

## 医薬品類を指標とした水質評価について

中島純夫 南部佳弘 水嶋好清 三觜 雄

### 要 旨

分流式下水道区域の琴似発寒川の上水道水源となっている地点で抗てんかん薬カルバマゼピンが検出され、污水管に雨水管が誤って接続されている可能性もあったため、従来のふん便汚染指標である糞便性大腸菌、コプロスタノールに加え、カルバマゼピン等の医薬品を測定したところ、糞便性大腸菌やコプロスタノールが高い地点では、カフェイン、テオフィリンが $\mu\text{g/L}$ レベル検出されたほか、ケトプロフェン、ベザフブラート等の医薬品に加え、オセルタミビルも検出され、医薬品類がコプロスタノール等と同様の指標性があると考えられた。さらに、本調査において琴似発寒川の吐け口の無い上流の河川でカルバマゼピンのみが検出されたため、調査を行ったところ、地下浸透処理を行っている施設からの浸出水が河川に流入していると考えられたが、検出レベルとPEC/PNEC比から判断し、ヒトの健康影響や、生態系への影響は、低いと判断された。

### 1. はじめに

平成20年3月に札幌市内のほぼ全域に及び河川27地点、下水放流水9処理場分12試料について33種の医薬品類の調査を実施したところ下水放流水と主として下水放流口下流河川で24種の医薬品が検出された。一方、上流に下水放流水が流入しないにもかかわらず、琴似発寒川の西野浄水場取水口地点で抗てんかん剤カルバマゼピンが $14\text{ ng/L}$ 検出された<sup>1)</sup>。

カルバマゼピンは、下水処理によって除去され難い医薬品として知られているが、西野浄水場取水口上流の地域は、分流式下水道区域であり、污水管と雨水管が並行して埋設されているため、污水が誤って雨水管に接続されていることも考えられた。本市では、これまで下水管の誤接続指標として糞便性大腸菌やコレステロール代謝物であるコプロスタノールを用いているが、平成21年12月10日に河川や吐口で採水し、糞便性大腸菌やコプロスタノールに加え、カルバマゼピン等の医薬品も糞便汚染や生活排水指標として有効であるかを検討した。

### 2. 方 法

#### 2-1 吐口の医薬品等調査

調査地点は、西野浄水場取水口を含む河川3地点、

吐口口（以下吐口）は、右股川（琴似発寒川）5地点、左股川2地点を対象とした（図1）。

測定対象とした医薬品は、平成20年3月の調査において西野浄水場取水口で検出された医薬品3種（カルバマゼピン、テオフィリン、N,N-ジエチル-m-トルアミド）と水道水源において優先して監視すべき生理活性物質<sup>2)</sup>に示された17物質のうち、測定法を検討した結果、固相抽出-LC/MS/MSにより測定が可能であった八口ペリドール等の10医薬品、さらに、抗インフルエンザウイルス薬であるオセルタミビルの計14医薬品を測定した。同時に従来からのふん便汚染指標である糞便性大腸菌、コプロスタノールも測定した。なお、採水当日及び前日に降水は無く、雨水管への地下水混入も少量であったと判断できる状況であった。調査実施日にR1、L1吐口からの排水水が無かったため、試料測定が可能であったのは、3河川地点と5吐口試料であった。

医薬品類の測定は、試料200mLを、ギ酸酸性で固相抽出（OASYS HLB）し、メタノール5mLで溶出した後、LC/MS/MS（Waters社 Quattro micro）で測定した。糞便性大腸菌は、MFC法で測定した。コプロスタノールは、塩酸酸性下で塩化ナトリウムを加え、ヘキサンで2回抽出し、脱水、濃縮後GC/MSで測定した。なお、この方法では、加水分解操作を

