

〔報 文〕

下水放流水中の PPCPs (Pharmaceuticals and Personal Care Products) の実態と公共用水域への影響

石川県保健環境センター 環境科学部 下田 啓介・河本 公威・野口 邦雅
石川県健康福祉部 薬事衛生課 徳田 貴裕

〔和文要旨〕

県内 3 か所の下水処理場の放流水及び放流先の 3 河川を対象に、PPCPs 21 物質の実態調査を行った。下水処理場の放流水からは高い濃度で PPCPs 19 物質が検出され、また、河川水の調査では、放流地点の上流側に比べ、下流側で高濃度であり、下水処理場の放流水の影響が明らかとなった。下水処理場の放流地点の河川下流では、MEC/PNEC が 1 以上となる PPCPs があり、下水処理場の放流先の河川については、詳細な評価を行う候補として考えられる。

キーワード：PPCPs, 下水処理場放流水, 季節変動, 生体リスク初期評価, PNEC (予測無影響濃度)

本報の一部は以下で発表した。

第50回環境保全・公害防止研究発表会 2023年11月17日 鳥取県

1 はじめに

近年、ヒトや動物用の医薬品、化粧品やシャンプー等の日用品に由来する化学物質 (Pharmaceuticals and Personal Care Products. 以下、「PPCPs」という。) が環境中から検出されており、環境影響が懸念されている。

そこで、本県内の公共用水域における PPCPs の実態を把握するため、2020 年度に、環境省が実施する化学物質環境実態調査において全国で検出例のあった PPCPs (抗生物質 5 物質) を対象に実態調査及び詳細調査¹⁾を実施した。翌 2021 年度には、国立環境研究所との II 型共同研究「LC-MS/MS による分析を通じた生活由来物質のリスク解明に関する研究 (2019～2021 年

度)」において調査対象となった PPCPs (医薬品等 18 物質) を対象に実態調査²⁾を実施した。これらの調査結果から生体リスク初期評価³⁾を行ったところ、本県内の一部の河川においてクラリスロマイシン及びロキシシロマイシンが予測無影響濃度 (以下、「PNEC」という。) を超過しており、その原因として下水処理場の放流水の影響が示唆された。

今回、下水処理場の放流水中の PPCPs 濃度の実態及び河川への影響を明らかにするため、本県内の下水処理場の放流水及び放流先の河川水 (下水処理場の放流地点の上流及び下流) を調査したので、その結果を報告する。

Survey on PPCPs (Pharmaceuticals and Personal Care Products) in Sewage Treatment Plant Effluent and River Water. by SHIMODA Keisuke, KAWAMOTO Tomotake and NOGUCHI Kunimasa (Environmental Science Department, Ishikawa Prefectural Institute of Public Health and Environmental Science), TOKUDA Takahiro (Pharmaceuticals/Hygiene Division, Health and Welfare Department, Ishikawa Prefecture)

Key words : PPCPs (Pharmaceuticals and Personal Care Products), Sewage Treatment Plant Effluent, Seasonal Variation, Initial Ecological Risk Assessment, PNEC (Predicted No Effect Concentration)

2 調査方法

2.1 調査地点と調査期間

(1) 調査地点

本県内の都市部を処理区域とする比較的規模の大きい3か所の下水処理場（A、B及びC下水処理場）の放流水を調査した。これらの下水処理場の計画日最大汚水量は2万m³以上（2021年3月31日現在）で、処理方法はいずれも標準活性汚泥法となっている。また、放流先の3河川（a、b及びc川）を対象に、放流地点の上流及び下流の河川水を調査した。調査地点の概要を図1に示す。

