

# 化学物質から市民の生活環境を守る下水道

小森行也\* 岡安祐司\*\* 鈴木 穰\*\*\* 南山瑞彦\*\*\*\*

## 1. はじめに

下水処理場は、生活排水、工場排水等を受け入れ、これらに含まれる有機物等の汚濁物質を除去・削減（一般的には生物処理）したのち河川へ戻している施設であり、河川への汚濁負荷削減に寄与している重要な施設である。下水処理場の流入下水には有機汚濁物質の他、微量の化学物質が含まれているが、近年、人・動物の排泄物中に由来する医薬品類の存在についての関心が高まっている。医薬品類の中には水生生物への影響が懸念される物質もあることから、下水処理における医薬品類の除去特性についても調査が必要である。本報告では、下水処理場での医薬品類調査結果<sup>1)</sup>を基に下水処理における医薬品類の除去特性の把握、流入下水及び放流水に含まれる医薬品類の水生生物への影響と実験プラントを用いて行った二次処理水中に残存する医薬品類の高度除去法<sup>2)</sup>について述べる。

## 2. 調査方法

### 2.1 調査対象医薬品類及び分析方法

人・動物用医薬品類から解熱鎮痛消炎剤、抗生物質、殺菌剤、気管支拡張剤、利尿剤等92物質を調査対象医薬品類とした。選定した医薬品類は、薬事工業生産動態統計年報<sup>3)</sup>で生産量が多く一般的に用いられていると考えられる医薬品に、我が国でこれまで検出例のある物質を加えたものである。これら92物質の分析方法は、小西ら<sup>4)</sup>の一斉分析法を参考に抽出・濃縮等の前処理を行った後、LC-MS/MSにより測定し、絶対検量線法により定量した。

### 2.2 調査処理場の概要

調査処理場は、標準活性汚泥法の処理場が8ヶ所、オキシデーションディッチ法の処理場が4ヶ所、嫌気好気活性汚泥法の処理場が2ヶ所、標準活性汚泥法+凝集剤添加+急速ろ過の処理場、標

準活性汚泥法+高速エアレーション沈殿池の処理場が各1ヶ所の計16ヶ所である。また、これらの処理場は、流域下水道が4ヶ所でその他は単独公共下水道である。これらの処理場において平成19年12月4日と5日に試料採取（スポット採取）を行った。

## 3. 調査結果

### 3.1 流入下水・放流水の医薬品類濃度と下水処理における医薬品類除去特性

16処理場の流入下水及び放流水の医薬品類調査結果（中央値）を図-1に示した。調査した92物質中、流入下水から86物質、放流水から85物質が検出された。検出された全医薬品類の合計濃度は、流入下水57,000ng/L、放流水5,200ng/Lであり、下水処理により医薬品類は91%除去された。流入下水から検出された物質で最も高濃度の医薬品は強心剤のカフェイン（28,300ng/L）であった。一方、放流水から検出された物質で最も高濃度の医薬品は消化性腫瘍用剤のスルピリド（1,260ng/L）であった。

流入下水と放流水の両者の中央値が検出下限値以上となった62物質について、下水処理による個別医薬品類の除去率を求めた。除去率が約100%の解熱鎮痛消炎剤のアセトアミノフェン、副腎ホルモン剤のプレドニゾロン、強心剤のカフェインの3物質を含む16物質が除去率80%以上、60%以上80%未満は15物質、40%以上60%未満は6物質、10%以上40%未満は8物質であった。また、除去率が10%以下で下水処理により殆ど除去されない物質は16物質あった。なかでも流入下水と放流水の値が逆転し下水処理を受けることによって検出されるようになった医薬品類が12物質あった。一般に流入下水は夾雑物を多く含み分析を妨害することが知られているが、これら12物質については、夾雑物が流入下水の定量に影響したと考えられる。また、生体内で抱合体\*を形成していたものが下水処理を受け脱抱合したことも考えられる。

