

医薬品類の水道水源での実態及び浄水処理性について

大阪市水道局 鶴田 朋子
林 広宣

1. はじめに

近年、医薬品類及びその代謝物による水環境中の生態系への影響や人体への健康影響が懸念されるようになり、国内外で関心を集めている。医薬品類の水環境中への流出経路は一般家庭をはじめ、畜産施設、医療機関等の排水、下水処理場からの放流水や、水産用医薬品のように養魚場等から直接河川へ排出されるものなどがある。医薬品類は水溶性が高く、生分解性が低い物質が多いため、通常の下水処理では除去されにくい物質が多く含まれていると考えられている^{1)~3)}。よって、医薬品類の水環境中への排出源は下水処理場の放流水が主であると考えられており、河川水や浄水中に残留する可能性が懸念されている。また、医薬品類は元来生理活性を持つように設計されている物質がほとんどであることから、人体・生態系に何らかの影響を及ぼすことが懸念されるが、そのリスク評価に関する知見は現状では数少なく、国内では水質基準値等の設定はなされていない。そのため、医薬品類の水道水源における実態及び浄水処理性を明らかにすることは、お客様に安心して水道水を利用していただくために重要であると考えられる。本研究では、本市の水道水源である淀川水系の河川水とその流域の事業所排水の実態調査、及び本市の高度浄水処理の一部であるオゾン・GAC処理による医薬品類の除去性に関する調査を行った。

2. 分析方法

2.1 調査対象医薬品類及び分析方法

調査対象医薬品類を表-1に示す。試料は既報⁴⁾に従い、固相抽出-LC-MS/MS法により前処理・分析を行った。

2.2 試料の定量

定量は0~200あるいは500ng/Lの範囲で作成した回収検量線を用いて行った。下水処理場放流水は前処理後の試料を2倍希釈し、それ以外の試料は希釈せずに定量した。ただし、検量線の濃度範囲を超える物質については、試料を検量線の濃度範囲内の濃度になるよう希釈して定量を行った。柴島浄水場原水及び宇治川上流・下流、木津川下流、桂川下流の試料については、固相抽出及びLC-MS/MS分析におけるマトリクスの影響を簡便に補正するため、小西らの報告を参考にして⁵⁾、一点標準添加法により補正を行った。