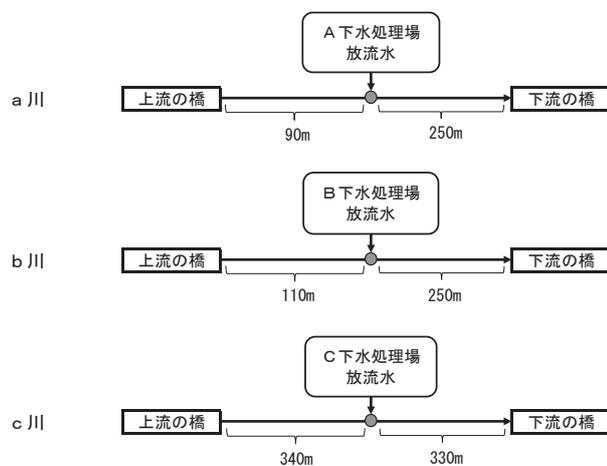


図1 調査地点の概要

(2) 調査期間

春季（2022年4月）、夏季（2022年7月）、秋季（2022年10月）及び冬季（2023年1月）の年4回調査した。

2.2 調査対象物質

2020年度及び2021年度の調査で対象とした全21物質、①スルピリド（抗精神病薬）、②カルバマゼピン（抗てんかん薬）、③ジクロフェナク（抗炎症剤）、④イルベサルタン、⑤オルメサルタン、⑥カンデサルタン、⑦テルミサルタン、⑧バルサルタン、⑨ロサルタン（以上、血圧降下剤）、⑩クロタミトン（鎮痒剤）、⑪エピナスチン、⑫ケトチフェン、⑬ジフェンヒドラミン、⑭フェキソフェナジン（以上、抗ヒスタミン薬）、⑮エリスロマイシン、⑯クラリスロマイシン、⑰ロキシスロマイシン、⑱リンコマイシン、⑲クリンダマイシン、⑳トリメトプリム（以上、抗生物質）、㉑DEET（昆虫忌避剤）について、本調査でも対象とした。なお、⑮エリスロマイシンは、エリスロマイシンAを主成分として、エリスロマイシンB（5%以下）及びC（5%以下）の3種の混合物である⁴⁾。本調査では、平成25年度化学物質分析法開発調査報告書⁵⁾に従い、エリスロマイシンA及びBの2物質を合計し、エリスロマイシンとして評価した。

2.3 分析方法

⑮エリスロマイシン、⑰ロキシスロマイシン、⑱リンコマイシン及び⑲クリンダマイシンの4物質については、2020年度調査の既報¹⁾に準じて、それ以外の17物質については2021年度調査の既報²⁾に準じて分析した。

3 結果と考察

3.1 PPCPsの検出状況

(1) 放流水及び河川水のPPCPs濃度（年平均値）

PPCPsの調査結果（年平均値）を表1に示す。なお、検出下限値未満のデータは0ng/Lとして年平均値を算出した。また、調査した年4回すべて検出下限値未満の場合に「n.d.」と標記した。参考に、PPCPsの検出下限値¹⁾²⁾を表2に示す。

下水処理場の放流水では、A下水処理場は18物質、B下水処理場は19物質、C下水処理場は19物質が検出された。各PPCPsの濃度レベルは数十～数千ng/Lと幅はあるが、これまでの公共用水域の調査結果¹⁾²⁾と比較して、いずれのPPCPsともかなり高い濃度で検出された。なお、3下水処理場の放流水を比較すると、いずれのPPCPsも概ね同レベルであった。

河川上流では、a川は8物質、b川は11物質、c川は14物質が検出されたが、いずれの河川も検出下限値に近い低い濃度レベルであった。河川上流においてPPCPsが検出される原因については、集落排水処理施設や浄化槽等からの放流水の影響が考えられる。

河川下流では、a川は18物質、b川は18物質、c川は19物質が検出され、河川上流と比較して検出される物質数は多かった。また、いずれの河川も比較的高い濃度で検出されており、下水処理場の放流地点から近傍（300m程度）の河川下流では、下水処理場の放流水の影響を大きく受けていることが明らかとなった。

(2) 放流水中のPPCPs濃度の季節変動

各季節における放流水中のPPCPs濃度を図2に示す。

各PPCPsの結果から、季節変動が見られる物質と季節変動があまり見られない物質がある。季節変動が見られる物質は、⑥カンデサルタン、⑧バルサルタン、⑨ロサルタン、⑩クロタミトン、⑪エピナスチン、⑬ジフェンヒドラミン、⑭フェキソフェナジン、⑯クラリスロマイシン、⑰ロキシスロマイシン、⑳トリメトプリム及び㉑DEETの11物質であった。また、前述の11物質とも、3か所の下水処理場における季節変動はほぼ同様の傾向を示していた。

