

特集：公共事業に関わる地盤・水質汚染に対する新たな取組み

医薬品類の都市域水環境中における実態

小森行也* 鈴木 穰**

1. はじめに

近年、新たな環境汚染物質として注目を集めている医薬品は、人の病気治療・予防に用いられる他、動物の病気治療・予防に対しても用いられている。人が服用する医薬品は、体内で代謝されたのち排泄物とともに排出され、主に下水道を経由して水環境に排出されると考えられるが、下水道未整備区域にあつては、単独処理浄化槽あるいは合併処理浄化槽等を経由し河川等の水環境に排出される。これら医薬品は、環境ホルモン同様、低濃度での水生生物への影響が懸念されている。

河川等の水環境における存在実態については既に多くの調査・研究報告^{1~4)}がみられるが、一級河川など比較的大きな河川を調査対象としている場合が多い。そこで本研究⁵⁾では、流域の生活排水の処理状況が異なる都市域の5つの小河川を対象とし、医薬品の存在実態を把握することにより、集水域の生活排水の処理状況と医薬品存在濃度の関係を明らかにするとともに、その存在濃度の生態リスク初期評価を試みた。

2. 調査方法

2.1 調査地点

調査地点は、千葉県に位置する手賀沼に流入する大津川の5つの支川とした(図-1)。大津川は、河川延長約12.5km、流域面積約37km²の小河川である。大津川流域の柏市、松戸市、鎌ヶ谷市から入手した下水道整備人口および生活排水処理人口から、各調査地点集水域の生活排水処理の人口を整理し図-2に示した。大津川流域の下水道整備状況は下流域、中流域、上流域で異なっており、各調査地点の流域人口に占める下水道人口の割合は、2007年3月末の集計(一部推計)でSt.①約97%、St.②約91%、St.③約83%、St.④約47%、St.⑤0%である。大津川流域の生活排水は、図-3

に示す経路をたどり、近接水路へ放流、又はし尿処理場、下水処理場を経由し他流域の河川等へ放流される。



図-1 調査点

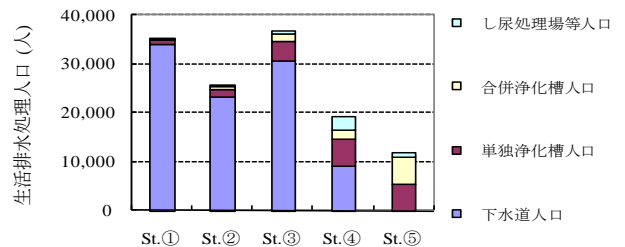


図-2 各調査地点集水域の生活排水処理人口

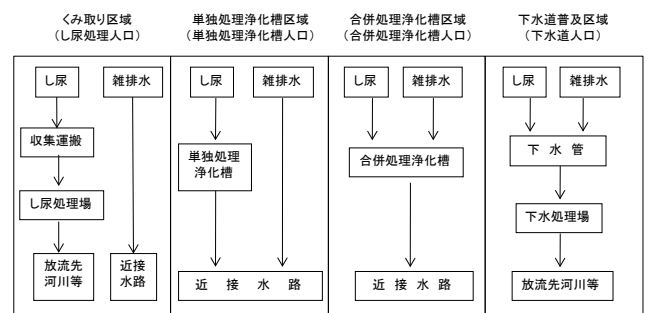


図-3 大津川流域の生活排水の排出経路

2.2 試料採取

試料採取は、2007年1月29日に実施した。医薬品分析用の採取試料は、小西ら⁶⁾の報告を参考にアスコルビン酸とNa₂EDTAを各約1g/Lとなるように加え、分析まで冷蔵保存した。一般水質項目(DOC、NH₄-N、T-N、T-P)分析用の採取試料は、クーラーボックスに入れ冷却しながら分析所

Occurrence of Pharmaceuticals and Their Environmental Risk Assessment of Urban Streams Whose Basins Have Different Wastewater Treatment Conditions

に持ち帰った。また、試料採取時に多項目水質モニターを用い水温、pH、DOを測定した。

2.3 研究対象医薬品等

研究対象医薬品等は、解熱鎮痛消炎剤、利尿剤、神経系用剤、抗生物質、不整脈用剤、高脂血症用剤、抗不安剤、強心剤、抗てんかん剤、止血剤、混合ホルモン、気管支拡張剤、殺菌剤等の98物質とした。

