

下水処理水に残存する医薬品等の リスク評価及び除去技術

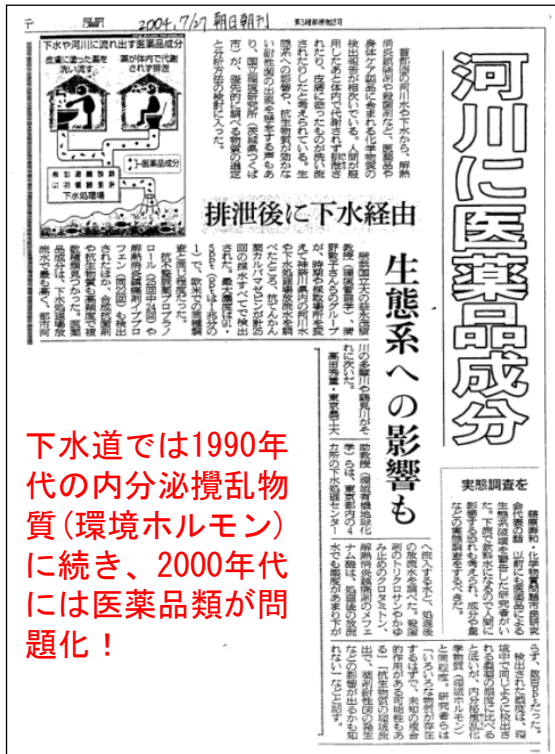
国立研究開発法人 土木研究所
水環境研究グループ（水質チーム）
上席研究員 小川文章

1



1. 多摩川における医薬品類の実態調査 と生態リスク評価

2



朝日新聞
(2004年7月27日版)



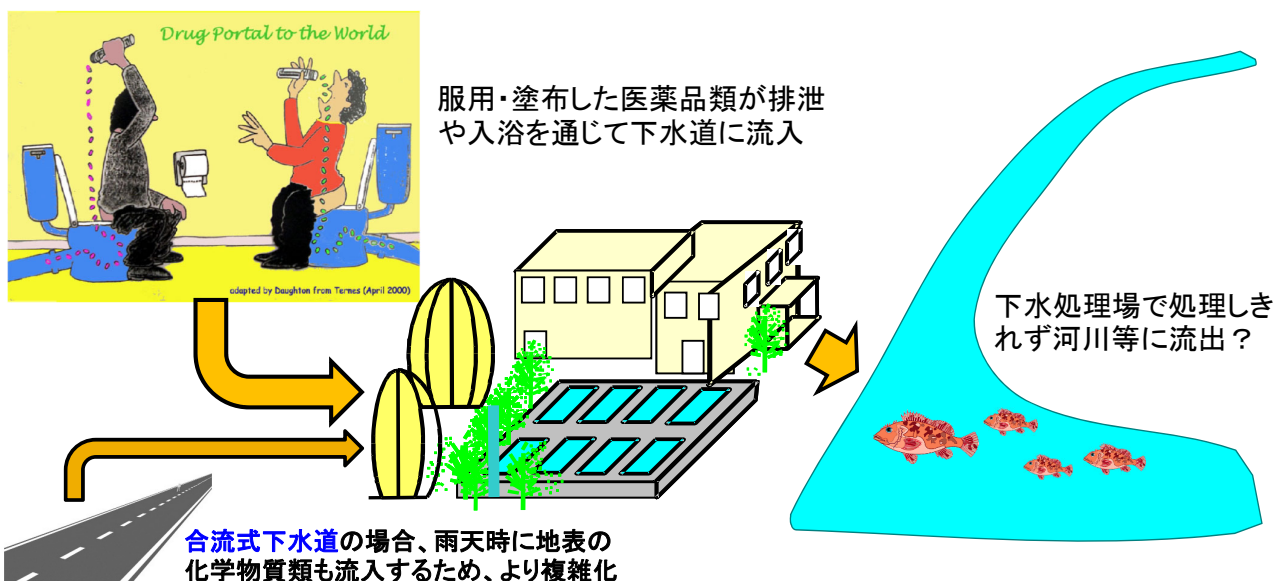
産経新聞
(2006年7月28日版)

他にも多くの記事が！

- 2007/12/23 朝日深部
- 2008/04/16 産経新聞
- 2008/05/14 朝日新聞
- 2009/06/22 朝日新聞
- 2009/08/15 読売新聞
- 2010/02/14 朝日新聞

下水道と医薬品類の関係

日常使用されている医薬品類が下水道を通して河川等に流出している可能性
⇒生態系への影響がある場合、何らかの対策（排出源？、下水道？）が必要



技術的検討のため、河川内の医薬品類の実態調査や生態影響評価を実施

多摩川における医薬品類の実態調査



<多摩川での実態把握の手順>

- ①対象物質の選定：既往研究結果から抽出
- ②調査区間の設定：下水処理場が密な区間
- ③生態リスク評価：ハザード比(HQ)で評価

- 調査地：多摩川 中流域
(本川、支川、下水処理場排水樋門)
- 実態調査時期：2011年6月, 10月
2012年1月, 2月, 8月
2013年1月, 9月, 12月
2014年8月, 10月, 12月
- ※ 他に挙動把握調査も同時期に実施
2012年、2013年、2014年：本稿未記載