表-1 調査対象医薬品類及び定量下限値

化合物名	使用用途	定量下限値 (ng/L)	化合物名	使用用途	定量下限値 (ng/L)
1 イオバミドール	X線造影剤	2	38 ヌビリソール	解熱/鎮痛/消炎剤	0.6
2 アセトアミノフェン	解熱/鎮痛/消炎剤	2	39 カルバマゼピン	抗てんかん薬	0.8
3 イオプロミド	X線造影剤	20	40 タイロシチン	抗生物質	0.7
4 カフェイン	神経興奮剤	10	41 イソプロピルアンチピリン	解熱/鎮痛/消炎剤	0.5
5 アマンタジン	パーキンソン病薬	4	42 シプロヘプタジン	アレルギー性疾患治療剤	0.5
6 サリチルアミド	解熱/鎮痛/消炎剤	0.8	43 アゼラスチン	アレルギー性疾患治療剤	2
7 アンチピリン	解熱/鎮痛/消炎剤	0.2	44 オキサトミド	アレルギー性疾患治療剤	2
8 プリドニン	抗けいれん剤	0.2	45 クラシロマイシン	抗生物質	1
9 メトプロロール	血圧降下剤	0.6	46 クロフィブリン酸	高脂血症剤代謝物	0.7
10 ケトフェン	抗ヒスタミン剤	0.6	47 ベザフィラート	高脂血症剤	2
11 サリチル酸	角質軟化・抗白癬剤	10	48 クレマスチン	抗ヒスタミン剤	2
12 スルファミトキシチン	合成抗菌剤	0.4	49 テルフェナジン	アレルギー性疾患治療剤	3
13 ジフェンヒドラミン	抗ヒスタミン剤	0.9	50 エドラク	解熱/鎮痛/消炎剤	0.5
14 ジルチアゼム	血圧降下剤	0.8	51 ジクロフェナク	解熱/鎮痛/消炎剤	3
15 フェニトイン	抗けいれん剤	10	52 イブプロフェン	解熱/鎮痛/消炎剤	10
16 トリヘキシフェニジル	パーキンソン病薬	4	53 メフェナム酸	解熱/鎮痛/消炎剤	0.7
17 ビロキシカム	消炎鎮痛剤	0.2	54 フェオフィラート	高脂血症剤	4
18 スリンダク	解熱/鎮痛/消炎剤	0.6	55 ユチニン	ニコチン代謝物	4
19 ペラバール	不整脈治療薬	1	56 イオバルソール	X線造影剤	16
20 トルメチン	解熱/鎮痛/消炎剤	0.5	57 イオヘキソール	X線造影剤	50
21 ナプロキセン	解熱/鎮痛/消炎剤	2	58 イオキシチン	X線造影剤	10
22 フェンブフェン	解熱/鎮痛/消炎剤	3	59 ビレンゼピン	胃酸抑制薬	0.5
23 ケトプロフェン	解熱/鎮痛/消炎剤	2	60 トリメプリーム	抗生物質	2
24 クロタミド	鎮痛剤	0.5	61 メトクロプラミド	消化器機能異常治療剤	0.7
25 ジフェニルピラリチン	抗ヒスタミン剤	1	62 シソピラミド	不整脈治療薬	1
26 ジフルニサル	解熱/鎮痛/消炎剤	3	63 プロプラノロール	不整脈治療薬	1
27 インドメタシン	解熱/鎮痛/消炎剤	0.8	64 ハロベリドール	抗精神病薬	3
28 アセメタジン	解熱/鎮痛/消炎剤	0.9	65 ディゴキシン	強心剤	1
29 フルフェナム酸	解熱/鎮痛/消炎剤	2	66 イミプラミン	抗うつ剤	1
30 テオフィリン	気管支拡張剤	10	67 フロセミド	ループ利尿剤	3
31 アチノロール	不整脈治療薬	0.8	68 フルボキサミン	抗うつ剤	2
32 ソラロール	不整脈治療薬	0.5	69 アミトリプチリン	抗うつ剤	2
33 スルピリド	抗鬱/胃腸薬	0.9	70 ナリジクス酸	合成抗菌剤	2
34 スルファミトキサゾール	合成抗菌剤	1	71 フェノプロフェン	解熱/鎮痛/消炎剤	2
35 エチンザミド	解熱/鎮痛/消炎剤	0.7	72 グリベンクラミド	血糖降下剤	2
36 テノキシカム	解熱/鎮痛/消炎剤	0.6	73 ゲンフィロジル	高脂血症剤	2
37 フェナセチン	解熱/鎮痛/消炎剤	0.9			

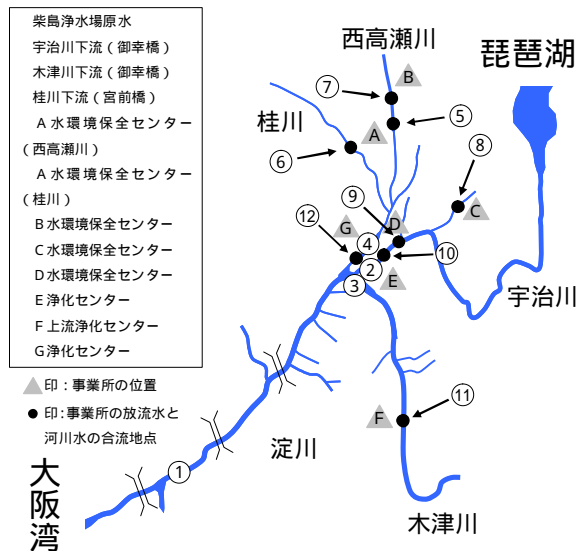
3. 調査方法

3.1 水源実態調査

淀川上流の三川合流地点（宇治川下流（御幸橋）、木津川下流（御幸橋）、桂川下流（宮前橋））及び各河川上流部に存在する下水処理場の放流水について、医薬品類の実態調査を平成21年6月24日、7月22日（三川合流地点のみ）9月30日、12月16日、平成22年2月24日に行った。なお、各調査日の翌日に柴島浄水場原水の実態調査を併せて行った。調査地点を図-1に示す。

