

スルファ系抗生物質の下水処理場内での挙動

西野 貴裕、加藤 みか、宮沢 佳隆、飯田 有香

【要約】都内の水環境でも検出されているスルファ系の抗生物質について下水処理場における挙動を調査したところ、サラゾスルファピリジンが、処理工程が進むに伴い濃度が減少したのに対し、その代謝生成物であるスルファピリジンの濃度は上昇していた。

【キーワード】スルファピリジン、サラゾスルファピリジン、下水処理場

【目的】

当所では、都内河川の水質試料を採取し、スルファメトキサゾールやスルファピリジンといったスルファ系抗生物質の環境実態把握、水生生物に対する生態リスク評価を実施してきた¹⁾。さらにスルファピリジンは、既報¹⁾にて下水処理場の流入水に対して放流水中濃度が高くなっていることを報告した。それを受け本研究では、流入水、放流水だけでなく、その他途中の処理工程までの試料を採取し、その挙動についても調査した。

【方法】

調査に先立ち、スルファピリジンやその前駆物質に関する情報を収集したところ、スルファピリジンは、潰瘍性大腸炎治療薬や抗リウマチ薬として使用されているサラゾスルファピリジンの代謝生成物であることが知られていた²⁾。また、厚生労働省が公表している NDB オープンデータ³⁾のうち、第 7 回のデータからサラゾスルファピリジンは、内服薬 外来 (院外)として東京都で 7221.3kg の処方実績がある一方、スルファピリジンは抗生物質として国内で使用されている事例はなかった。それらを踏まえ、既報¹⁾の対象物質にサラゾスルファピリジンを加え、それらの処理工程における挙動を把握することとした。

多摩川へ放流している A、B 下水処理場 2 地点に対して、2023 年 12 月に、流入水や放流水、及びその他途中の処理工程における水質試料の採取を行った。各工程のうち、流入水と第一沈殿池出口水、放流水は 24 時間のコンポジット試料、第二沈殿池出口水はスポット試料とした。試料 (下水処理場放流水、第二沈殿池出口水は 100 mL、第一沈殿池出口水、流入水は 50mL) にサロゲートとしてスルファメトキサゾール-¹³C₆ やスルファピリジン-¹³C₆ 等の 1mg/L メタノール溶液を 10 μ L 添加後、固相カートリッジ Waters 社製 Oasis HLB Plus Short Cartridge (充填量 225 mg) に 10mL/min の流速で通水した。通水後、固相カートリッジ内を洗浄、遠心分離と窒素通気で乾燥させた。乾燥後、メタノール 3 mL \Rightarrow アセトン 3 mL \Rightarrow ジクロロメタン 2 mL をバックフラッシュ法で流し、吸着した化学物質を溶出させた。これを 0.2 mL 程度まで窒素で濃縮、50 %メタノール水溶液で 1 mL までメスアップして LC-MS/MS で分析した (図 1)。

【結果の概要】

下水処理場 2 地点の各工程及び多摩川 (2022 年 9 月に採取) におけるスルファ系抗生物質の濃度を表 1 に示す。A、B 両処理場の各工程水における濃度は、スルファピリジンは流入水から第一沈殿池、第二沈殿池と工程が進むにつれて濃度が上昇しているのに対して、サラゾスルファピリジンは濃度が低減していた。サラゾスルファピリジンがスルファピリジンに代謝する際、そのモル比は 1:1 であるのに対して、低減度合いの収支は取れないものの (特に A 処理場における流入水に対する放流水濃度を比較すると、サラゾスルファピリジンは 0.23nmol/L の低減に対してスルファピリジンは 1.2nmol/L 増加していた)、工程が進むにしたがい、代謝が進む傾向は両処理場で共通していた。採水時期は異なるが、多摩川のデータに着目すると、本調査の最上流地点で下水等排水の影響をほとんど受けていない永田橋では対象物質全て検出下限値未満 (N.D.) であったが、日野橋及びその下流地点では、医療機関等様々な事業場またはヒトの日常生活に由来する排水が下水処理場を経由することで、スルファメトキサゾールとスルファピリジンが定量下限値以上の濃度で検出されていた。しかし、いずれの地点でも「水生生物に対する予測無影響濃度 (PNEC)」の超過はしていなかった。