5

対象物質の選定 (10物質)



国内出荷量の多い医薬品類 (薬事工業生産動態統計年報)

+

既往研究 (霞ヶ浦流入河川での実態調査+
細菌・藻類・甲殻類を用いた生態影響試験)

調査分析対象とする10物質を選定

物質名	主な効用
アジスロマイシン	マクロライド系抗生物質
ベザフィブラート	高脂血症治療薬
カフェイン	中枢興奮・強心・利尿剤
クラリスロマイシン	マクロライド系抗生物質
クロタミトン	かゆみ止め軟膏
イブプロフェン	消炎・鎮痛・解熱剤
ケトプロフェン	消炎・鎮痛・解熱剤
レボフロキサシン	フルオロキノロン系合成菌剤
スルファメトキサゾール	サルファ剤(感染症治療薬)
トリクロサン	殺菌剤

6

調査区間の設定（多摩川中流域）



多摩川流域には**多数の下水処理場**が存在



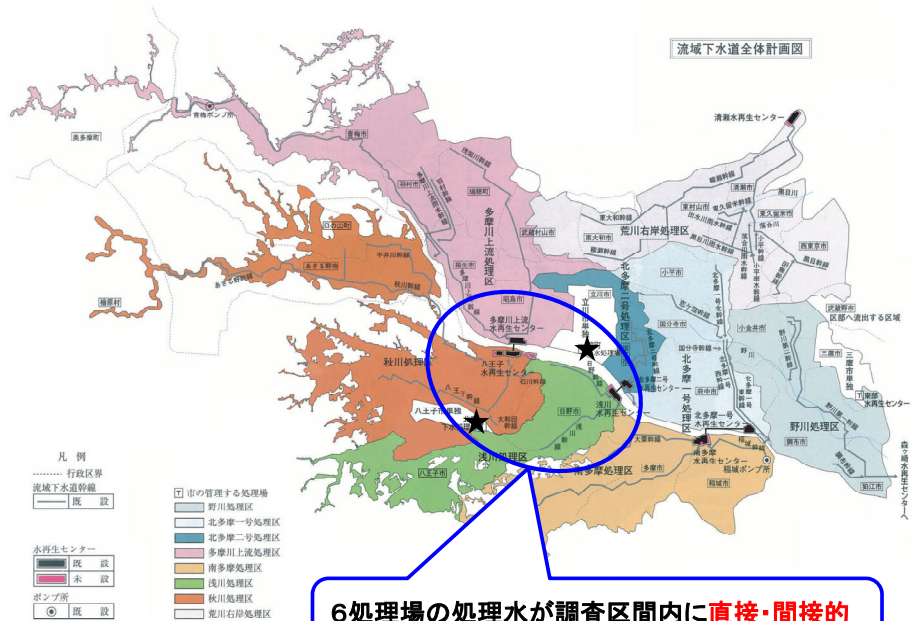
流域人口の増加や下水道普及率の上昇に伴い下水処理水の**影響度が高まる**



多摩川の流量の**5割以上**を下水処理水が占めると言われている



6処理場が集中する中流域を調査区間に設定



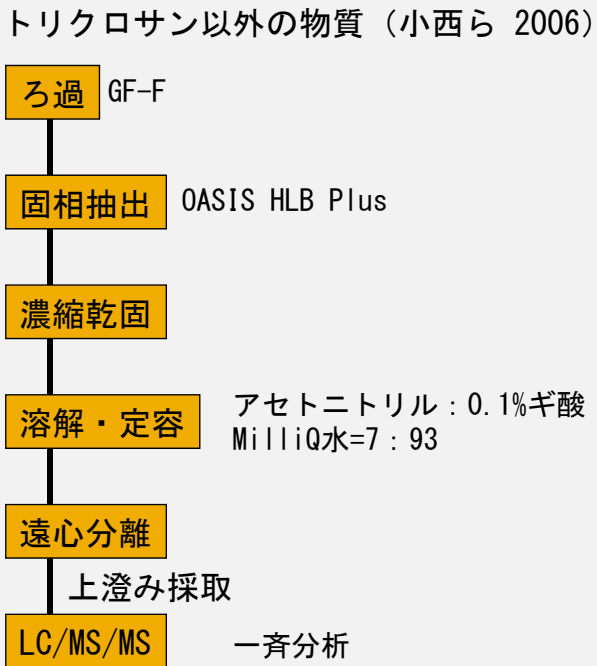
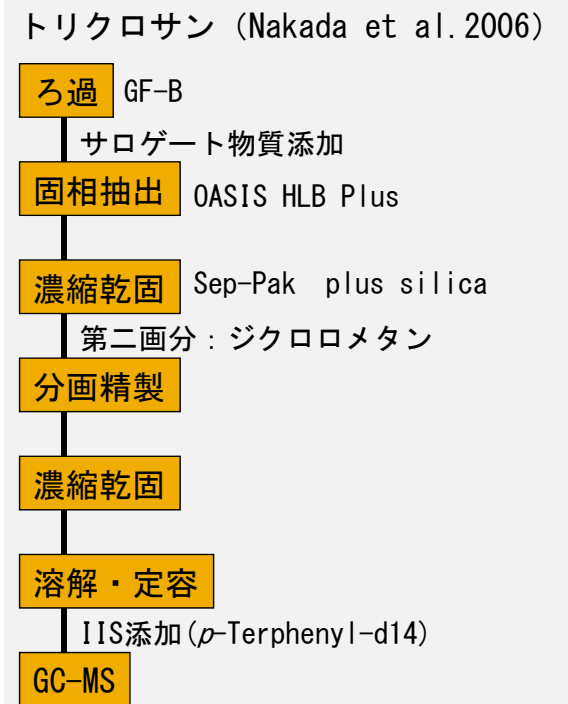
★ 市単独の公共下水道の処理場の位置