3.2 オゾン処理実験

オゾン発生装置 WAT-08（ラウンドサイエンス社製）を用いてパッチ式のオゾン処理実験を行った。沈殿処理水（水温24.2℃）に医薬品類標準液を500ng/Lとなるよう添加した試料1Lに、オゾンガスをマグネチックスターラーで攪拌しながら流量0.1L/min、発生濃度10mg/Lで0、5、10分間注入後、直ちにアスコルビン酸ナトリウムで試料中の残留オゾンを分解し、固相抽出-LC-MS/MS法により分析を行った。



3.3 GAC カラム実験

直径 2cm、長さ 90cm の円筒形カラムに未使用（以下新炭）及び実際に約 4 年使用後（以下経年炭）の粒状活性炭（以下 GAC）を層厚 70cm となるよう充填したものを実験に用いた。水温を 8、28、40（新炭）及び 2、19、30、43（経年炭）に調整した砂ろ過処理水に医薬品類標準液を約 200～500ng/L（低濃度）約 1000～2000ng/L（高濃度）となるよう添加し、流速 12mL/min で 1 時間以上通水後、採水し固相抽出-LC-MS/MS 法により分析を行った。

4. 結果及び考察

4.1 水源実態調査

4.1.1 本川

宇治川下流、木津川下流、桂川下流において、定量下限値以上の濃度で検出された 48 物質について、5 回の調査の平均値、最高値、最低値及び検出回数を表-2 に示す。なお、表-2 には 3 地点の調査日の翌日に採水した柴島浄水場原水（淀川下流）の調査結果についても示した。

定量下限値以上の濃度で検出した物質数は、宇治川下流で 33 物質、木津川下流で 29 物質、桂川下流で 47 物質であった。平均検出濃度が 100ng/L 以上の物質数は、それぞれ 2、4、10 物質、10ng/L 以上 100ng/L 未満の物質数はそれぞれ 7、4、17 物質であった。各調査日について、各地点での定量下限値以上の濃度で検出した物質数と濃度を原水と比較すると、宇治川下流では検出物質数が原水とほぼ一致しており、その濃度は多くの物質で原水と同等あるいは少し低いレベルであった。木津川下流では検出物質数が原水よりやや少なく、低濃度である物質が多く見られたが、桂川下流は検出物質数が多く、高濃度である傾向が見られた。これらの傾向はすべての調査日で共通して見られた。原水の平均検出濃度が 100ng/L 以上であったイオパミドール、クロタミトン、イオヘキソールは、いずれの地点においても高濃度・高頻度で検出されたことから、これらの物質は淀川上流部においても高濃度で存在することが推定された。

4.1.2 下水処理場放流水

淀川上流に存在する主要な下水処理場について、8 箇所の採水地点のうち、上流の各河川に流入する 4 地点の下水処理場放流水の実態調査結果について、定量下限値以上の濃度で検出された 54 物質の平均値、最高値、最低値及び検出回数を表-3 に示す。なお、定量は 2 倍希釈した試料で行ったため、すべての物質の定量下限値は表-1 に示した値の 2 倍となっている。

4 回の調査のうち、8 箇所の調査地点において定量下限値以上の濃度で検出した物質は、それぞれ 32～51 物質であった。平均検出濃度が 1000ng/L 以上の物質は 2～6 物質、100ng/L 以上 1000ng/L 未満の物質は 6～15 物質、10ng/L 以上 100ng/L 未満の物質は 10～19 物質であった。表-2 で原水の検出濃度がすべての調査日で 100ng/L 以上であったイオパミドール、イオヘキソールは、いずれの採水地点においても最低値が 1000ng/L を上回っており、これらの物質が放流水中に高濃度含まれることが確認された。また、上記の 2 物質と同様に原水の平均検出濃度が 100ng/L 以上であったクロタミトンは、7 地点で平均値が 1000ng/L

