

農業集落排水施設の処理水への生活排水由来医薬品と分解中間生成物の混入実態 Concentrations of Pharmaceuticals and Transformed Products in Treated Wastewater in Rural Sewerage

○治多伸介*, 張 鈺銘*, 久米 崇*
Shinsuke Haruta*, Yuming Zhang*, Takashi Kume*

1. はじめに

「生活排水由来の医薬品」は、 $\mu\text{g/L}$, ng/L といった微量でも生態系に悪影響を与える可能性があるなどの理由から、新たな環境汚染物質として重要視されてきている。従って、生活排水処理施設では、医薬品を適切に分解、除去することが、より望ましいと考えられる。ところが、農村地域の代表的な生活排水処理施設である農業集落排水施設における医薬品の分解、除去状況については未だ十分な調査が行われておらず、医薬品の分解、除去について望ましい処理方式や施設管理技術などは未だ十分に明らかとなっていない。また、農業集落排水施設では、公共下水道とは採用されている処理方式が異なるなどの特徴があるため、公共下水道とは別に、独自に調査を進めることが重要と考えられる。一方、医薬品は、排水処理施設内で完全には分解されずに毒性が残留したままの「分解中間生成物(Transformed Products: 以下, TPs)」として存在する場合がある。このTPsに関する調査は、公共下水道でも殆どない。そこで、本研究では、生活排水由来の医薬品とTPsの、農業集落排水施設の処理水への混入実態を明らかにするための調査を、実稼働中の農業集落排水施設(6施設)で実施した。

2. 研究方法

愛媛県内の供用人口約150~2,000人の農業集落排水施設6施設(接触曝気方式1施設、嫌気性ろ床接触曝気方式2施設、連続流入間欠曝気活性汚泥方式3施設)で、平成27年3月10日、9月18日、12月11日の昼間に、塩素消毒後の処理水をスポット採水した(全18試料)。そして、医薬品(4種類)と、その代表的なTPs(7種類)の溶存態の分析をLC/MS/MSで行った。すなわち、ガラスフィルタ(孔径 $1\mu\text{m}$)で濾過した濾過水をOasisHLBカートリッジで固相抽出を行った後に分析した。具体的な分析対象成分は、解熱鎮痛消炎剤Ketoprofen(KET)とKETのTPs¹⁾(3-Acethylbenzophenone, 3-Ethylbenzophenone)、防虫剤DEETとDEETのTPs²⁾(N-N-Diethyl Benzomide)、抗うつ剤Carbamazepine(CBZ)とCBZのTPs³⁾(Acridine, Acridone, Carbamazepine 10, 11-epoxide)、鎮痒剤Crotamiton(CTM)とCTMのTPs⁴⁾(N-Ethyl-0-Toluidine)とした。

3. 結果と考察

(1) 処理水の医薬品濃度

分析した医薬品4種類は、全ての試料から定量下限(約 0.1ng/L)以上の濃度で検出された。具体的には、KETは $8.9\sim 6,080\text{ng/L}$ 、CBZは $0.1\sim 86.6\text{ng/L}$ 、CTMは $132.2\sim 6830\text{ng/L}$ 、DEETは $13.7\sim 1540\text{ng/L}$ であった。以上の結果から、農業集落排水処理水に対する医薬品の混入は、一般的な現象であることが確認できた。また、いずれの医薬品濃度も1~3オーダー程度の分布範囲があったため、農業集落排水施設の処理水に対する医薬品混入濃度は、施設や季節によって大きく異なると考えられた。

* 愛媛大学大学院農学研究科 Graduate School of Agriculture, Ehime University

キーワード: 集落排水, 水質環境, 環境保全

(2) 処理水の分解中間生成物濃度

TPs も、全試料から定量下限(約 0.1ng/L)以上の濃度で検出された。具体的には、KET の TPs(2 種類の合計)は 2.1~220ng/L, CBZ の TPs(3 種類の合計)は 2.6~26.5ng/L, CTM の TPs は 3.1~351ng/L, DEET の TPs は 0.9~46.2ng/L であった。以上より、農業集落排水施設の処理水に対する TPs の混入も、医薬品と同様に一般的な現象であることが分かった。一方、医薬品と TPs の合計濃度のうちで TPs の占める割合は、KET 1.4~74.3%, CBZ 8.9~99.2%, CTM 0.1~63.7%, DEET 1.7~61.5%であり、どの医薬品でも TPs が無視できない割合で含まれる場合があった。