東京都下水道局HPより引用

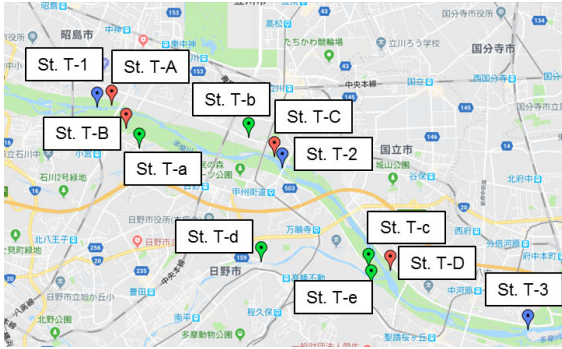
医薬品類の分析方法



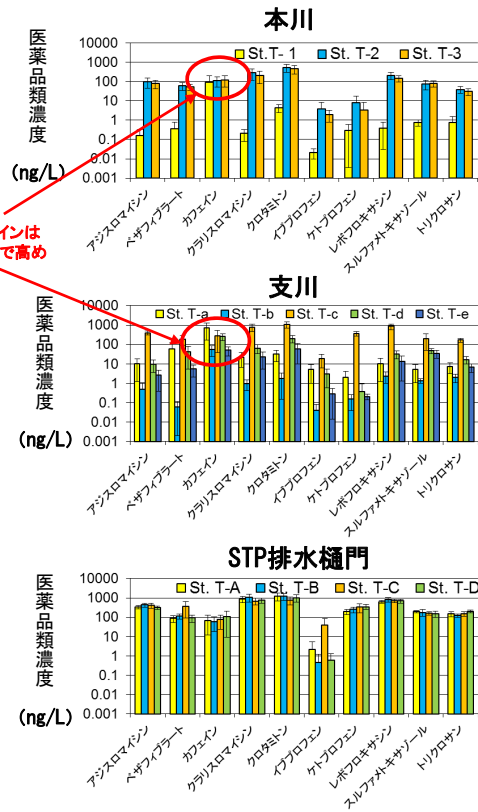
同位体希釈法により定量



実態調査結果



- 本川では、下水処理場より上流側の St. T-1 に比べ、下流側の St. T-2、St. T-3 で高濃度（カフェインは St. T-1 でも高い←上流の浄化槽が原因か？）
- 支川でも、下水処理場の下流にある St. T-c、St. T-d のほうが高濃度
※ St. T-a、St. T-b は上流に下水処理場が無い支川
- STP (下水処理場) 排水樋門が最も高濃度



生態リスク評価方法



$$\text{ハザード比} = \frac{\text{測定環境濃度 (MEC)}}{\text{予測無影響濃度 (PNEC)}}$$

ハザード比が1以上の物質を詳細な評価が必要な物質として判定した

MEC

- 各調査地点で測定された最大の濃度を使用した

PNEC

- 3つの生物分類群（藻類、甲殻類、魚類）への急性・慢性毒性値を文献から収集した
- 環境省の環境リスク初期評価ガイドラインに従い、急性・慢性毒性値の最小値をアセスメント係数で割り、最小値をPNECとして採用した

アセスメント係数

毒性	毒性値が得られた生物分類群数	アセスメント係数値
急性	1 ~ 2	1000
	3	100
慢性	1 ~ 2	100
	3	10

生態リスク初期評価に使用したPNEC値

	AZM	BFZ	CAF	CAM	CRT	IBP	KEP	LVFX	SMX	TCS
PNEC (ng/L)	19 (藻・急)*	10000 (藻・急)	5200 (藻・慢)	20 (藻・急)	3500 (藻・慢)	130000 (藻・慢)	160 (藻・慢)	79 (藻・急)	1600 (藻・慢)	20 (藻・慢)