表-2 本川実態調査結果

平均 検出回数
最高 最低

	単位：ng/L			
	宇治川下流 (御幸橋)	木津川下流 (御幸橋)	桂川下流 (宮前橋)	淀川下流 (柴島原水)
1 イオパミドール	497 799	5 98.2	228 370	5 49.6
2 アセトアミノフェン	2.4 12.2	1 <2	3.1 8.1	2 <2
3 イオプロミド	<20 <20	0 <20	<20 <20	2 29.8
4 カフェイン	94.0 134	5 49.0	151 225	5 66.8
5 アマンタジン	7.3 13.8	4 <4	4.7 10.1	3 <4
6 サリチルアミド	2.1 5.1	4 <0.8	3.8 6.2	5 1.1
7 アンチピリン	<0.2 <0.2	0 <0.2	<0.2 <0.2	0 0.8
8 プリミドン	1.1 2.4	4 <0.2	0.9 2.5	4 <0.2
9 メトプロロール	0.9 2.1	3 <0.6	<0.6 <0.6	0 3.0
10 ケトチフェン	<0.6 <0.6	0 <0.6	<0.6 <0.6	1 1.4
11 サリチル酸	<10 12.5	1 <10	<10 17.7	1 36.8
12 スルファジメトキシ	<0.4 0.6	2 <0.4	1 1.0	0.7 1.1
13 ジフェンヒドラン	4.8 11.3	4 <0.9	2 2.6	32.3 67.0
14 ジルチアゼム	1.2 2.5	3 <0.8	<0.8 <0.8	7.3 11.8
15 フェニトイン	<10 <10	0 <10	<10 <10	2 18.5
18 スリンダク	<0.6 <0.6	0 <0.6	<0.6 <0.6	2 0.7
19 ベラパミル	<1 <1	0 <1	0 <1	1 2.3
23 ケトプロフェン	2.3 5.3	3 <2	<2 <2	0 34.7
24 クロタミトン	97.9 159	5 64.2	149 215	5 81.4
27 インドメタシン	2.4 5.0	4 <0.8	1.6 3.3	4 <0.8
30 テオフィリン	49.2 135	4 <10	60.8 118	5 17.1
31 アテノロール	9.0 13.6	5 4.5	1.4 2.9	3 <0.8
33 スルピリド	39.0 61.3	5 7.3	27.7 46.4	5 6.3
34 スルファメトキサゾール	6.5 9.5	5 1.6	7.0 14.1	4 <1
35 エテンザミド	0.8 1.2	4 <0.7	1.3 2.2	5 0.8
37 フェナセチン	<0.9 <0.9	0 <0.9	<0.9 <0.9	0 1.8
39 カルバマゼピン	5.1 7.0	5 2.2	3.9 5.8	5 1.7
41 イソプロピルアンチピリン	<0.5 <0.5	0 <0.5	1 <0.5	0 <0.5
45 クラリスロマイシン	11.7 25.0	5 1.0	2.8 8.3	3 <1
46 クロフィプリン酸	0.8 2.2	2 <0.7	<0.7 <0.7	0 7.9
47 ベザフィプラート	12.2 25.1	5 5.8	10.2 24.0	5 2.4
50 エトドラク	7.9 13.2	5 2.7	2.8 5.0	5 1.4
51 ジクロフェナク	3.2 5.7	3 <3	<3 <3	0 31.0
52 イブプロフェン	<10 <10	0 <10	<10 <10	1 36.1
53 メフェナム酸	<0.7 1.4	3 <0.7	1 <0.7	4.3 6.1
55 コチニン	9.5 16.3	5 4.7	7.8 14.4	4 <4
56 イオベルソール	<16 21.0	2 <16	<16 <16	2 260
57 イオヘキソール	277 394	5 73.8	197 354	5 58.5
59 ビレンゼピン	1.7 2.6	5 0.8	0.6 1.2	3 <0.5
60 トリメトプリム	<2 4.3	3 <2	<2 2.0	1 <2
61 メトクロプラミド	<0.7 <0.7	0 <0.7	<0.7 <0.7	0 5.7
62 ジソピラミド	13.3 20.1	5 7.1	5.7 10.3	5 1.6
63 プロプラノロール	<1 <1	0 <1	0 <1	<1 1.7
66 イミプラミン	<1 <1	0 <1	0 <1	<1 1.3
67 フロセミド	<3 <3	0 <3	<3 <3	3 75.1
69 アミトリプチリン	<2 <2	0 <2	0 <2	1 3.5
70 ナリジクス酸	<2 2.7	1 <2	<2 3.2	2 <2
71 フェンプロフェン	<2 <2	0 <2	<2 <2	0 39.7