2.4 分析方法

医薬品分析は、小西ら⁶⁾の方法に一部変更を加えた標準添加法³⁾又は、宝輪ら⁷⁾の方法に従った。また、一般水質項目としてDOC、NH₄-N、T-N、T-Pの分析を行った。分析方法は、JIS K 0102を参照した。

3. 調査結果と考察

3.1 一般水質項目

採水時に行った現場測定と一般水質項目の分析結果を図-4に示した。冬期の調査であり水温は11～13℃であった。pHは7.1～8.4であり、St.①とSt.②で少しアルカリ側の値を示した。DOはSt.①～St.③は9.3～15mg/Lを示していたがSt.④、St.⑤では3.4mg/L、2.3mg/Lであり、St.①～St.③に比べ低い値であった。DOC、NH₄-N、T-N、T-Pについてみると、どの項目もSt.①は最も低く、次にSt.②又はSt.③、St.④、St.⑤の順に高くなる傾向を示した。

DO、DOC、NH₄-N、T-N、T-Pの値からSt.①は人為汚染の影響が小さく、St.④、St.⑤は人為汚染の影響が大きくみられ、St.②、St.③はその中間の状況であることが分かる。下水道整備により生活排水の多くを調査流域外へ排出している地点では人為汚染の影響が小さく、生活排水の多くを未処理あるいは単独・合併処理浄化槽により処理している地点では人為汚染の影響が大きい傾向がみられ、生活排水の処理状況と強い関係がうかがえる。

3.2 医薬品等

研究対象とした98物質中、42物質がSt.①～St.⑤のいずれかの地点で定量下限値を超えて検出された。St.①では14物質、St.②では20物質、St.③では35物質、St.④では34物質、St.⑤では35物質が検出された。St.①、St.②では他の調査地点に比べ検出物質数が少なく検出濃度が低い、逆に

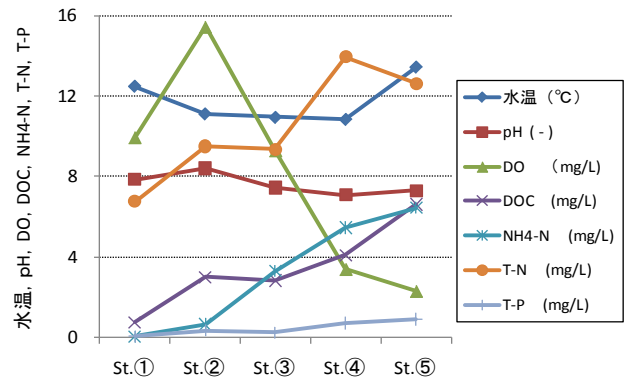


図-4 一般水質項目分析結果

St.③、St.④、St.⑤では他の調査地点に比べ検出物質数が多く検出濃度が高い結果となった。一般水質項目の結果において、人為汚染の影響が小さい地点で検出医薬品数が少なく検出濃度が低い、人為汚染の影響が大きい地点で検出医薬品数が多く、検出濃度が高い傾向がみられた。

St.①～St.⑤の全ての地点で定量下限値を超えて検出された医薬品について、既往文献⁴⁾の下水放流水濃度と比較した。河川水濃度/下水放流水濃度比とし図-5に示す。また、既往文献⁴⁾の利根川本川の存在濃度(最大値)も合わせて図-5に示す。St.①の医薬品濃度は、利根川河川水濃度に比べ同等或は低いレベル、St.②は同等或は少し高いレベルにあり、St.③～St.⑤は概ね高いレベルであった。

下水処理場放流水⁴⁾と比べた場合、下水処理場での除去率の高い解熱鎮痛消炎剤のアセトアミノフェン、イブプロフェン、強心剤のカフェインの3物質がSt.③、St.④、St.⑤において下水処理場