*PNECの導出に使用した毒性値、藻：藻類、急：急性毒性値、慢：慢性毒性値

生態リスク評価結果



アジスロマイシン、クラリスロマイシン、ケトプロフェン、レボフロキサシン、トリクロサンはハザード比（HQ）が1を超過する地点が存在



アジスロマイシン、クラリスロマイシン、トリクロサンはほとんどの調査地点でHQが1を超過



今後より高精度なリスク評価や低減対策を検討する必要（一部は既に検討中）

調査河川	調査地点	アジスロマイシン	バザフィアラート	カフェイン	クラリスロマイシン	クロタミン
多摩川	T-1	0.04	<0.01	0.06	0.05	<0.01
	T-2	11.05	0.01	0.04	30.00	0.27
	T-3	6.84	0.01	0.05	22.00	0.23
	T-a	1.21	0.02	0.31	2.30	0.02
	T-b	0.08	<0.01	0.02	0.12	<0.01
	T-c	26.32	0.04	0.15	60.00	0.51
	T-d	1.00	0.01	0.08	5.00	0.09
	T-e	0.28	<0.01	0.01	2.25	0.03

調査河川	調査地点	イブプロフェン	ケトプロフェン	レボフロキサシン	スルファメトキサゾール	トリクロサン
多摩川	T-1	<0.01	0.01	0.01	<0.01	0.92
	T-2	<0.01	0.19	5.19	0.09	11.51
	T-3	<0.01	0.11	3.42	0.09	9.00
	T-a	<0.01	0.04	0.39	0.01	2.83
	T-b	<0.01	<0.01	0.06	<0.01	1.08
	T-c	<0.01	3.13	15.19	0.33	39.62
	T-d	<0.01	0.01	0.72	0.05	5.11
T-e	<0.01	<0.01	0.39	0.03	1.89	

太字は1以上のハザード比を示す



2. 医薬品類の微生物担体処理特性

下水道における実態把握調査結果（医薬品92物質）



標準活性汚泥法(8処理場)、OD法(4処理場)、その他(4処理場)の16処理場で調査



- ・ 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
- ・ 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¹⁾

1) 小森他、土木技術資料（2012）

医薬品類の除去技術研究



- ・ 多くの医薬品は、物理化学的な処理により90%以上の除去が可能
- ・ 一方、**低コストな微生物利用による処理技術については報告例が少ない**

<物理化学的処理方法の研究事例>

- 金他(2007) UVおよびUV/H₂O₂を用いた連続処理実験での下水2次処理水中のPPCPsの除去特性, 環境工学研究論文集, Vol. 44, pp. 283-290
- 加藤他(2006) オゾン処理および促進酸化処理におけるPPCPs除去特性, 第43回環境工学フォーラム講演集, pp. 25-27
- 金他(2006) 紫外線を利用した水環境に含まれる医薬品の除去効果について, 第9回水環境学会シンポジウム講演集, pp. 101-102



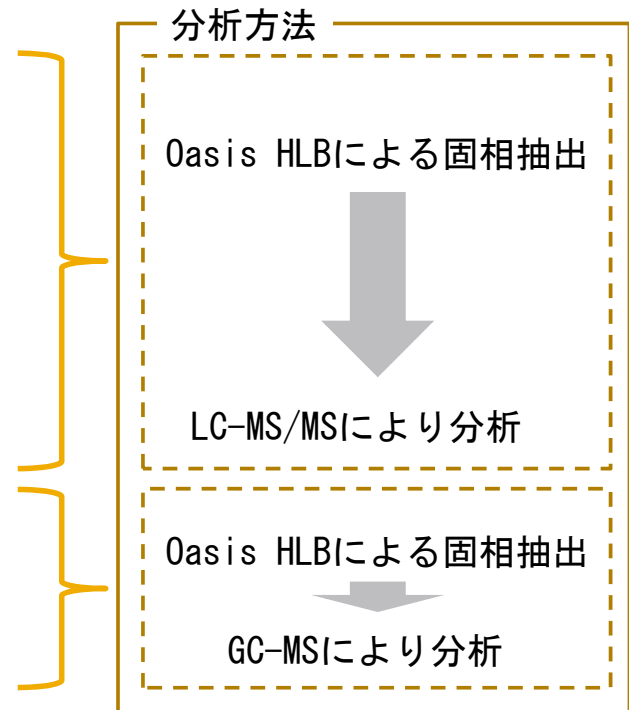
低コストかつ省エネ化が可能な微生物担体を用いた除去技術について研究

検討対象とする医薬品類



下水処理水中の医薬品類について生態リスク評価を行った結果、ハザード比 (HQ) が高かった4物質²⁾を選定

- **アジスロマイシン (AZM)**
抗生物質
- **クラリスロマイシン (CAM)**
抗生物質
- **ケトプロフェン (KP)**
解熱鎮痛剤消炎剤
- **トリクロサン (TCS)**
殺菌剤



2) 真野浩行他、PRTR情報等を活用した下水処理水中に含まれる化学物質の環境リスク初期評価、下水道協会誌、第50巻pp. 85-93 (2013)

微生物担体処理技術について (既往研究)



