

学位論文全文に代わる要約 Extended Summary in Lieu of Dissertation

氏名： 菅田 伴
Name

学位論文題目： 農村地域における生活排水由来の医薬品による水質汚染の
Title of Dissertation 実態と対策に関する研究

学位論文要約：
Dissertation Summary

1. 序論

従来、農村地域の水環境の水質汚染に関する問題では、水中の酸素不足や不衛生の原因となる有機物や、閉鎖性水域の富栄養化を引き起こす窒素、リンなどが主な研究対象とされてきた。しかし近年では、生態系への悪影響を及ぼす可能性のある新たな環境汚染物質として、一般家庭で広く使われる「生活排水由来の医薬品」の存在が注目されてきている。

医薬品は人の健康の維持や病気の治療のためになくはない化学物質であるが、体内に取り込まれて完全には代謝・分解されなかった医薬品はし尿に混入し、体表に塗布する医薬品は洗い流され生活雑排水に混入する。このような医薬品は、水環境中に流出した場合、 $\mu\text{g/L}$ 、 ng/L といった微量であっても、生物の生殖機能への悪影響や、環境中での薬剤耐性菌の出現といった問題を引き起こす可能性が指摘されており、その悪影響が懸念されている。

このような状況の中、日本国内では主に2000年代以降に、都市地域を中心とする水環境中の医薬品汚染に関する研究が進んできた。一方で、農村地域については、生活排水処理の対策自体が都市地域と比較して遅れており、医薬品に関する研究も遅れている。農村地域は豊かな生態系を有していることから、そこでの生態系保全は非常に重要であり、農村地域でも独自に調査・研究を行い、医薬品の存在実態を把握し、対策を検討しておくことには重要な意義があると考えられる。

中でも、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(以下、集落排水施設)ではこれまで全く調査が行われていない。そのため、今後の農村の水環境保全を考えるためには、集落排水施設において調査を行い、医薬品の存在実態を把握するとともに、その医薬品除去能力を検討しておく必要があると考えられる。

また、集落排水施設での医薬品除去に加え、その処理水に医薬品が残留した場合に備え、自然の浄化作用を利用するなどして、医薬品濃度をさらに低下させる策を検討しておくことも、農村地域における医薬品による水質汚染への対策として重要である。その方策のひとつとして、ため池が有効である可能性が考えられる。すなわち、ため池は流入水中の窒素、リンなどに対する自然浄化機能を有していることから、処理水をため池に送水することで処理水中の医薬品濃度を効果的に低減できる可能性が考えられる。しかし、このような機能が、生活排水由来の医薬品に対して効果があるか検討した研究は存在していない。

以上より、本研究では、農村地域の代表的な生活排水処理施設である集落排水施設と、集落排水施設からの処理水を送水した農業用ため池における医薬品の存在実態を明らかにし、集落排水施設やため池の、農村地域での医薬品による水質汚染対策としての有効性を検討することを目的とした。

2. 農業集落排水施設における医薬品の存在実態と医薬品除去能力

愛媛県A市で実際に稼働している集落排水施設(活性汚泥法：4施設，生物膜法：1施設)において，集落排水施設の流入水と処理水のスポット採水を実施し，医薬品についての分析を行った．調査対象施設の概要を表1に示す．

表1 調査対象施設の概要

施設名	供用開始	処理方式	計画人口 (人)	供用率 (%)	計画処理水質(mg/L)				
					BOD	COD	SS	T-N	T-P
A施設	2006年	【活性汚泥法】 DO制御連続流入間欠曝気方式	2320	50.0	10	15	15	10	1
B施設	2003年	【活性汚泥法】 連続流入間欠曝気方式	2290	68.0	20	25	50	15	5
C施設	2002年	【活性汚泥法】 連続流入間欠曝気方式	1750	79.5	20	25	50	15	5
D施設	2000年	【活性汚泥法】 回分式活性汚泥方式	1080	67.5	20	25	50	25	3
E施設	1995年	【生物膜法】 沈殿分離槽前置接触曝気方式	370	72.4	20	25	50	40	4