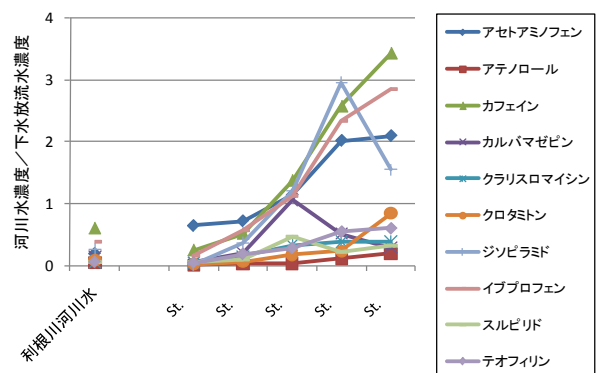


図-5 検出医薬品の下水放流水濃度との比較

放流水の濃度を超えた他は、下水処理場放流水を下回る濃度であった。また、St.④とSt.⑤では下水処理場放流水の濃度の2倍以上の値を示しており、未処理排水や処理レベルの低い排水による強い汚染がうかがえる。多くの物質について、下水処理水より濃度が低いことに関しては、土壌への吸着の可能性も含めて検討する必要がある。

3.3 生態リスク初期評価

既往文献の水生生物への生物影響試験結果を用い、環境省の化学物質の環境リスク初期評価ガイドライン（平成20年2月版）⁸⁾を参考に、生態リスク初期評価を試みた。通常、生態影響は、化学物質が環境中の生物に対して有害な影響を及ぼさないと予想される**予測無影響濃度（PNEC）***と**予測環境中濃度（PEC）***との比較により評価が行われるが、ここではPECに代え**環境中濃度（MEC）***としてSt.①～St.⑤のいずれかの地点で定量下限値を超えて検出された実測濃度を用いた。

PNECは、甲殻類のミジンコ（*Ceriodaphnia dubia*, *Daphnia magna*）を用いた慢性毒性試験による**無影響濃度（NOEC）***にアセスメント係数で除して求めることとし、NOECのデータが収集できた医薬品11物質について評価することとした。PNECの設定に当ってアセスメント係数は環境リスク初期評価ガイドライン⁸⁾に従い100を使用した。通常、生態リスクの判定は、安全側の評価を行う観点から高濃度側の実測値に基づき行われることから、ここでは検出された最大濃度をMECとしてMEC/PNECを求め表-1に示した。

評価を行った11物質中、8物質はMEC/PNECが0.1未満を示し、2物質が0.36、0.39、1物質が106を示した。環境省のガイドライン判定によれば、 $PEC/PNEC < 0.1$ は「現時点では作業は必要ないと考えられる。」、 $0.1 \leq PEC/PNEC < 1$ は「情報収集に努める必要があると考えられる。」、 $1 \leq PEC/PNEC$ は「詳細な評価を行う候補と考えられる。」としており、本評価においてもこれに準じて評価することとした。

MEC/PNECが0.36を示した抗てんかん剤のカルバマゼピン、0.39を示した解熱鎮痛消炎剤のアセトアミノフェンについては「情報収集に努める必要があると考えられる。」という判定に該当す

表-1 生態リスク初期評価結果

医薬品名	MEC/PNEC (環境中濃度/予測無影響濃度)
アセトアミノフェン	0.39
アテノロール	0.0038
カルバマゼピン	0.36
ジクロフェナック	0.008
イブプロフェン	0.011
インドメタシン	0.019
メフェナム酸	0.0073
オフロキサシン	0.001
プロプラノロール	0.047
スルファトキサゾール	0.092
トリクロサン	106

るため、他の生物への影響、モニタリングデータの充実等引き続き調査の必要性がある。また、MEC/PNECが106という非常に大きな値を示した殺菌剤のトリクロサンについては「詳細な評価を行う候補と考えられる。」という判定に該当することから、モニタリングデータの確認、調査流域での濃度変動等について今後更に調査を進める必要がある。以上のことから、生活排水の流入する小河川における医薬品濃度レベルは生態影響の懸念されるレベルで検出されている医薬品もあるため、引き続き更なる調査・研究が望まれる。

4. まとめ

本研究において、生活排水の処理状況が異なる区域の小河川における医薬品の存在実態を明らかにした。研究対象とした医薬品98物質中42物質が定量下限値を超えて検出された。下水道整備等により生活排水の流入割合が小さい河川では検出される医薬品数が少なく、その濃度も低い。一方、下水道等の整備の遅れから生活排水の流入割合が多い河川では検出される医薬品数が多く、その濃度も高い傾向を示すことが明らかとなった。