⑥カンデサルタン、⑧バルサルタン及び⑨ロサルタンの季節変動については、規則性は見られなかった。この3物質は血圧降下剤であり、季節による使用量の変動は考えにくく、季節変動の原因は不明である。

表1 PPCPsの調査結果 (年平均値)

(ng/L)

PPCPs	河川上流			放流水			河川下流		
	a川	b川	c川	A下水処理場	B下水処理場	C下水処理場	a川	b川	c川
① スルピリド	2.1	4.2	12	660	640	590	100	46	82
② カルバマゼピン	n.d.	1.6	2.6	55	45	41	7.9	4.7	7.9
③ ジクロフェナク	n.d.	2.1	4.5	140	110	120	17	10	16
④ イルベサルタン	1.2	0.6	0.9	740	570	540	100	36	69
⑤ オルメサルタン	n.d.	n.d.	4.3	1,300	1,400	1,300	190	110	200
⑥ カンデサルタン	2.5	4.5	2.8	1,100	1,900	2,200	160	58	370
⑦ テルミサルタン	1.0	1.7	8.5	1,800	1,900	1,800	280	130	280
⑧ バルサルタン	n.d.	1.9	8.3	810	1,900	1,900	140	120	290
⑨ ロサルタン	n.d.	n.d.	n.d.	150	220	180	24	13	29
⑩ クロタミトン	3.1	10	28	1,100	1,100	1,000	190	84	160
⑪ エピナスチン	n.d.	n.d.	0.8	210	210	200	26	19	16
⑫ ケトチフェン	n.d.	n.d.	n.d.	n.d.	n.d.	n.d.	n.d.	n.d.	n.d.
⑬ ジフェンヒドラミン	4.5	0.5	4.2	770	980	1,000	86	16	80
⑭ フェキシフェナジン	n.d.	n.d.	7.2	4,100	3,600	3,700	550	290	410
⑮ エリスロマイシン	n.d.	n.d.	n.d.	180	130	120	23	8.4	21
⑯ クラリスロマイシン	n.d.	n.d.	n.d.	440	430	410	88	22	92
⑰ ロキシスロマイシン	n.d.	n.d.	n.d.	410	120	200	56	4.0	27
⑱ リンコマイシン	n.d.	n.d.	n.d.	n.d.	n.d.	n.d.	n.d.	n.d.	n.d.
⑲ クリンダマイシン	n.d.	n.d.	n.d.	n.d.	18	13	n.d.	n.d.	3.2
⑳ トリメトプリム	0.3	0.9	0.6	42	66	73	13	7.2	14
㉑ DEET	5.3	16	8.4	650	360	410	75	47	28
検出された物質数	8	11	14	18	19	19	18	18	19

■ : 1,000ng/L以上 □ : 100ng/L以上1,000ng/L未満

備考: 各測定値が検出下限値未満の場合は0として年平均値を計算した。
調査した年4回すべて検出下限値の場合にn.d.と標記している。
年平均値は検出下限値を下回る場合がある。

表2 PPCPsの検出下限値 (MDL)

調査対象物質	MDL (ng/L)	調査対象物質	MDL (ng/L)
① スルピリド	1.2	⑫ ケトチフェン	0.85
② カルバマゼピン	0.78	⑬ ジフェンヒドラミン	0.89
③ ジクロフェナク	1.5	⑭ フェキシフェナジン	5.5
④ イルベサルタン	1.1	⑮ エリスロマイシンA	4.9
⑤ オルメサルタン	7.5	エリスロマイシンB	6.9
⑥ カンデサルタン	5.9	⑯ クラリスロマイシン	1.0
⑦ テルミサルタン	1.5	⑰ ロキシスロマイシン	6.5
⑧ バルサルタン	4.2	⑱ リンコマイシン	5.0
⑨ ロサルタン	1.4	⑲ クリンダマイシン	6.2
⑩ クロタミトン	1.8	⑳ トリメトプリム	0.81
⑪ エピナスチン	2.5	㉑ DEET	1.7

⑩クロタミトンは冬季及び春季に高くなる傾向が見られた。これは鎮痒剤であり、乾燥肌が起きやすい季節においてその使用量が増加する影響と考えられる。

⑪エピナスチン及び⑭フェキシフェナジンは春季に高くなる傾向が見られた。これら2物質は鎮静作用が少なく眠気が少ない第二世代の抗ヒスタミン薬であり⁶⁾、花粉症の治療薬として広く使用されていることから、春季の花粉症の流行に伴う使用量の増加が影響しているものと考えられる。