また，調査対象医薬品とその定量下限値を表2に示す．これら15種類の医薬品は、いずれも日本国内で一般に広く使用されているもので，都市地域の公共下水道での検出事例がある．

流入水について，調査対象とした医薬品15種類は，調査した全ての流入水から検出され，その濃度が最も低かったのはGriseofulvinで2ng/L，最も高かったのはCaffeineで21,746ng/Lであった．そして，検出された医薬品のうち，Sulpiride, DEET, Crotonamiton, Griseofulvinの4種類については公共下水道での既報における最大検出濃度を上回る高濃度になる施設が存在していた．この結果から，集落排水施設に多様な医薬品が，場合によっては公共下水道よりも高濃度で流入することが明らかとなった．

処理水についても，流入水と同様に15種類の医薬品が，調査したすべての処理水から検出された．その濃度が最も低かったのはGriseofulvinで3ng/L，最も高かったのはBenzophenoneで5,536ng/Lであった．しかし，処理方式として活性汚泥法を採用する施設(A～D施設)では，ほとんどの医薬品の濃度が，流入水よりも低かった．図1に流入水から見た処理水での濃度低下率を示す．これを見ると，A～D施設での医薬品濃度低下率は，微生物分解性の高いCaffeine, Bezafibrateは全施設で80%以上，微生物分解性が中位程度のKetoprofenやIndomethacinでは施設によって幅があったものの50%から90%程度であった．そして，微生物によって分解されにくいCarbamazepineやPropyphenazoneも施設によっては30%程度の濃度低下率が得られた．これらの結果から，活性汚泥法の集落排水施設は，生活排水中の医薬品を低濃度化させる有効な機能を有していることが示された．一方，生物膜法の施設では，9種類の医薬品の濃度低下率が活性汚泥法施設より低く，医薬品除去能力が活性汚泥法の施設と比較して低い可能性が考えられた．

次に，集落排水施設での医薬品除去が，生活排水由来医薬品による生態リスクに与える影響を検討するため，流入水および処理水に対して，PNEC(予測無影響濃度)の文献値が得られた11種類の医薬品についての生態リスク評価を行

表2 調査対象医薬品と定量下限値

種類	成分名	利用形態	定量下限値 (ng・L ⁻¹)
紫外線吸収剤	Benzophenone	外用	8.6
	Crotamiton	外用	0.9
鎮痒剤	Lidcaine	外用	0.8
	N,N-Diethyl-m-toluidide(DEET)	外用	2.0
防虫剤	Indomethacin	外用・内服	5.6
	Propyphenazone	外用・内服	0.6
	Ketoprofen	内服	1.3
	Naproxen	内服	4.9
強心剤	Caffeine	内服	6.7
抗潰瘍剤	Sulpiride	内服	0.9
抗脂血症用剤	Bezafibrate	内服	7.6
	Clofibrac acid	内服	3.8
抗真菌剤	Griseofulvin	内服	2.1
抗生物質	Clarithromycin	内服	0.4
抗てんかん剤	Carbamazepine	内服	1.3

った。その結果，流入水時点ではリスク評価値が1を上回り，生態系へのリスクが危惧されるレベルと評価された施設がKeto profenで5施設，Clarithromycinで4施設存在していた。しかし，処理水では，一般的に処理水が水環境中で10倍程度希釈されることを想定すると，11種類の医薬品全てが，生態系に悪影響を及ぼすことが危惧される濃度には達していなかった。この結果から，集落排水施設は生活排水に混入する医薬品による生態リスクを低減させる重要な役割を果たしていることが明らかとなった。