Removal characteristics of chemicals in sewage  
\*土木用語解説：抱合体



図-1 流入下水及び放流水中の医薬品類（中央値）

### 3.2 流入下水・放流水中の医薬品類の水生生物への影響

下水道から河川へ排出される医薬品類の水生生物への影響が懸念されていることから、医薬品類濃度と医薬品類の生物影響濃度の関係比較を行った。医薬品類の生物影響濃度については、福永ら<sup>5)</sup>が報告している藻類生長阻害試験<sup>\*</sup>の無影響濃度(No Observed Effect Concentration : NOEC)、木谷ら<sup>6)</sup>が報告しているミジンコ繁殖試験<sup>\*</sup>のNOECと土木研究所で実施した藻類生長阻害試験のNOEC<sup>7)</sup>を用いた。本調査で対象とした92物質中49物質についてNOECが報告されている。

これらのNOEC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21年2月版）<sup>8)</sup>を参考に、生態リスク初期評価を試みた。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濃度として設定される予測無影響濃度(Predicted No Effect Concentration : PNEC)と予測環境中濃度(Predicted Environmental Concentration : 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(Measured Environmental Concentration : MEC)として実測濃度を用いることとした。また、環境リスク初期評価ガイドラインによれば、PNECはNOECをアセスメント係数で除して求めるとされている。本ガイドラインでは、藻類、甲殻類及び魚類のうち、1~2の生物群について信頼性のある慢性毒

性<sup>\*</sup>値がある化学物質のアセスメント係数は100としていることから、本評価においてはこれに準じアセスメント係数は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(Max.)として検出された最大濃度の無影響濃度に対する比率(MEC (Max.)/PNEC)を求めることとした。また、生態リスクの判定については、環境リスク初期評価ガイドラインに示されている判定の考え方(表-1)に倣うこととした。本評価においてはPECをMEC(Max.)に置き換えて評価を試みた。評価を試みた医薬品類49物質の評価結果のうち流入下水のMEC(Max.)/PNECが0.1を超過した13物質について、放流水のMEC(Max.)/PNECと合わせて図-2に示した。

流入下水のMEC(Max.)/PNECは、抗生物質のクラリスロマイシンが最も大きい値を示し、次いで解熱鎮痛消炎剤のアセトアミノフェンとなった。

表-1 生態リスク初期評価における判定の考え方<sup>8)</sup>

評価の分類	
PEC/PNEC < 0.1	現時点では作業は必要ないと考えられる。
0.1 ≤ PEC/PNEC < 1	情報収集に努める必要があると考えられる。
1 ≤ PEC/PNEC	詳細な評価を行う候補と考えられる。
(情報が不十分な場合)	現時点ではリスクの判定はできない。

<sup>\*</sup>土木用語解説：藻類生長阻害試験、ミジンコ繁殖試験、慢性毒性

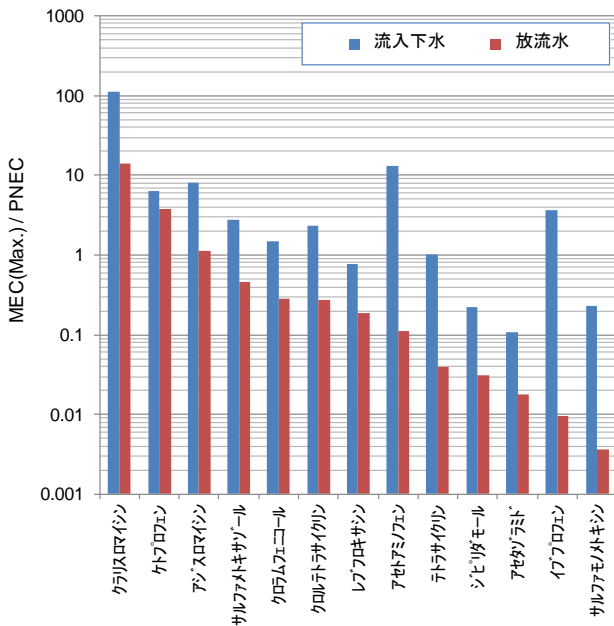


図-2 各物質のMEC(Max.)/PNEC

また、放流水中のMEC(Max.)/PNECは、多くの医薬品類において流入下水に対し大きく減少した。解熱鎮痛消炎剤のケトプロフェンは1/2、合成抗菌剤のレボフロキサシンは1/4、他の11物質は1/5以下となった。