省略しているため、抱合体は測定されない。

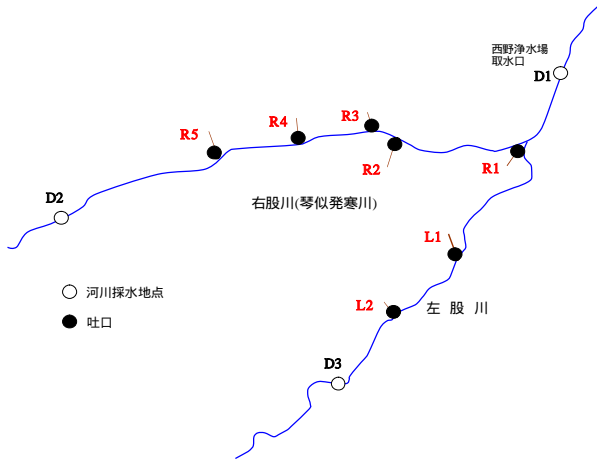


図1 琴似発寒川の吐口と河川採水地点

### 2-2 左股川上流のカルバマゼピン調査

吐口調査の結果、河川 D3 地点でカルバマゼピンのみが検出されたため、左股川上流でのカルバマゼピン汚染源調査を実施した。左股川には、支流河川である盤溪川があり、盤溪川にも支流がある。盤溪川流域は、「開発行為における汚水放流の指導要綱」によって河川への放流が抑制されている。調査の結果、

果、河川に近く、浄化槽排水を浸透トレンチにより地下浸透処理している施設が存在したため、当該施設の上流と下流、支流河川の合流直前の地点等の西野浄水場取水地点を含む 6 地点でさらに調査を実施した。

### 3. 結果と考察

#### 3-1 吐口調査結果

吐口からの放流水量は、何れも極めて少量であったが、R3,R4 では糞便性大腸菌、コプロスタノールに加え、カフェイン、気管支拡張薬テオフィリン、解熱鎮痛薬ケトプロフェン、オセルタミビル等が検出され、下水管の誤接が疑われた(表1)。また、R2,L2 でもカフェイン等が検出され、誤接続の可能性があると推定された。しかし、汚水管と雨水管の配管図を調査した結果、西野地区では、汚水管と雨水管が近接して埋設されており、密閉構造でない下水管では、降水や地下水位の上昇により汚水管中の医薬品等が土壌を経由し雨水管に混入し、河川に流入する可能性もある。従って、医薬品やコプロスタノール等の結果のみでは、管誤接続の有無は、判断できな

表1 医薬品等測定結果

地点番号	D1	R2	R3	R4	R5	D2	L2	D3
	西野浄水場取水口	吐口	吐口	吐口	吐口	錦水橋	吐口	盤溪一号橋
試料採取位置	左岸	右岸	左岸	左岸	左岸	流心	左岸	流心
天候	晴	晴	晴	晴	晴	晴	晴	晴
時刻	9:50	10:35	11:10	11:30	11:50	12:05	13:50	13:30
水温( )	2.5	7.2	9.1	8.0	10.2	2.5	7.2	4.0
透視度(cm)	>30	>30	>30	>30	>30	>30	>30	>30
検出割合	3/14	8/14	9/14	12/14	1/14	1/14	5/14	3/14
ハロペリドール (ng/L)	<1	<1	<1	<1	<1	<1	<1	<1
テトラサイクリン (ng/L)	<50	<50	<50	<50	<50	<50	<50	<50
ジクロフェナク (ng/L)	<5	<5	12	12	<5	<5	17	<5
カフェイン (ng/L)	9	56	480	3100	<5	<5	43	<5
フロセミド (ng/L)	<10	20	<10	130	<10	<10	<10	<10
アセトアミノフェン (ng/L)	<5	<5	<5	7	<5	<5	<5	<5
ケトプロフェン (ng/L)	<5	10	16	170	<5	<5	<5	<5
ベザフィブラート (ng/L)	<5	<5	<5	130	<5	<5	<5	<5
テオフィリン (ng/L)	<5	120	220	2400	<5	<5	8	<5
<b>カルバマゼピン (ng/L)</b>	<b>11</b>	<b>6</b>	<b>7</b>	<b>34</b>	<b>&lt;1</b>	<b>&lt;1</b>	<b>&lt;1</b>	<b>29</b>
NN-ジエチル-m-トルアミド (ng/L)	<1	<1	2	15	<1	<1	2	4
オセルタミビル (ng/L)	<1	55	18	340	<1	<1	<1	<1
糞便性大腸菌 (個/100mL)	79	66	>1600	>1600	25	6	48	1
コプロスタノール (ng/L)	<20	49	810	5600	<20	<20	<20	<20