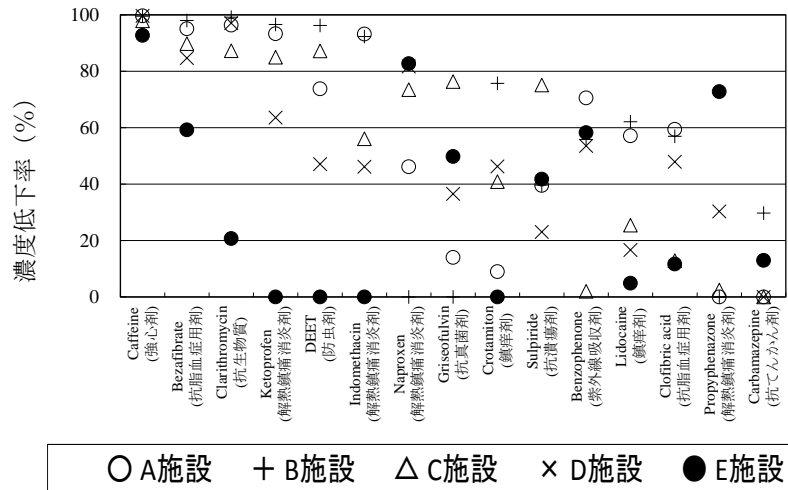


図1 流入水から見た処理水での濃度低下率

3. ため池が有する医薬品濃度低下機能

次に，愛媛県B市内で実稼働中の集落排水施設からの処理水と，その処理水が送水された農業用ため池で2013年6月14日から9月7日にかけて調査を行った。図2に，調査ため池の概要と採水地点を示す。調査期間中は処理水とため池からの流出水について週1回程度採水を行い，8月21日にはため池内の水深方向についても採水を行った。そして，採水した試料に対して5種類の医薬品(Bezafibrate: 抗脂血症用剤, Carbamazepine: 抗てんかん剤, Crotamiton: 鎮痒剤, DEET: 防虫剤, Ketoprofen: 解熱鎮痛消炎剤)の分析を行った。これらの医薬品は，上述した愛媛県A市の集落排水施設の処理水から検出された医薬品の中から，集落排水施設での除去性能が異なるものを選択した。すなわち，Bezafibrateは濃度低下率が高く，DEET, Ketoprofenは中位程度，Carbamazepine, Crotamitonは低位，もしくはほとんど除去されない成分であった。調査期間中に，処理水については9回，流出水については10回採水を行い，医薬品についての分析を行った。

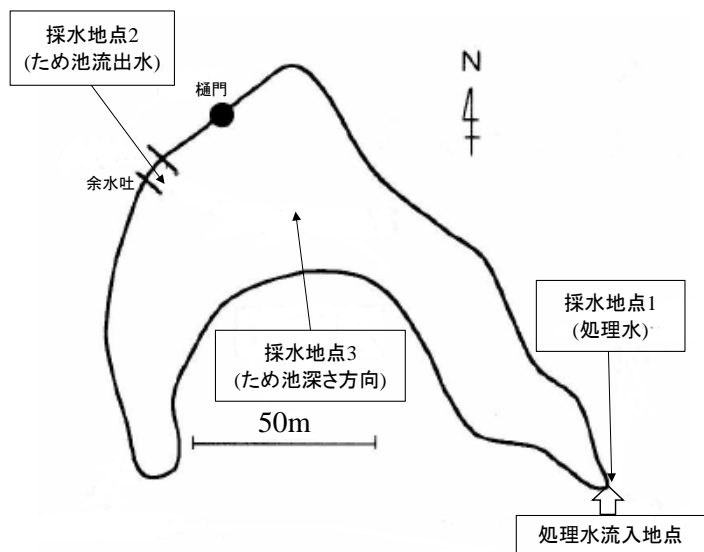


図2 調査ため池の概要と採水地点

図3に調査期間中における処理水と流出水の濃度変化を示す。その結果，流出水中の医薬品濃度は常に同日の調査結果における処理水の濃度より低い値であった。調査期間中における処理水の平均濃度はBezafibrateが45.6ng/L，Carbamazepineが108.4ng/L，Crotamitonが967.2ng/L，DEETが318.1ng/L，Ketoprofenが61.4ng/Lであったのに対し，流出水の平均濃度はそれぞれ，7.0ng/L，16.5ng/L，130.1ng/L，42.9ng/L，1.0ng/Lであった。この結果から，調査した農業用ため池