以上であり、すべての調査日で検出されたが、表-3に示したオゾン処理が導入されているB水環境保全センターでは平均値、最高・最低値ともに他の採水地点と比べ、大幅に低い値であった。クロタミトン以外に、B水環境保全センター以外の放流水の平均検出濃度が100ng/L以上であったジフェンヒドラミン、スルピリド、クラリスロマイシンについても、他の採水地点と比べ、大幅に低い平均検出濃度であったことから、これらの物質の除去に対し、オゾン処理が有効に働いていることが推察された。

4.2 オゾン処理実験

オゾン処理実験の結果を表-4に示す。73物質中、30物質が3.2の条件で5分間のオゾン処理により完全に分解された。さらに、42物質が10分間で完全に分解され、57物質が80%以上の除去率であったことから、調査対象の医薬品類の除去に対し、オゾン処理が有効であることが示唆された。一方、イオパミドール、イオプロミド、イオベルソール、イオヘキソール、イオキシランのX線造影剤とコチニンは10分後も50%以上が残存していた。

4.3 GAC カラム実験

表-5にGACカラムの物理吸着能の指標として紫外線吸光度(水温:新炭28、経年炭30、2000ng/L添加時)の除去率を示す。GACカラムによる医薬品類の除去率を調査した結果、新炭ではいずれの物質も除去率がすべての水温・添加濃度においてほぼ100%であったことから、新炭の高い吸着能により医薬品類が除去されると考えられた。一方、経年炭では物理吸着能は低下し、付着する生物による処理機能が働くと考えられる。図-2にGACカラム(経年炭)の生物処理能の一例として、アンモニア態窒素の除去率を示す。図-2から除去率は水温30において100%となり、水温2、43では20%未満に低下した。これに対し、各水温における医薬品類の除去率を調べた結果、一部の物質を除き、水温2、43においても除去率がほぼ100%であったことから、主に物理吸着能によって除去されていると考えられた。しかし、図-3に示した物質については、43では低濃度添加時の除去率が80%未満となった。イオパミドール、イオヘキソールはすべての水温において除去率が低濃度添加では40%未満、高濃度添加では80%未満となり、GACの吸着性能が低下すると、これらの物質に対する除去性能の低下が顕著であることが確認された。また、水温43では除去率がマイナス(イオヘキソール高濃度添加を除く)となったことから、GACから脱着しているのではないかと考えられた。本実験で用いた経年炭は物理吸着能がある程度残存していたと考えられることから、生物処理による医薬品類の除去特性についての評価は別途調査が必要と考えられる。

5.まとめ

- 1) 淀川上流の宇治川・木津川・桂川の実態調査を行った結果、原水中の平均検出濃度が高い値であったイオパミドール、カフェイン、クロタミトン、イオヘキソールは、いずれの調査地点においても高濃度・高頻度で検出された。
- 2) 淀川に流入する下水処理場放流水の実態調査を行った結果、原水中の濃度がすべての調査日において