いと考えられる。また、地下水位上昇等が原因で汚水が雨水に混入するのであれば、管理設から時間が経過するに従い、汚水中の生物分解され難い医薬品等が土壤中に蓄積される可能性がある。汚水の雨水管への確認には、通常的环境には存在せず、人体や生態系への影響が無く、高感度で検出可能な物質を用いたトレーサー試験等の必要があると考えられた。

一方、R4 では、カルバマゼピンが 34ng/L 検出されたが、吐口からの河川流入水量から判断し、吐口のみカルバマゼピン負荷量のみで西野浄水場取水口の検出濃度 11 ng/L を説明することはできないと考えられた。また、D3 でカルバマゼピンが 29 ng/L 検出され、他の医薬品が検出されないことから、D3 より上流の左股川流域に吐口以外の汚染源が存在すると考えられた。

西野浄水場取水口より上流の琴似発寒川は、河川への放流が抑制されている地域であるが、左股川上流域を調査した結果、浄化槽からの汚水を浸透トレンチにより地下浸透処理をしている施設のあることが判明したため、平成 22 年 2 月 12 日に D3 上流域でさらに調査を実施した結果、当該施設の上流域の地点と支流河川では、カルバマゼピンが検出されず、当該施設の 300m 程下流地点で 94 ng/L 検出され、D3 地点でも 35 ng/L (平成 21 年 12 月 10 日測定値 29 ng/L) 検出されたことから判断し、浸透トレンチ浸透水からカルバマゼピンが河川に浸出していると考えられた。

### 2-3 水道原水及び水生生物への影響

川元ら<sup>3)</sup>は、カルバマゼピンを含む検出例の多い医薬品の水道水の飲用に伴うヒトへの摂取量を推定し、健康影響評価について考察を行っており、兵庫県の最大検出レベルであるカルバマゼピン 268ng/L が浄水から検出されたと仮定しても 1 日最小用量に対する水道水を通じたの最大摂取量割合を 70 年あたり 0.069 であり、低値で問題の無いレベルとしている。これまで当所で測定した西野浄水場取水口の検出レベルは、4 ~ 15ng/L (4 回測定の平均 11ng/L) であり、川元らの値よりもさらに低い値となり、人への健康影響は低いと考えられる。

水生生物への影響については、(独)国立環境研究所研究<sup>4)</sup>で環境中の予測濃度 (PEC:Predicted

Environmental Concentration) と予測無影響濃度 (PNEC: Predicted No-Effect Concentration) の比 (PEC/PNEC) が 1 を超える物質は無く、0.1 を超える物質として解熱鎮痛剤アセトアミノフェン等 5 物質を指摘しているが、カルバマゼピンは、これには含まれていない。従って、浸透トレンチ浸出水の琴似発寒川における生態系への影響は、低いと考えられる。

## 4. 結論

医薬品類は、コプロスタノールや糞便性大腸菌等と同様に汚水混入の指標として有効であるが、下水管の材質や構造から判断し、汚水混入指標の検出が必ずしも下水管誤接続の証拠とはならないと考えられた。しかし、カルバマゼピン等の生分解を受け難い医薬品類は、汚染源追跡時の指標として極めて有効であると考えられた。

本調査における琴似発寒川におけるカルバマゼピン検出レベルは、ヒト健康影響や水生生物への影響は、少ないと考えられる。

## 5. 文献

- 1) 中島純夫、南部佳弘、柏原守、矢野公一。札幌市内河川水及び下水放流水注の医薬品調査結果について、札幌市衛生研究所年報 No.36 67-74,2009
- 2) 厚生労働省；水道水源における生理活性物質の測定と制御に関する研究、平成 16~18 年度環境省地球環境保全等試験研究費（公害防止等に係るもの）
- 3) 川元達彦、矢野美穂、「水道原水中医薬品の実態把握及び各種浄水処理法における除去・低減化対策に関する研究」兵庫県立健康環境科学研究所センター、平成 20 年度 大同生命地域保健福祉研究助成
- 4) 国立環境研究所ニュース、水環境中の医薬品化学物質、22 巻 4 号 (2003 年 10 月)
- 5) 鈴木穰、小森行也、北村清明、北村友一。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、(独) 土木研究所、2006