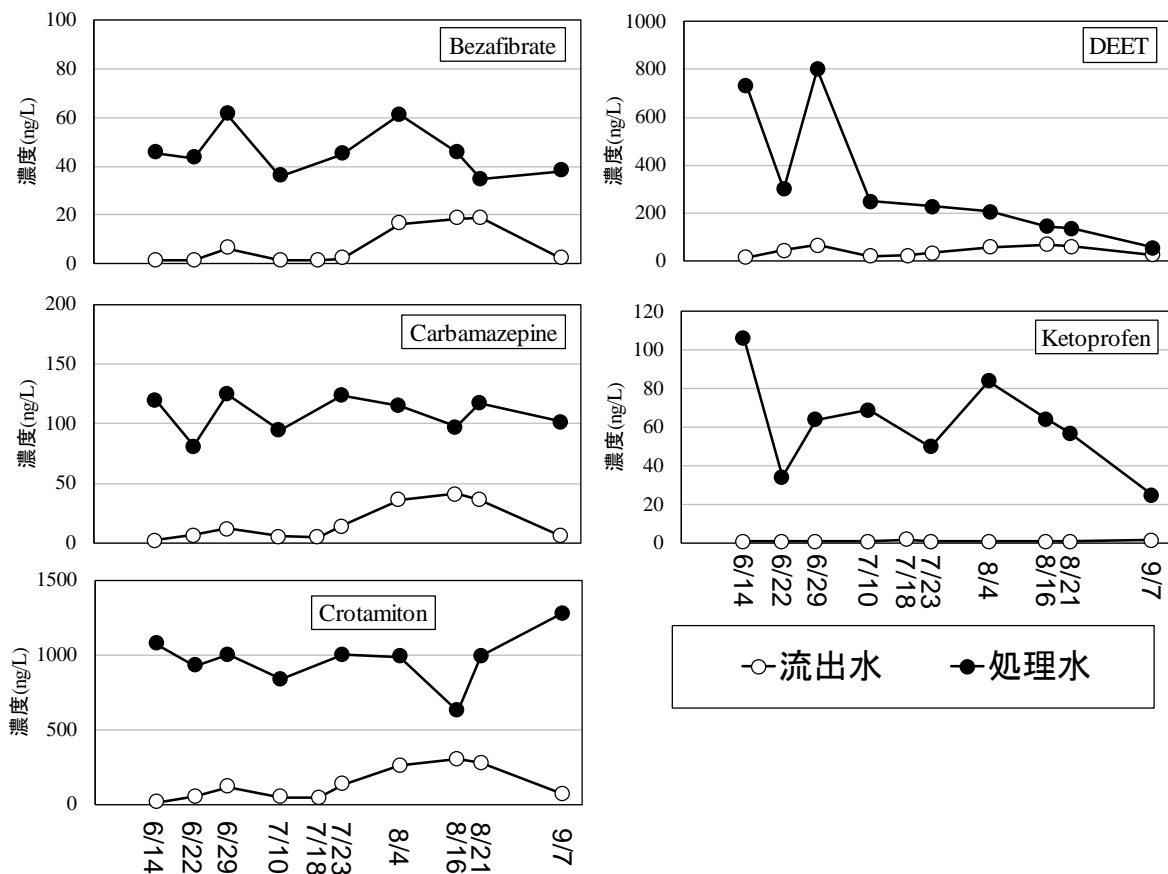


図3 処理水と流出水の医薬品濃度変化

は、処理水中の医薬品濃度を低下させる機能を有していたことが明らかとなった。

調査期間中の処理水および流出水の医薬品の平均濃度からため池内の濃度低下率を計算したところ、Bezaifibrateが85%、Carbamazepineが85%、Crotamitonが87%、DEETが87%、Ketoprofenが98%という高い濃度低下率が得られた。この要因としては、降雨のなかった8月4日から8月21日の期間中にKetoprofenを除く4種類の医薬品の濃度が上昇していたことから、ため池への流入水量が影響した可能性が考えられた。そこで、調査期間中におけるため池内への流入水量を試算した結果、処理水は集水域からの降雨に伴う流出水で約8倍程度希釈されていた。したがって、ため池での濃度低下の大きな要因の一つは、ため池内での希釈であると考えられた。また、Ketoprofenの濃度低下率98%は、希釈だけでは説明できない高い値であったが、Ketoprofenは光分解性の高い成分として知られていることから、この高い濃度低下率の要因は光分解にあると考えられた。以上のことから、ため池では、集落排水施設で比較的生態リスクが高いと評価されたKetoprofenに代表される光分解性の高い医薬品に対して特に高い濃度低下効果が期待でき、集落排水施設での濃度低下率が低いCarbamazepine、Crotamitonのような難分解性の医薬品に対しても高い効果が得られることが示唆された。

8月21日にはため池の水深方向の調査を行った。その結果、Bezaifibrate、Carbamazepine、Crotamiton、DEETの4成分は、表層のほうが底層より濃度が高い傾向がみられ、ため池内では水深によって医薬品濃度が不均一であったことが明らかとなった。この原因としては、同調査日における調査ため池では水温躍層が存在しており、流入した処理水が主に水温躍層より上層に流入しやすかったことが理由であると考えられた。ただし、表層水であってもその医薬品濃度は上述したように処理水と比較すると大幅に低く、水温躍層が生じ、完全混合状態にない場合でも、ため池内で大きな医薬品濃度低下効果が得られることが示された。また、Ketoprofenについては、すべての水深において検出限界以下