また、本調査で対象とした都市域の小河川での医薬品濃度レベルは、生活排水の流入割合が小さい河川では比較的大きな河川での報告値⁴⁾に比べ同等或は低いレベルであった。流入割合が多い河川では比較的大きな河川での報告値⁴⁾に比べ概ね高いレベルであったが、それらの濃度は下水処理場放流水での報告値に比べ低いレベルであった。しかし、下水処理による除去率の高いアセトアミノフェン、カフェイン、イブプロフェンの3物質

*土木用語解説：予測環境中濃度（PEC）、
環境中濃度（MEC）、
予測無影響濃度（PNEC）、
無影響濃度（NOEC）

が放流水の数倍の濃度で検出され、未処理あるいは処理レベルの低い排水による強い汚染がみられる地点があった。家庭などの排出源から河川に到る過程での土壌等への吸着等についても検討する必要がある。

甲殻類（ミジンコ）の慢性毒性試験結果のある医薬品（11物質）について生態リスク初期評価を試みたところ、8種の医薬品はMEC/PNECが0.1未満を示し、カルバマゼピン、アセトアミノフェンの2物質は0.36、0.39を示した。また、MEC/PNECが106という非常に大きな値を示した殺菌剤のトリクロサンについては、モニタリングデータの確認、調査流域での濃度変動等について今後更に調査を進める必要がある。

謝 辞

本研究を進めるに当たり、大津川流域の柏市、松戸市、鎌ヶ谷市の各市には下水道整備状況、生活排水処理状況について情報提供を頂いた。ここに記して感謝の意を表します。

参考文献

- 1) 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、水環境学会誌、27、pp.685～691、2004
- 2) 杉下寛樹、山下尚之、田中宏明、田中周平、藤井滋穂、宝輪勳、小西千絵：淀川流域の下水処理場放流水と支川における医薬品の存在実態、環境工学研究論文集、44、pp.307～312、2007
- 3) 小森行也、岡安祐司、鈴木穰：下水道未整備地域の小河川における医薬品の実態調査、学会誌「EICA」、12(2/3)、pp.37～44、2007
- 4) Nakada, N., Komori, K., Suzuki, Y., Konishi, C., Houwa, I. and Tanaka, H. Occurrence of 70 pharmaceutical and personal care products in Tone River basin in Japan, Water Science & Technology, 56, pp.133-140, 2007
- 5) 小森行也、鈴木穰：生活排水の処理状況が異なる都市域小河川における医薬品の存在実態と生態リスク初期評価、水環境学会誌、32(3)、pp.133～138、2009
- 6) 小西千絵、宝輪勳、中田典秀、小森行也、鈴木穰、田中宏明：水環境中医薬品のLC-MS/MSによる一斉分析法の検討、環境工学研究論文集、43、pp.73～82、2006

- 7) 宝輪勳、宮崎沙瀬、小西千絵、中田典秀、小森行也、田中宏明：GC-MSによる水環境中のPPCPs一斉分析法の基礎的検討、第16回環境化学討論会講演要旨集、pp.774～775、2007
- 8) 環境省化学物質の環境リスク初期評価ガイドライン、2008
<http://www.env.go.jp/chemi/risk>

検出主要医薬品一覧

医薬品名	薬効
アセトアミノフェン	解熱鎮痛消炎剤
アテノロール	不整脈用剤
カフェイン	強心剤
カルバマゼピン	止血剤
クラリスロマイシン	抗生物質
クロタミトン	鎮痛、鎮痒、収れん、消炎剤
ジクロフェナク	鎮痛、鎮痒、収れん、消炎剤
ジソピラミド	不整脈用剤
イブプロフェン	解熱鎮痛消炎剤
インドメタシン	解熱鎮痛消炎剤
メフェナム酸	解熱鎮痛消炎剤
オフロキサシン	合成抗菌剤
プロプラノロール	不整脈用剤
スルファメトキサゾール	合成抗菌剤
スルピリド	消化性潰瘍用剤
テオフィリン	気管支拡張剤
トリクロサン	殺菌剤

小森行也*



独立行政法人土木研究所
つくば中央研究所水環境
研究グループ水質チーム
総括主任研究員
Koya KOMORI

鈴木 穰**



独立行政法人土木研究所
つくば中央研究所材料地
盤研究グループ長（前
水環境研究グループ水質
チーム上席研究員）
Yutaka SUZUKI