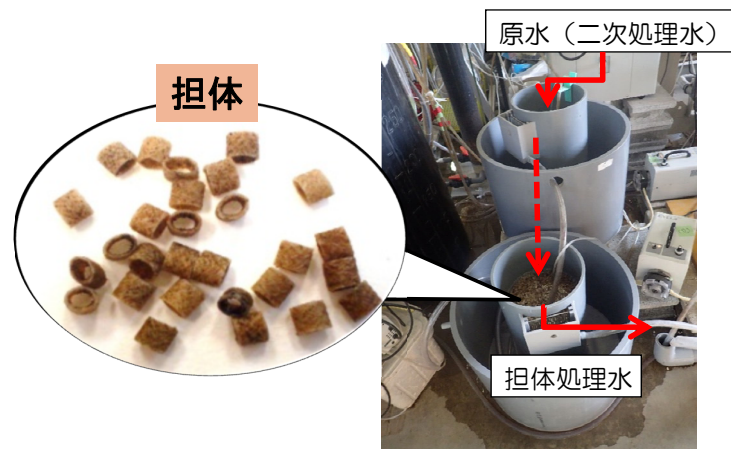
微生物担体を用いた既往研究³⁾では、下水処理水(二次処理水)に残存する**医薬品類4物質**に対し、後段で微生物担体を用いた**曝気処理**を行うことにより、**8割以上除去**

アジスロマイシン (AZM)
除去率90%

クラリスロマイシン (CAM)
除去率81%

ケトプロフェン (KP)
除去率97%

トリクロサン (TCS)
除去率82%



微生物担体を用いた医薬品除去率は、DOC(溶存態有機炭素)除去率(6%)に比べて大きく、**有効な医薬品類の除去方法**であることが判明

3) 小森行也、岡本誠一郎、微生物担体処理における医薬品類の除去特性、第48回水環境学会年会講演集、pp. 581 (2014)

既往研究結果

曝気有りの微生物担体処理 (HRT:120min)
(曝気時の消費電力は大)

アジスロマイシン (AZM)	除去率90%
クラリスロマイシン (CAM)	除去率81%
ケトプロフェン (KP)	除去率97%
トリクロサン (TCS)	除去率82%



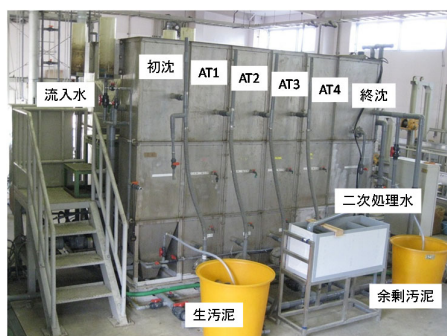
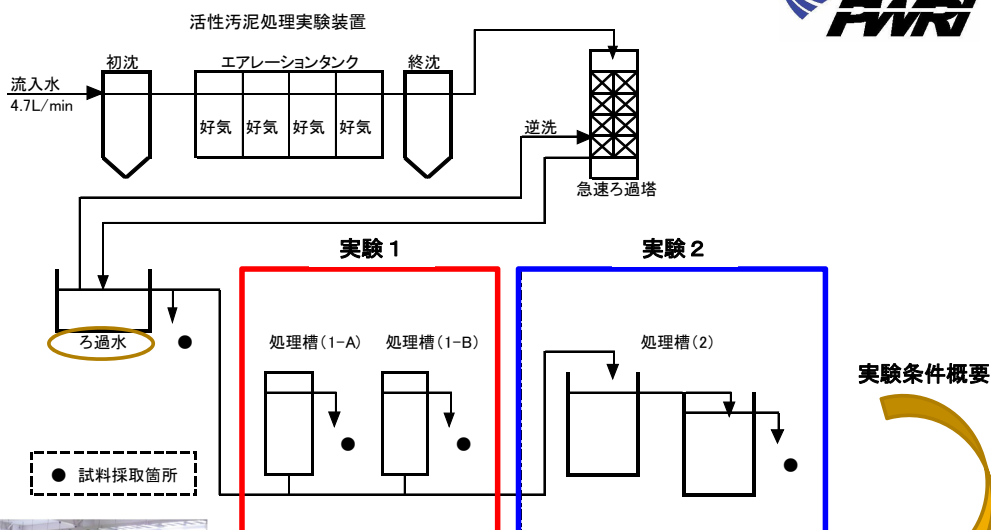
実験の結果、下水処理水(二次処理水)には溶存酸素(DO)が残留しており、無曝気でも処理可能ではないか？

今回の研究

無曝気の微生物担体処理 (省エネ化可能)

アジスロマイシン (AZM)	除去率 ? %
クラリスロマイシン (CAM)	除去率 ? %
ケトプロフェン (KP)	除去率 ? %
トリクロサン (TCS)	除去率 ? %