表-3 下水処理場放流水実態調査結果

平均
濃度
最高
最低
単位: ng/L

	A水環境保全センター (桂川)		B水環境保全センター		E浄化センター		F上流浄化センター	
	平均 濃度	最高 最低	平均 濃度	最高 最低	平均 濃度	最高 最低	平均 濃度	最高 最低
1	イオパミドール	9520 12200	4 7854	6933 4390	4 7884	6241 4217	4 4906	4 2117
2	アセトアミノフェン	155 471	4 36.3	225 892	2 4	73.5 104	4 44.4	<4 <4
3	イオプロミド	<40 56.3	1 4	<40 4	0 4	<40 40	0 40	<40 40
4	カフェイン	317 1143	4 25.0	718 2845	2 4	138 505	2 40	<20 40
5	アマンタジン	108 135	4 88.2	55.7 80.2	4 27.1	187 256	4 161	4 112
6	サリチルアミド	28.0 97.2	3 1.6	31.4 11.7	3 1.6	4.1 7.1	3 1.6	<1.6 1.6
7	アンチピリン	1.0 2.2	3 0.4	<0.4 0.4	0 0.4	0 0.4	0 0.4	<0.4 0.4
8	プリミドン	7.9 16.0	4 4.7	2.5 4.2	4 1.3	20.2 42.0	4 12.3	3.3 4.0
9	メブプロロール	6.0 7.0	4 4.9	<1.2 2.6	<1.2 1.2	7.0 10.6	4 4.9	6.9 8.4
10	ケトフェン	10.9 33.7	4 2.2	<1.2 1.2	<1.2 1.2	13.6 41.3	4 3.4	31.8 111
11	サリチル酸	46.1 184	1 20	109 397	2 20	<20 20	0 20	<20 20
12	スルファジメキシソ	<0.8 0.9	2 0.8	<0.8 0.8	0 0.8	<0.8 0.8	0 0.8	<0.8 0.8
13	ジフェンヒドラミン	231 466	3 1.8	50.9 150	2 1.8	171 396	3 1.8	215 346
14	ジルチアゼム	35.9 63.0	4 16.3	<1.6 1.6	<1.6 1.6	31.7 52.4	4 8.2	18.4 53.6
15	フェニトイン	35.5 39.1	4 31.0	<20 20	<20 20	78.2 109	4 58.2	40.6 54.0
18	スリダク	2.0 2.8	4 1.2	<1.2 1.2	<1.2 1.2	4.3 6.3	4 2.7	<1.2 1.2
19	ペラミル	3.0 9.1	2 2	<2 2	<2 2	3.0 9.1	2 2	<2 2.3
21	ナプロキセン	4.7 9.4	2 4	<4 4	<4 4	4 4	0 4	<4 4
23	ケトプロフェン	238 364	4 106	80.3 155	4 27.1	342 496	4 236	11.3 24.2
24	クロタミトン	2250 3414	4 1556	73.5 242	3 1	6640 3779	4 1516	898 416
26	ジフルニサル	<6 6	<6 6	<6 6	<6 6	12.0 6	<6 6	<6 6
27	インドメタシン	136 243	4 80.5	<1.6 1.6	<1.6 1.6	83.3 112	4 12.0	<1.6 3.9
29	フルフェナム酸	8.0 21.0	3 4	<4 4	<4 4	4 13.8	4 4	<4 4
30	テオフィリン	420 1513	4 27.1	769 3075	1 20	218 446	4 46.3	<20 28.0
31	アテロロール	113 143	4 67.3	46.7 88.6	4 13.8	198 233	4 111	159 216
32	ソタロール	<1 1	<1 1	<1 1	<1 1	4.0 6.1	3 1	8.2 15.9
33	スルピリド	688 917	4 487	91.1 248	4 1245	950 683	4 871	645 500
34	スルファメトキサゾール	18.3 32.0	4 9.5	<2 2	<2 2	21.7 36.0	4 8.5	12.5 22.0
35	エテンザミド	18.1 24.0	4 13.1	6.2 14.8	4 1.4	36.8 50.0	4 25.9	13.2 16.2
37	フェナセチン	<1.8 1.8	0 1.8	<1.8 1.8	<1.8 1.8	2.0 2.0	<1.8 1.8	<1.8 1.8
39	カルバマゼピン	59.8 74.2	4 46.1	4.8 19.2	1 1.6	104 133	4 86.4	9.2 19.2
41	イソプロピルアンチピリン	<1 2.0	2 1	<1 1	<1 1	<1 1	0 1	<1 1
42	シプロヘプタジン	<1 1	<1 1	<1 1	<1 1	1.6 1.6	<1 1	<1 1
45	クラリスロマイシン	438 826	4 197	40.3 70.0	4 3.9	166 346	4 52.3	329 552
46	クロフィブリン酸	14.5 24.2	4 5.4	<1.4 1.5	1 1.4	2.6 3.0	4 2.2	<1.4 1.4
47	ベザフィプラート	334 630	4 126	203 513	4 22.3	517 770	4 357	235 504
50	エトドラク	128 178	4 75.3	7.0 28.0	1 1	20.2 55.7	3 1	<1 1
51	ジクロフェナク	70.9 103	4 20.0	<6 11.1	1 6	74.0 116	3 6	<6 6
52	イブプロフェン	<20 20	0 20	<20 20	<20 20	0 20	0 20	<20 20
53	メフェナム酸	11.2 16.3	3 1.4	<1.4 1.4	0 1.4	10.3 24.0	3 1.4	<1.4 1.4
55	コチニン	27.5 50.9	4 12.3	61.5 172	4 17.2	14.8 21.0	4 10.2	32.4 71.1
56	イオベルソール	598 789	4 420	209 329	4 64.2	532 867	4 196	<32 87.5
57	イオヘキソール	5662 7593	4 3942	4552 5240	4 4147	3469 5722	4 2259	14445 19844
58	イオキシラン	<20 20	0 20	<20 20	<20 20	21.5 65.6	2 20	<20 20
59	ビレンゼピン	11.0 14.9	4 8.4	1.2 3.7	2 1	21.8 31.6	4 12.4	3.2 5.5
60	トリメトプリム	43.1 82.0	4 20.1	<4 6.1	<4 4	33.8 62.0	4 15.0	20.2 35.4
61	メクロプロミド	5.4 6.2	4 4.6	<1.4 1.7	1 1.4	6.9 8.9	4 5.0	2.6 4.4
62	ジソピラミド	151 232	4 79.0	70.9 104	4 20.4	302 382	4 155	192 238
63	プロプラノロール	4.5 5.3	4 4.0	<2 2	<2 2	8.1 9.2	4 6.4	<2 2
66	イミプラミン	13.5 47.3	3 2	<2 2	0 2	16.9 54.7	4 3.4	<2 2
67	フロセミド	136 224	4 68.8	6.6 26.3	1 6	116 240	4 13.1	<6 6
69	アミトリプチリン	<4 10.1	2 4	<4 4	<4 4	9.0 14.0	3 4	6.8 11.6
70	ナリジクス酸	13.5 23.4	4 4.9	<4 4.7	<4 4	16.5 27.8	4 7.6	55.2 125
72	グリベンクラミド	7.7 14.1	3 4	<4 4	<4 4	14.9 24.9	4 5.2	<4 4