⑬ジフェンヒドラミンは夏季及び秋季に高くなる傾向

が見られた。これは眠気をもたらす第一世代の抗ヒスタミン薬であるが、この季節変動の原因は不明である。

⑯クラリスロマイシン、⑰ロキシスロマイシン及び⑳トリメトプリムは冬季及び春季に高くなる傾向が見られた。これら3物質は抗生物質であり、冬季から春季はインフルエンザ等の季節性感染症が広く流行し、細菌の混合感染による肺炎、気管支炎などの合併症に対する治療に抗生物質が使用される⁷⁾影響と考えられる。

㉑DEETは夏季及び秋季に高くなる傾向が見られた。これは昆虫忌避剤であり、蚊等の昆虫が多く発生する季節においてその使用量が増加する影響と考えられる。

上述以外の検出された8物質については、明確な季節変動が見られなかった。

3・2 生体リスク初期評価

各PPCPsの年平均値の結果を基に、環境省のガイドライン³⁾に示す生態リスク初期評価を実施した。この評価は、予測環境中濃度(以下、「PEC」という。)と、PNECとの比較により、次の①～③の3段階で判定を行うこととなっている。なお、本調査ではPECの代わりに環境中濃度(以下、「MEC」という。)とした。

- ① PEC/PNECが0.1未満の場合
現時点では作業は必要ないと考えられる。
- ② PEC/PNECが0.1以上1未満の場合

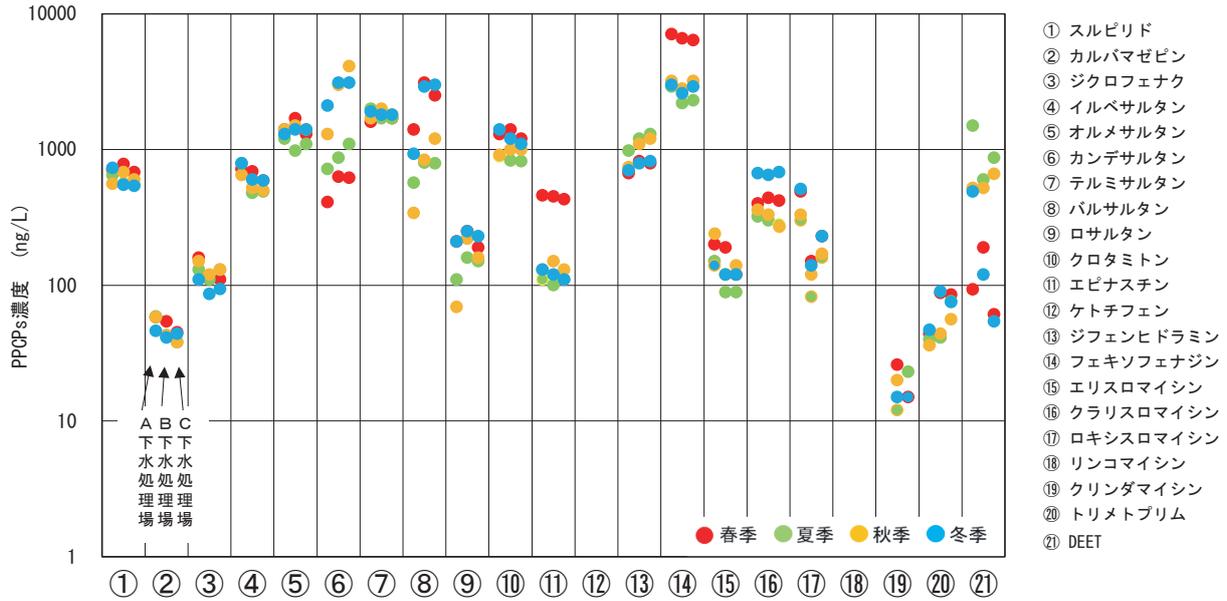


図2 各季節における放流水中のPPCPs濃度

情報収集に努める必要があると考えられる。

③ PEC/PNECが1以上の場合
 詳細な評価を行う候補と考えられる。

表3に年平均値の結果をMECとしてMEC/PNECを求めた結果を示す。PNECは環境省の「化学物質の環境リスク評価」^(3), 8-10)及び環境研究推進費終了研究成果報告書「国内における生活由来化学物質による環境リスク解