通常、下水処理における有機汚濁物質の除去率は、BODで95%、CODで80%程度であるが、水生生物への影響が懸念される医薬品類においても低減効果がみられることがわかった。しかしながら、放流水に残存する医薬品類のMEC(Max.)/PNECが1を超過する物質がみられた。抗生物質のクラリスロマイシンは14、解熱鎮痛消炎剤のケトプロフェンは3.8、抗生物質のアジスロマイシンは1.1を示し、「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、更なる除去技術について検討する必要がある。

### 3.3 二次処理水に残存する医薬品類の高度除去

活性汚泥処理実験プラントの二次処理水を、微生物保持担体<sup>\*</sup>を添加した反応槽(HRT=2時間)に導入し、下部より曝気を行い、担体表面に自然発生的に付着した生物膜を用いた高度処理を実施した(図-3)。さらに、担体処理槽流出水は急速砂ろ過装置(ろ過速度=300m/日)を通過させ、流出水中の懸濁物質を分離し、ろ過水②を得た。

また、比較対照として、二次処理水の一部を急速砂ろ過装置によりろ過し、ろ過水①を得た。本

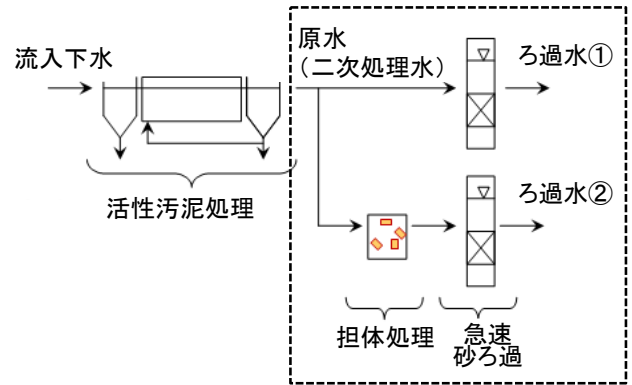


図-3 担体処理実験装置

条件で数ヶ月運転した後、二次処理水、ろ過水①、ろ過水②の3試料をスポット採取し、医薬品類を測定した。

担体処理実験の原水とした二次処理水から69物質が検出された。二次処理水から検出された69物質のうち、ろ過水②に残存する濃度が高い9物質の分析結果を図-4に示す。9物質のうち、抗生物質のクラリスロマイシン、アモキシシリン、解熱鎮痛消炎剤のケトプロフェン、血管拡張剤のジビリダモール、利尿剤のプロセミドの5物質は、除去率68%以上と高かったが、鎮痒剤のクロタミトン等他の4物質は除去率40%以下と低かった。

二次処理水に残存し、水生生物への影響が懸念される医薬品類についても担体処理を追加することにより、抗生物質のクラリスロマイシンで68%、解熱鎮痛消炎剤のケトプロフェンで98%が除去された。一般的な下水処理(生物処理)の処理水に残存する医薬品類についても担体処理の追加によりさらに除去・削減できることが明らかとなった。