省エネ化を目的とした微生物担体処理実験

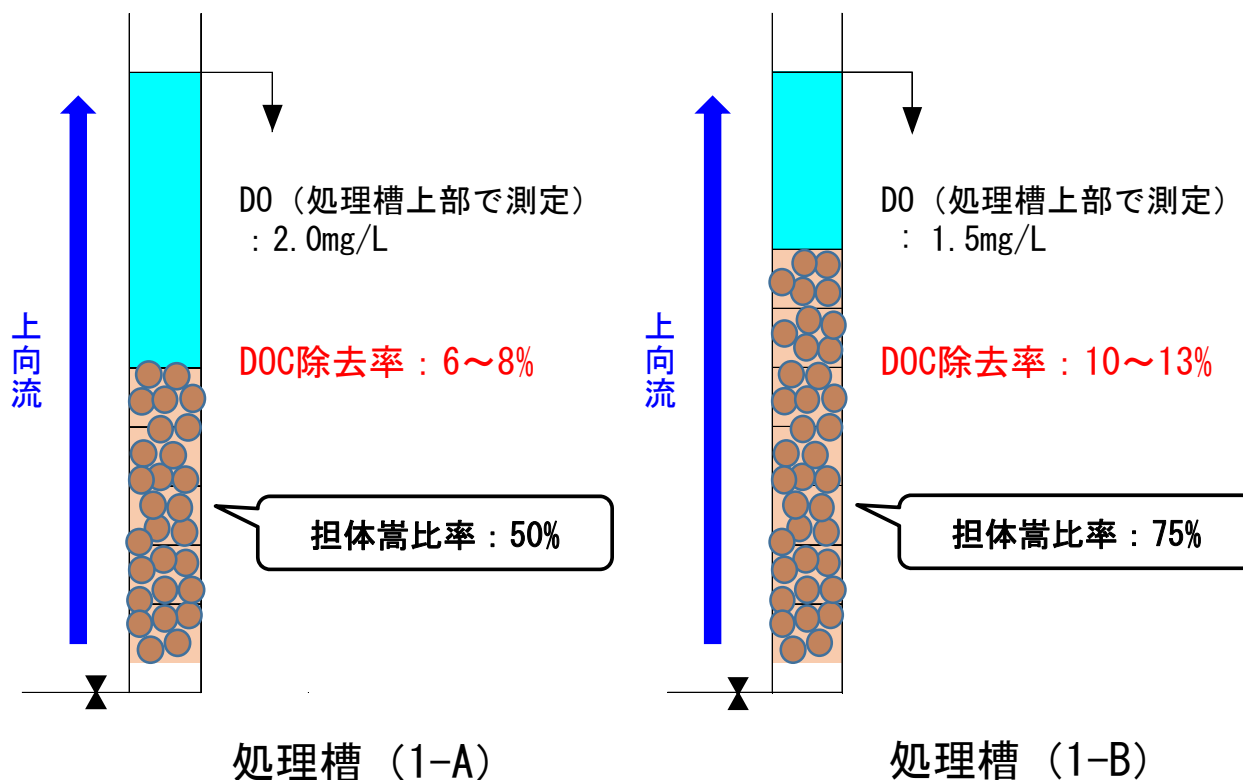


	実験1		実験2
	処理槽(1-A)	処理槽(1-B)	処理槽(2)
各槽の容積 (L)	9.4	9.4	10×2槽
各槽HRT(min)	30	30	60 ※2槽の合計HRT
担体高比率(%)	50	75	35
曝気	×	×	○

実験 1 の結果 (溶存性有機態炭素 (DOC))