明と処理技術の開発」⁽¹¹⁾でまとめられたものを用いた。なお、⑲クリンダマイシンについては、現時点においてPNECを確認することができなかったことから、生体リスク評価を行わなかった。

河川上流では、3河川とも評価を行った20物質すべてにおいて0.1未満であった。

河川下流では、3河川とも⑯クラリスロマイシンが1

表3 生体リスク初期評価

PPCPs	予測無影響濃度 (PNEC) (ng/L)	環境中濃度 (MEC) / 予測無影響濃度 (PNEC)												
		河川上流			放流水 (参考)			河川下流						
		a川	b川	c川	A下水処理場	B下水処理場	C下水処理場	a川	b川	c川				
① スルピリド	100,000	<0.1	<0.1	<0.1	<0.1	<0.1	<0.1	<0.1	<0.1	<0.1	<0.1	<0.1	<0.1	<0.1
② カルバマゼピン	250	<0.1	<0.1	<0.1	0.2	0.2	0.2	<0.1	<0.1	<0.1	<0.1	<0.1	<0.1	<0.1
③ ジクロフェナク	1,100	<0.1	<0.1	<0.1	0.1	0.1	0.1	<0.1	<0.1	<0.1	<0.1	<0.1	<0.1	<0.1
④ イルベサルタン	32,000	<0.1	<0.1	<0.1	<0.1	<0.1	<0.1	<0.1	<0.1	<0.1	<0.1	<0.1	<0.1	<0.1
⑤ オルメサルタン	2,200,000	<0.1	<0.1	<0.1	<0.1	<0.1	<0.1	<0.1	<0.1	<0.1	<0.1	<0.1	<0.1	<0.1
⑥ カンデサルタン	1,000,000	<0.1	<0.1	<0.1	<0.1	<0.1	<0.1	<0.1	<0.1	<0.1	<0.1	<0.1	<0.1	<0.1
⑦ テルミサルタン	1,600	<0.1	<0.1	<0.1	1.1	1.2	1.1	0.2	<0.1	0.2	<0.1	<0.1	<0.1	<0.1
⑧ バルサルタン	240,000	<0.1	<0.1	<0.1	<0.1	<0.1	<0.1	<0.1	<0.1	<0.1	<0.1	<0.1	<0.1	<0.1
⑨ ロサルタン	320,000	<0.1	<0.1	<0.1	<0.1	<0.1	<0.1	<0.1	<0.1	<0.1	<0.1	<0.1	<0.1	<0.1
⑩ クロタミトン	21,000	<0.1	<0.1	<0.1	<0.1	<0.1	<0.1	<0.1	<0.1	<0.1	<0.1	<0.1	<0.1	<0.1
⑪ エピナスチン	21,800	<0.1	<0.1	<0.1	<0.1	<0.1	<0.1	<0.1	<0.1	<0.1	<0.1	<0.1	<0.1	<0.1
⑫ ケトチフェン	2,200	<0.1	<0.1	<0.1	<0.1	<0.1	<0.1	<0.1	<0.1	<0.1	<0.1	<0.1	<0.1	<0.1
⑬ ジフェンヒドラミン	880	<0.1	<0.1	<0.1	0.9	1.1	1.1	0.1	<0.1	<0.1	<0.1	<0.1	<0.1	<0.1
⑭ フェキシフェナジン	300,000	<0.1	<0.1	<0.1	<0.1	<0.1	<0.1	<0.1	<0.1	<0.1	<0.1	<0.1	<0.1	<0.1
⑮ エリスロマイシン	200	<0.1	<0.1	<0.1	0.9	0.7	0.6	0.1	<0.1	0.1	<0.1	<0.1	<0.1	<0.1
⑯ クラリスロマイシン	20	<0.1	<0.1	<0.1	22	22	21	4.4	1.1	4.6	<0.1	<0.1	<0.1	<0.1
⑰ ロキシスロマイシン	100	<0.1	<0.1	<0.1	4.1	1.2	2.0	0.6	<0.1	0.3	<0.1	<0.1	<0.1	<0.1
⑱ リンコマイシン	140	<0.1	<0.1	<0.1	<0.1	<0.1	<0.1	<0.1	<0.1	<0.1	<0.1	<0.1	<0.1	<0.1
⑲ クリンダマイシン	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
⑳ トリメトプリム	31,200	<0.1	<0.1	<0.1	<0.1	<0.1	<0.1	<0.1	<0.1	<0.1	<0.1	<0.1	<0.1	<0.1
㉑ DEET	5,200	<0.1	<0.1	<0.1	0.1	<0.1	<0.1	<0.1	<0.1	<0.1	<0.1	<0.1	<0.1	<0.1