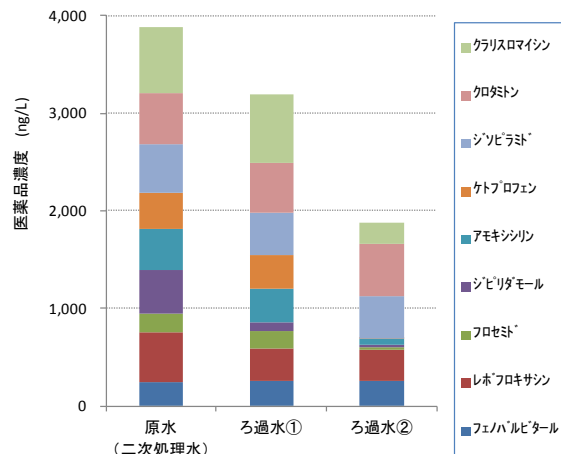


図-4 担体処理実験結果

<sup>\*</sup>土木用語解説：担体

#### 4. まとめ

本調査において下水処理場の流入下水・放流水中の医薬品類濃度を明らかにした。調査医薬品類92物質中、流入下水から86物質、放流水から85物質がng/L～μg/Lの濃度レベルで存在することが明らかとなった。検出された全医薬品類の合計濃度は、流入下水57,000ng/L、放流水5,200ng/Lであり、下水処理により医薬品類は91%除去された。流入下水と放流水の中央値から求めた個別医薬品類の除去率は、中央値が検出下限値以上となった62物質中16物質が80%以上、15物質が60%以上80%未満となり、多くの物質が下水処理により除去・削減されることが分かった。

また、生物への無影響濃度（NOEC）が報告されている医薬品類について環境省のガイドラインを参考に生態リスク初期評価を試みたところ、評価を試みた医薬品49物質中、13物質は流入下水のMEC(Max.)/PNECが0.1を超過し、「情報収集に努める必要があると考えられる。」と判定された。これらの医薬品は下水処理により1/2、1/4、或いは1/5以下に低減されることが分かったが、抗生物質のクラリスロマイシン、アジスロマイシン、解熱鎮痛消炎剤のケトプロフェンの3物質は、放流水においてもMEC(Max.)/PNECが1を超過し、「詳細な評価を行う候補と考えられる。」との判定となった。これらの物質は、必ずしも放流先の水生生物に影響を与えているということではないが、他の生物種への影響、測定データの確認、放流水の時間的濃度変動等、今後更に調査を進め、情報を集積しなければならない物質であることが分かった。なお、これら3物質については詳細な調査・研究が望まれるところであるが、担体処理

によりさらに除去・削減されることが明らかとなった。

下水処理場は、生活・工場排水等を受け入れ、これらに含まれる有機物等の汚濁物質を除去・削減したのち河川へ戻し、市民の生活環境を守っている重要な施設であることから、今後とも微量化学物質に関する水質安全性確保のための検討を行っていく予定である。

#### 謝 辞

本調査の実施に当たり、下水試料の採取許可及び試料採取にご協力いただきました関係者の皆様に感謝申し上げます。

#### 参考文献

- 1) 小森行也他：下水処理における医薬品（92物質）の除去特性、第45回下水道研究発表会講演要旨集、pp.91～93、2008
- 2) 岡安祐司他：下水処理水に残存する医薬品の担体処理における除去特性、第44回日本水環境学会年会講演集、p.291、2010
- 3) 厚生労働省医政局編集、薬事工業生産動態統計年報、じほう、2004
- 4) 小西千絵他：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、pp.73～82、2006
- 5) 福永彩他：藻類生長阻害試験を用いた医薬品の毒性評価、環境工学研究論文集、Vol.43、pp.57～63、2006
- 6) 木谷智世他：水棲生物3種の慢性影響を考慮した医薬品8種の生態リスク初期評価、第41回日本水環境学会年会講演集、p.650、2007
- 7) 鈴木穰他：生理活性物質の水環境中での挙動と生態影響の評価方法に関する研究、平成19年度下水道関係調査研究年次報告書集、独立行政法人土木研究所、pp.140～151、2009
- 8) 環境省、化学物質の環境リスク初期評価ガイドライン、<http://www.env.go.jp/chemi/risk/>、2009

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

岡安祐司\*\*



滋賀県琵琶湖環境部下水  
道課主席参事（前独立行  
政法人土木研究所つくば  
中央研究所水環境研究グ  
ループ水質チーム主任研  
究員）  
Dr. Yuji OKAYASU

鈴木 穰\*\*\*



独立行政法人土木研究所  
つくば中央研究所材料資  
源研究グループ長  
Yutaka SUZUKI

南山瑞彦\*\*\*\*



岡山市下水道局長（前  
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  
上席研究員）  
Mizuhiko MINAMIYAMA