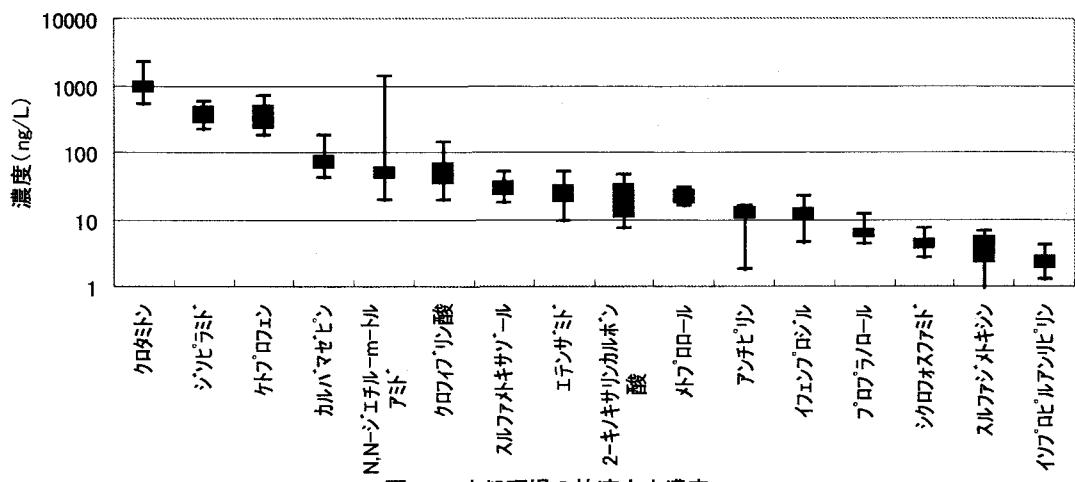


図1. 下水処理場の放流水濃度

の抗生物質を対象としており、そのうち3物質が検出され、中でもスルファメトキサゾールが高濃度で検出された。

Shinohara ら<sup>2)</sup>は東京都の下水処理場で数十種類の医薬品を対象に二次処理水中の濃度を調査しているが、それによるとクロタミドが 245~987 ng/L、ケトプロフェンが 68~219 ng/L と報告されており、これらの値は本調査での検出濃度とほぼ同じオーダーであった。メトプロロール、プロプラノロールは H. Shinohara らの報告では検出下限値未満 (<50 ng/L) であったが、本調査では数 ng/L~数十 ng/L で検出され、処理水中での存在を確認することが出来た。

我々はこれまでの研究<sup>3)</sup>においてレボフロキサシン、クラリスロマイシン、アジスロマイシンの3つのヒト用抗生物質を対象として数箇所の下水処理場において24時間調査を行ってきた。その結果、これらの物質の下水処理における除去率は最大でも60%程度であり、中には下水処理によって濃度の上昇するものもあつた。また、曝気槽での顕著な減少は認められず、生物処理によってあまり除去されないことが示唆された。このように医薬品は従来の生物処理中心の下水処理ではあまり除去されずに環境中に流出している可能性が考えられるため、今回対象とした21物質についても下水処理場での動態や除去効果を明らかにする必要がある。その課題に関してはこれまでに下水処理場での24時間調査を行っており、現在分析中である。

#### 4. まとめ

本研究では、21種類の医薬品について京都府内の下水処理場で放流水の汚染実態を明らかにした。その結果、21物質中16物質が8つの試料のうち7つ以上で検出され、その濃度は数 ng/L~数 μg/L であった。今後は下水処理場での動態や各物質の除去特性に関してさらに明らかにしていく必要がある。

**謝辞** 本研究にご協力頂いた京都大学、(独)土木研究所、国土環境(株)、帝人エコサイエンス(株)をはじめとする関係者の方々に大変感謝致します。

**参考文献** 1) Thomas Heberer (2002); Occurrence, fate, and removal of pharmaceutical residues in the aquatic environment: A review of recent research data , Toxicology Letters , 131. pp.5-17

2) H. Shinohara, T. Tanishima, S. Kojima, S. Managaki, H. Takeda, N. Nakada, H. Tanaka, F. Nakajima, H. Furumai (2004); Water-soluble organic micro-pollutants in municipal wastewater and their removal during advanced treatment ; Proceedings of 2nd International Symposium on Southeast Asian Water Environment, Department of Urban Engineering and Research Center for Water, pp.356-363

3) 小林義和, 田中宏明, 八十島誠, 小森行也, 鈴木穣 (2005); 下水処理場における人用抗生物質の動態, 第42回下水道研究発表会要旨集, pp.558-560.