表-4 オゾン処理実験結果

除去率(%)		5分後	10分後	除去率(%)		5分後	10分後
1	イオパミドール	26	36	38	メピリゾール	81	100
2	アセトアミノフェン	94	99	39	カルバマゼピン	100	100
3	イオプロミド	11	42	40	タイロシン	100	100
4	カフェイン	64	98	41	イソプロピルアンチピリン	100	100
5	アマンタジン	35	63	42	シプロヘキサジン	100	100
6	サリチルアミド	99	100	43	アゼラスチン	99	99
7	アンチピリン	100	100	44	オキサトミド	100	100
8	プリミドン	25	56	45	クラリスロマイシン	99	99
9	メトプロロール	91	100	46	クロフィリン酸	34	55
10	ケトチフェン	100	100	47	ベザフィプラート	71	98
11	サリチル酸	97	98	48	クレマスチン	99	100
12	スルファジメトキシ	100	100	49	テルフェナジン	98	99
13	ジフェニヒドラミン	99	100	50	エトドラク	100	100
14	ジルチアゼム	99	100	51	ジクロフェナク	100	100
15	フェニトイン	49	71	52	イブプロフェン	44	69
16	トリヘキシフェニジル	100	100	53	メフェナム酸	100	100
17	ピロキシカム	100	100	54	フェノフィプラート	48	64
18	スリダク	100	100	55	コチニン	15	37
19	ペラパミル	99	100	56	イオベルゾール	28	41
20	トルメチン	100	100	57	イオヘキソール	25	39
21	ナプロキセン	100	100	58	イオキシラン	19	40
22	フェンブフェン	45	69	59	ピレンゼピン	100	100
23	ケトプロフェン	39	62	60	トリメトプリム	100	100
24	クロタミト	100	100	61	メトクロプラミド	100	100
25	ジフェニルピラリン	99	99	62	ジソピラミド	71	100
26	ジフルニサル	99	100	63	プロプラノロール	100	100
27	インドメタシン	100	100	64	ハロペリドール	99	100
28	アセメタシン	100	100	65	ディゴキシン	55	81
29	フルフェナム酸	96	97	66	イミプラミン	100	100
30	デオフィリン	94	98	67	フロセミド	100	100
31	アテノロール	91	100	68	フルボキサミン	57	86
32	ソタロール	100	100	69	アミドリプテリン	100	100
33	スルピリド	98	99	70	ナリジクサ酸	56	96
34	スルファメトキサゾール	100	100	71	フェルプロフェン	48	76
35	エテンザミド	31	67	72	グリベンクラミド	62	81
36	デノキシカム	100	100	73	ゲンフィプロジル	100	100
37	フェナセチン	98	100				