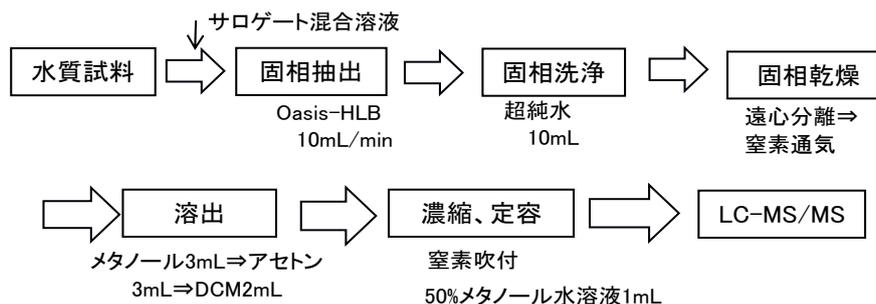


図1 試料の前処理フロー

表1 下水処理場各工程及び多摩川におけるスルファ系抗生物質の濃度 (ng/L)

河川名または 処理場	地点名	物質名						
		スルファメ キサゾール	スルファジミ ジン	スルファピリ ジン	サラソスル ファピリジン	スルファジメ トキシ	スルファジア ジン	スルファドキ シン
A	流入水	350	N.D.	490 (2.0)	160 (0.4)	N.D.	N.D.	N.D.
	第一沈殿池出口	520	N.D.	690 (2.7)	280 (0.7)	N.D.	N.D.	N.D.
	第二沈殿池出口	150	N.D.	760 (3.0)	22 (0.06)	N.D.	N.D.	N.D.
	放流水	250	N.D.	780 (3.1)	68 (0.17)	N.D.	N.D.	N.D.
B	流入水	360	N.D.	560 (2.2)	350 (0.88)	N.D.	N.D.	N.D.
	第一沈殿池出口	460	N.D.	590 (2.4)	250 (0.63)	N.D.	N.D.	N.D.
	第二沈殿池出口	300	N.D.	1100 (4.4)	97 (0.24)	N.D.	N.D.	N.D.
	放流水	300	N.D.	830 (3.3)	99 (0.25)	N.D.	N.D.	N.D.
多摩川	永田橋	N.D.	N.D.	N.D.	—	N.D.	N.D.	N.D.
	日野橋	16	N.D.	63	—	N.D.	N.D.	N.D.
	関戸橋	33	N.D.	120	—	N.D.	N.D.	N.D.
	多摩川原橋	34	N.D.	220	—	N.D.	N.D.	N.D.
検出下限値		1.1	1.0	2.4	3.0	1.0	0.60	0.57
定量下限値		3.0	2.8	6.2	10	2.7	1.6	1.5
PNEC		100 ⁴⁾	6,250 ⁶⁾	460 ⁷⁾	—	6,250 ⁴⁾	100 ⁵⁾	—

4) 環境省: 化学物質の環境リスク初期評価等 第18巻 (2020)

5) 環境省: 化学物質の環境リスク初期評価等 第19巻 (2021)

6) 宇野映介ら: 福岡保健環境研究所報、39、51-57 (2014)

7) Na Liu et al.: Environment International、136、105454 (2020)

注1) 多摩川の水質試料の測定は2022年9月に実施したもの。

注2) N.D.は検出下限値未満、サラソスルファピリジンの—は未測定を示す。

注3) スルファピリジン、サラソスルファピリジンの濃度の右に示した括弧内の数値はモル濃度 (nmol/L) を示す。

参考文献

- 1) 西野貴裕ら: 東京都環境科学研究所年報 2023, pp.54-58
- 2) KEGG: https://www.kegg.jp/medicus-bin/japic_med?japic_code=00065024
- 3) 厚生労働省: NDB オープンデータ分析サイト <https://www.mhlw.go.jp/ndb/opendatasite/>
- 4) 環境省: 化学物質の環境リスク初期評価等 第18巻 (2020)
<https://www.env.go.jp/chemi/report/ierac18/index.html>
- 5) 環境省: 化学物質の環境リスク初期評価等 第19巻 (2021)
<https://www.env.go.jp/chemi/report/ierac19/index.html>
- 6) 宇野映介ら: 福岡市保健環境研究所報、39、51-57 (2014)
<https://www.city.fukuoka.lg.jp/data/open/cnt/3/46394/1/61ppepsuno.pdf?20201028142139>
- 7) Na Liu et al.: Environment International、136、105454 (2020)
<https://doi.org/10.1016/j.envint.2019.105454>