(3) 生物膜法と活性汚泥法での濃度の差違

図 1, 図 2 には KET と CBZ を事例に、生物膜法と活性汚泥法の施設別(各々3 施設)に、医薬品と TPs の平均濃度を月別に示した。KET に関しては、医薬品と TPs の合計濃度は、採水月によらず、生物膜法よりも活性汚泥法が低く、活性汚泥法の KET 分解能力が生物膜法より優れていることが示唆された。CTM と DEET についても、KET と同様な傾向が見られた。一方、CBZ には、そのような傾向は見られなかった。

(4) 採水月による処理水の濃度の差違

図 1 に示した KET と TPs の合計値は、活性汚泥法では、3 月, 12 月よりも 9 月で濃度が高く、活性汚泥法の KET 分解能力は、水温が高い時期に高まることが示唆された。一方、CBZ, CTM, DEET では、生物膜法, 活性汚泥法ともにそのような傾向は見られなかった。

4. まとめ

農業集落排水施設の処理水には、様々な医薬品と分解中間生成物が混入し、分解中間生成物は、元の医薬品に比較して無視できない濃度まで高まる場合のあることが分かった。また、医薬品と分解中間生成物の合計濃度は、Ketoprofen, Crotamiton, DEET では、生物膜法より活性汚泥法で低く、活性汚泥法では、水温が高い時期に Ketoprofen と分解中間生成物の合計濃度が低いという特徴が分かった。すなわち、活性汚泥法の生物膜法に対する優位性が示唆された。

謝辞：本研究は、科学研究費基盤研究(B) 25292144 の助成を得て行った。記して感謝の意を示します。

引用文献：1) Jakimska et al., Anal. Bioanal. Chem., (2014) 3667-3680. 2) Calza et al., Sci. Tot. Environ., (2011) 3894-3901. 3) Leclercq et al., Arch. Environ. Cont., (2009) 408-415. 4) Fukahori et al., Chemosphere, (2012) 213-220.

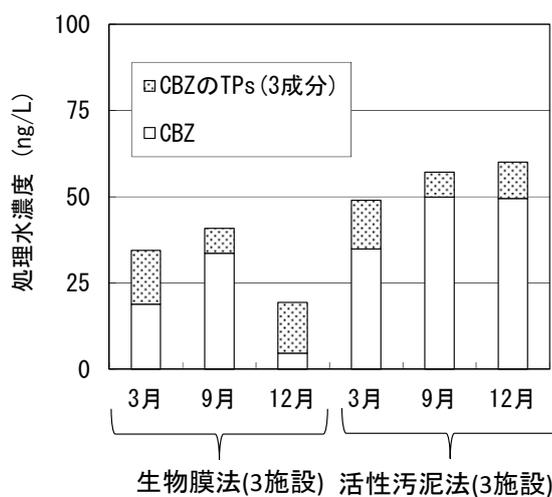
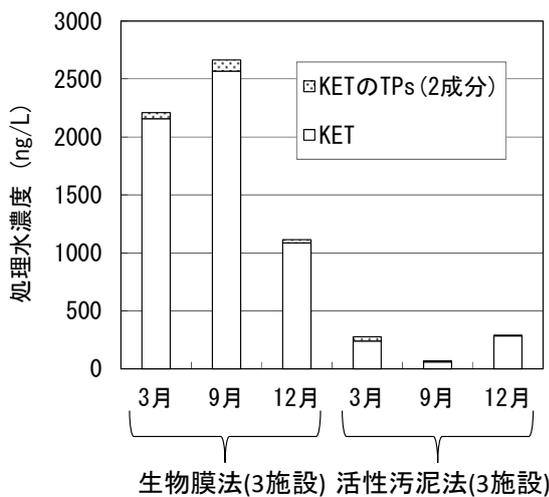


図 1 Ketoprofen と分解中間生成物の平均濃度
Fig.1 Average concentrations of Ketoprofen and transformed products

図 2 Carbamazepin と分解中間生成物の平均濃度
Fig.2 Average concentrations of Carbamazepin and transformed products