溶存性有機態炭素DOC (糖類、有機酸、ペプチド、腐食物質、化学物質等) トータルでは、除去率は大きくない

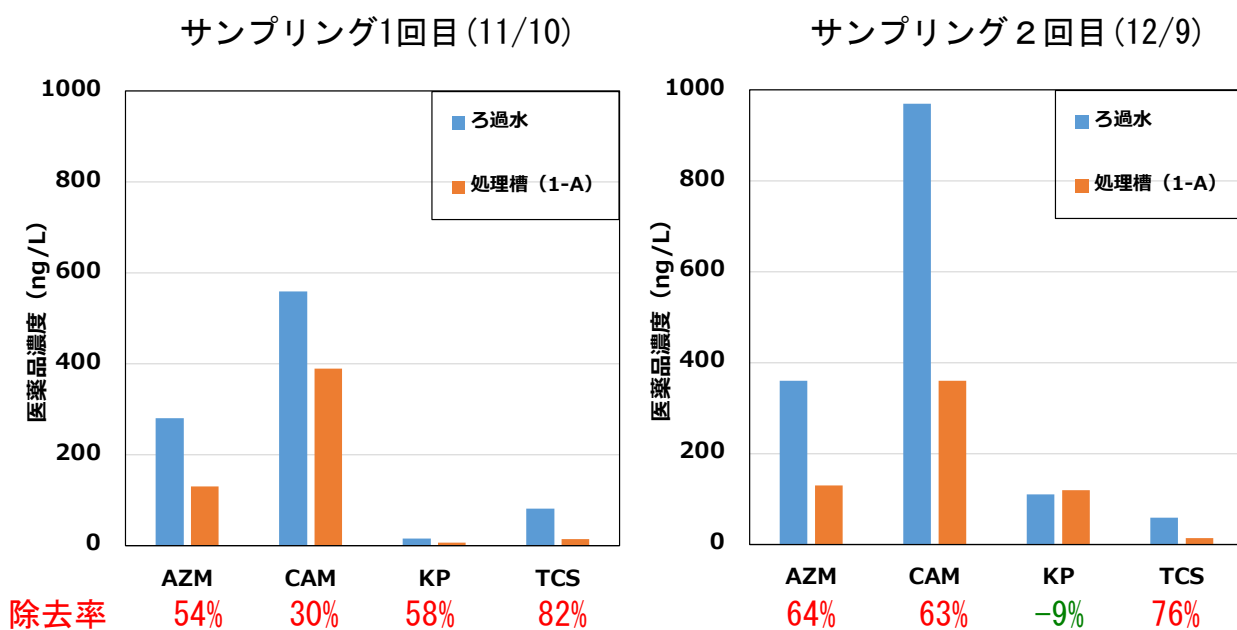


19

実験 1 の結果 (4種の医薬品濃度)



処理槽 (1-A) 無曝気 担体嵩比率:50% HRT:30min



無曝気の処理槽 (1-A) でも、医薬品の除去が可能であることを確認

← サンプルエラー?

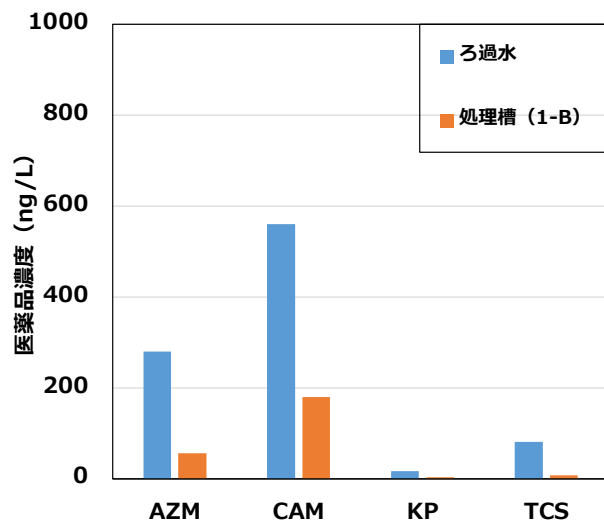
20

実験1の結果（4種の医薬品濃度）



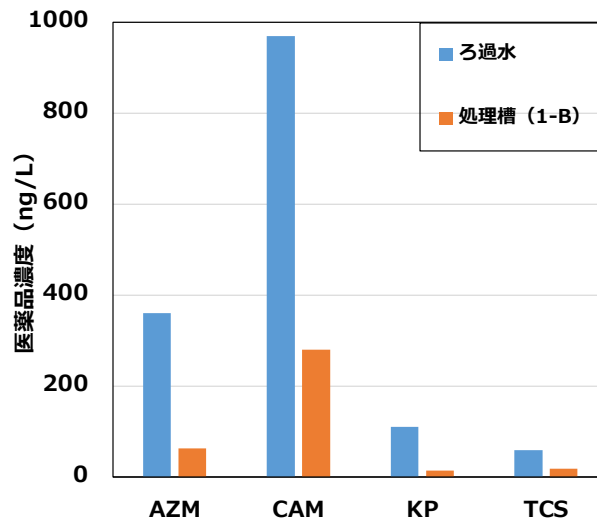
処理槽(1-B) 無曝気 担体嵩比率:75% HRT:30min

サンプリング1回目(11/10)



除去率 80% 68% 80% 91%

サンプリング2回目(12/9)