■ : 1以上 ■ : 0.1以上1未満

以上であった。また、⑦テルミサルタン、⑮エリスロマイシン及び⑰ロキシスロマイシンがa川、c川において、⑬ジフェンヒドラミンがa川において、0.1以上1未満であった。いずれの河川下流においても、MEC/PNECが1以上となるPPCPsが見られたことから、下水処理場近傍の河川下流については詳細な評価を行う候補として考えられる。

なお、放流水は環境水でないため評価対象ではないものの、本評価法に当てはめると、3下水処理場の放流水すべてでMEC/PNECが1以上となるPPCPs 3～4物質が見られた。

4 まとめ

- (1) 本県内の3か所の下水処理場の放流水及び放流先の3河川を対象に、21種類のPPCPsの実態を調査した。
- (2) 下水処理場の放流水からは、多くのPPCPsが高濃度で検出された。また、河川下流で検出されるPPCPsは、河川上流に比べ濃度が高く、下水処理場の放流水の影響が明らかとなった。
- (3) 放流水中のPPCPs濃度に季節変動が見られる物質と、季節変動があまり見られない物質があった。
- (4) いずれの河川も、下水処理場の放流地点の下流側でMEC/PNECが1以上となるPPCPsが見られたことから、下水処理場の放流先となる河川については、詳細な評価を行う候補として考えられる。

文 献

- 1) 宮田朋子, 高田啓子, 徳田貴裕, 安田能生弘: 石川県内の公共用水域におけるPPCPs (Pharmaceuticals and Personal Care Products) の実態調査 (第1報), 石川県保健環境センター研究報告書, 58, 21-27 (2021)

- 2) 徳田貴裕, 宮田朋子, 安田能生弘, 柿澤隆一: 石川県内の公共用水域におけるPPCPs (Pharmaceuticals and Personal Care Products) の実態調査 (2021年), 石川県保健環境センター研究報告書, 59, 66-71 (2022)
- 3) 環境省環境保健部環境リスク評価室: 化学物質の環境リスク評価第19巻, 令和3年3月
- 4) 医薬・生活衛生局生活衛生・食品安全部基準審査課残留農薬等基準審査室: 薬事・食品衛生審議会食品衛生分科会農薬・動物用医薬品部会資料 (平成28年5月27日), <https://www.mhlw.go.jp/file/05-Shingikai-11121000-Iyakushokuhinkyoku-Soumuka/0000168399.pdf>, 令和3年8月
- 5) 環境省総合環境政策局環境保健部環境安全課: 平成25年度化学物質分析法開発調査報告書, 平成26年3月
- 6) 公益社団法人日本薬学会, 健康豆知識>眠くなりにくい花粉症のくすり 副作用を防ぐ工夫, <https://www.pharm.or.jp/mame/20160102.shtml>, 2023.7
- 7) 一般社団法人愛知県薬剤師会, 薬事情報センター>病気とくすり>15.インフルエンザ, <https://www.apha.jp/medicine.room/entry-3679.html>
- 8) 環境省環境保健部環境リスク評価室: 化学物質の環境リスク評価第16巻, 平成30年3月
- 9) 環境省環境保健部環境リスク評価室: 化学物質の環境リスク評価第17巻, 平成31年3月
- 10) 環境省環境保健部環境リスク評価室: 化学物質の環境リスク評価第18巻, 令和2年3月
- 11) 環境研究推進費終了研究成果報告書, 5-1954国内における生活由来化学物質による環境リスク解明と処理技術の開発 (JPMEERF20195054) 令和元年度～令和3年度, 令和4年5月