の低い濃度であった。これは、ため池に流入した処理水が主に表層付近に流入したことにより、Ketoprofenが太陽光によって効率的に光分解された結果であると考えられた。

4. 総括

本研究では、実稼働中の集落排水施設(5施設)と、集落排水施設からの処理水を送水した農業用ため池で医薬品に関する調査を行った。

まず、集落排水施設での調査の結果、集落排水施設への流入水、および集落排水施設から放流される処理水から、調査対象とした15種類の医薬品全てが検出され、集落排水施設で多様な医薬品が流入、流出している実態が明らかとなった。一方で、ほとんどの医薬品で、処理水の濃度および生態リスク評価値は、流入水よりも低下しており、一般的に処理水が水環境中で10倍程度希釈されることを想定すると、処理水中の医薬品濃度は生態リスク無しのレベルと評価できた。以上のことから、集落排水施設は生活排水に混入する医薬品を低濃度化させ、水環境に対する生態リスクを低減させる有効な機能を有していることが明らかとなった。

また、処理水を送水した農業用ため池で調査(灌漑期：10回)を行った結果、調査対象とした5種類の医薬品は、ため池からの流出水の濃度が、ため池に流入する処理水の濃度より常に低く、ため池が処理水の医薬品濃度を低下させる機能を有していることが明らかとなった。そして、その主な要因は希釈と光分解であることが示唆され、Ketoprofenに代表される光分解性の高い医薬品や、CarbamazepineやCrotamitonに代表される難分解性の医薬品に対しても高い濃度低下効果が期待できることが示唆された。

以上のように、本研究では、農業集落排水施設や処理水を送水した農業用ため池における医薬品の存在実態を明らかにし、農業集落排水施設やため池が農村地域における医薬品対策として有効であることを示した。