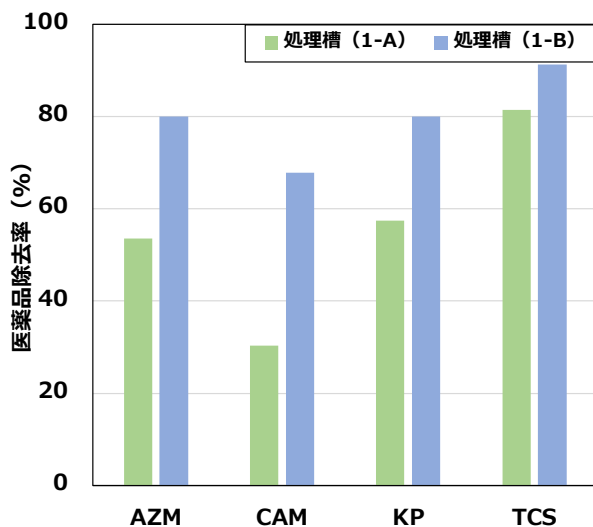
除去率 83% 71% 87% 70%

担体嵩比率50%の処理槽(1-A)よりも高い除去率を達成

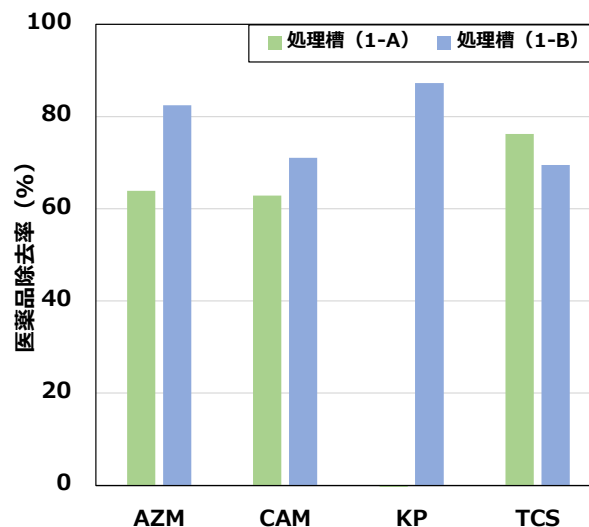
実験1の考察（処理槽(1-A)、処理槽(1-B)）



サンプリング1回目(11/10)



サンプリング2回目(12/9)

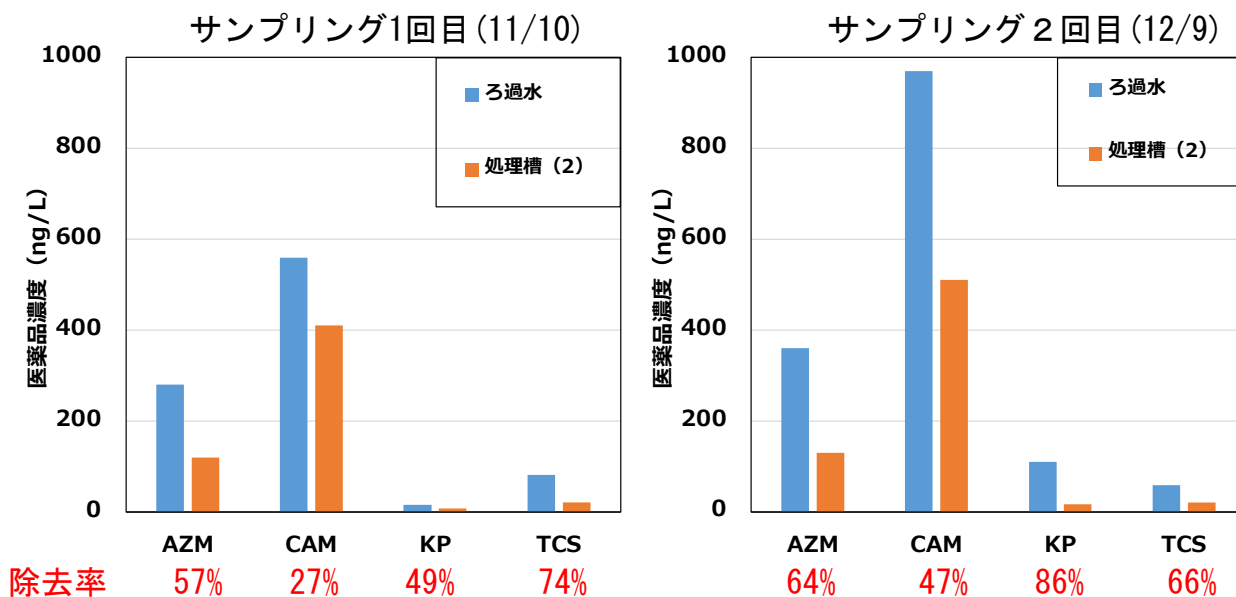


- ・ 処理槽(1-B)のほうが担体嵩比率が高く、医薬品と担体付着微生物膜との接触時間が長いため、除去率が向上したと考えられる
- ・ 曝気有りの既往研究の除去率(4物質とも80%以上)と同程度かやや低いレベル

<参考>実験2の結果（4種の医薬品濃度）



処理槽(2) 曝気有り 担体嵩比率:35% HRT:60min(2槽計)



曝気有りの実験2のほうが、無曝気の実験1よりも低除去率のものが多い
(低い嵩比率(35%)が原因か? 実験条件が異なるため単純比較はできない)

23

まとめ



- 多摩川中流域で採水し、医薬品類10物質の生態リスク評価を行った結果、アジスロマイシン、クラリスロマイシン、トリクロサンの3物質はほとんどの調査地点でハザード比が1を超過した。下水処理場の排水樋門では医薬品類濃度が相対的に高かったことから、下水処理水の放流水の影響が考えられた。
- 無曝気の微生物担体処理実験装置を用いて医薬品類4物質の除去性能を確認した結果、医薬品類の除去に有効である可能性が示された。また、担体の嵩比率を増やすことで、各医薬品類の除去率が向上した。
- 今後は、これらの知見をもとに、河川内での医薬品類の挙動特性や効果的な下水処理方法について研究する。

24



ご清聴ありがとうございました