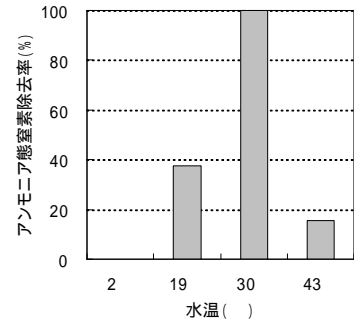


図-2 GAC カラム (経年炭) 生物処理能 (アンモニア態窒素除去率)

表-5 GAC カラム吸着能 (紫外線吸光度除去率)

	紫外線吸光度 (2000ng/L 添加時)		除去率 (%)
	流入	流出	
新炭	0.014	0.003	79
経年炭	0.015	0.012	20

100ng/L 以上であったイオパミドール、イオヘキソールは、いずれの下水処理場においても最低値が 1000ng/L を上回っていたことから、これらの物質が放流水中に高濃度含まれることが確認された。クロタミトンはオゾン処理が導入され

ている処理場では低濃度であった。

3) オゾン処理実験を行った結果、73 物質中、57 物質が 10 分間で 80% 以上分解され、調査対象の医薬品類の除去に対し、オゾン処理が有効であると考えられたが、X線造影剤とコチニンは 10 分間のオゾン処理後も 50% 以上が残留していた。

4) GAC カラムを用いて医薬品類の除去特性を調査した結果、新炭ではすべての物質で除去率がほぼ 100% であり、GAC の高い吸着性能により医薬品類が除去されることが確認された。一方、経年炭では、大部分の物質で除去率がほぼ 100% であったが、イオパミドール、イオヘキソールでは除去率の低下が認められ、高水温時には GAC からの脱着が見られた。

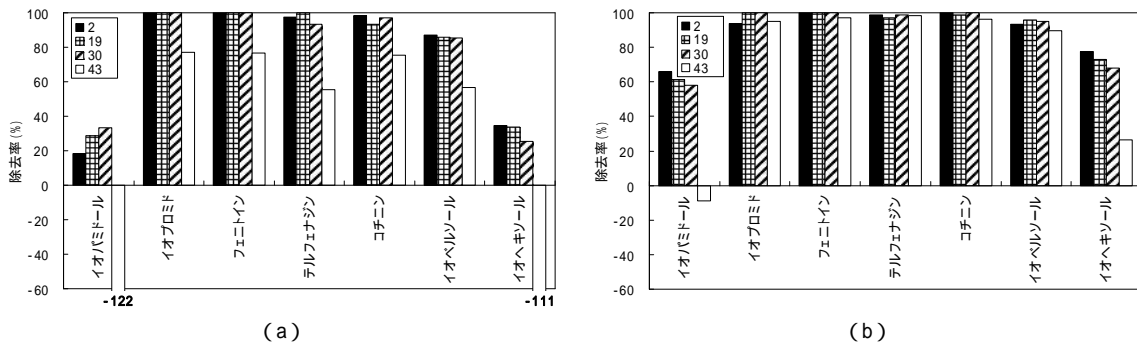


図-3 GAC カラム実験結果 (経年炭) ((a) 低濃度 (b) 高濃度添加)

6. 参考文献

- 1) Castiglioni, S., Bagnati, R., Fanelli, R., Pomati, F., Calamari, D., Zuccato, E., 2006. Removal of pharmaceuticals in sewage treatment plants in Italy. Environ. Sci. Technol. 40(1), 357-363.
- 2) Clara, M., Strenn, B., Gans, O., Martinetz, E., Kreuzinger, N., Kroiss, H., 2005. Removal of selected pharmaceuticals, fragrances and endocrine disrupting compounds in a membrane bioreactor and conventional wastewater treatment plants. Water Res. 39, 4797-4807.
- 3) Joss, A., Keller, E., Alder, A. C., Gobel, A., McArdell, C. S., Ternes, T., Siegrist, H., 2005. Removal of pharmaceuticals and fragrances in biological wastewater treatment. Water Res. 39, 3139-3152.
- 4) 鶴田朋子, 大西勇輔, 宮田雅典, 2009. LC-MS/MS による医薬品類の一斉分析における固相抽出法の改良及び浄水処理過程での実態について. 日本水道協会関西地方支部第 53 回研究発表概要集, 102-105.
- 5) 小西千絵, 宝輪勲, 中田典秀, 小森行也, 鈴木穰, 田中宏明, 2006. 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, 73-82.