

【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)

重点課題

- 主：【重点課題⑭】化学物質等の包括的なリスク評価・管理の推進に関する研究
副：【重点課題⑮】大気・水・土壌等の環境管理・改善のための対策技術の高度化

行政要請研究テーマ（行政ニーズ）

- （5－13）水域生態系に及ぼす医薬品由来化学物質及び内分泌かく乱化学物質の複合影響評価

研究実施期間 令和元年度～令和3年度

研究代表者 東京都環境科学研究所 西野 貴裕
研究分担機関 大阪市立環境科学センター
兵庫県環境研究センター
名古屋市環境科学調査センター
いであ株式会社
横浜国立大学
静岡県立大学

はじめに（研究背景等）

化審法、PRTR法の施行・改正

対象化学物質の環境中濃度は減少傾向



一方で

医薬品等の生活由来化学物質は高い濃度レベルで推移

環境研究総合推進費（H28-30）

：多種・新規化学物質の網羅的モニタリングと
地域ネットワークを活用した統合的評価・管理手法の開発



クラリスロマイシン等の医薬品、抗菌剤のトリクロサン

水生生物への予測無影響濃度（PNEC）超過地点多数

医薬品等の生活由来化学物質

環境省：「化学物質環境実態調査」にて調査

- 
- ・ 排出源近傍等のデータ不足
 - ・ 毒性情報ない物質多数（テルミサルタン等）
 - ・ 下水処理場での除去率低い



・ 毒性評価 ・ 環境実態調査 ・ 処理技術開発

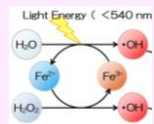
水域生態系への
リスク情報の充実化

サブテーマ 1, 2, 3

生活由来化学物質の
流出防止

サブテーマ 1, 4

研究目標

全体目標	生活由来化学物質の全国の水環境における生態リスク評価とそのリスクの低減に向けた水処理技術の手法に関する提言
サブテーマ1 	生活由来化学物質54種類に対する全国の水質試料における生態リスク評価。排出源に関する情報整備
サブテーマ2 	底質・生物体内に蓄積すると想定される生活由来化学物質17～21物質に対する分析法開発、全国レベルでの底生生物に対する生態リスク評価。
サブテーマ3 	- 生態毒性情報がない6物質を対象とした生態影響試験(藻類・甲殻類及び魚類)の実施、生態リスク評価への活用。 - 複合影響の評価に関する手法の検討・評価。
サブテーマ4 	- 促進酸化法による実排水中の分解除去実験。 - 除去性能の網羅的なデータベースの構築。 - 費用対効果計算等を基にしたプロセス設計。

研究開発内容（第1段階の構成）

第1段階 生活由来物質の環境実態調査・リスク評価

サブテーマ1, 2 環境実態調査・リスク評価担当

東京都環境科学研究所

・水質試料の分析（LC-MS）



大阪市環境科学研究センター

・水質試料の分析（GC-MS）

名古屋市環境科学調査センター

・底質試料の分析

兵庫県環境研究センター

・生物試料の分析

・蓄積性の評価



サンプル・データ授受

生態毒性情報の提供

サンプルの提供

サブテーマ3 生態毒性評価担当

いであ株式会社



暴露試験による毒性情報の整備

研究協力機関

地方環境研究所19機関

第1段階 生活由来物質の環境実態調査・リスク評価

LC-MS担当

東京都環境科学研究所

クラリスロマイシン、
ジクロフェナクなど医
薬品類、ネオニコチ
ノイド系農薬、
リン酸エステル系
難燃剤等40物質
を対象



GC-MS担当

大阪市立環境科学 研究センター

トリクロサンやカフェ
イン、ノニル
フェノール
類等14物質
を対象



全国域の公共用水域、排水試料を分析
(夏期と冬期)

第1段階 生活由来物質の環境実態調査・リスク評価

非水溶性の医薬品、リン酸エステル系難燃剤、
ベンゾトリアゾール系紫外線吸収剤等

底質試料担当

名古屋市環境科学調査
センター

- ・底質への蓄積実態解明
- ・底生生物への生態リスク評価



生物試料担当

兵庫県環境
研究センター

高次捕食生物に対する
蓄積実態の解明



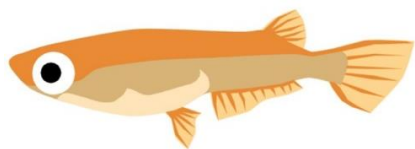
全国域の底質、生物試料を分析

第1段階 生活由来物質の環境実態調査・リスク評価

テルミサルタン、フェキソフェナジン等、生態毒性情報の不足した物質

生態毒性の評価

- ・ 魚類胚期・仔魚期短期毒性試験
- ・ ミジンコ類繁殖試験
- ・ 藻類生長阻害試験



PNEC算出
3生物種
の最小値

複合暴露



生態リスク評価

環境水濃度と
PNECの比較

単物質暴露と
複合暴露の比較



研究開発内容（第2段階の構成）

第2段階 生活由来化学物質の処理技術開発と実用化

サブテーマ1、2 環境実態調査・リスク評価担当

東京都環境科学研究所

・水質試料の分析（LC-MS）



大阪市環境科学研究センター

・水質試料の分析（GC-MS）

名古屋市環境科学調査センター

・底質試料の分析

兵庫県環境研究センター

・生物試料の分析

・蓄積性の評価



サンプル・データ授受

下水・排水試料
の提供

処理性情報の提供

サブテーマ4 処理技術開発担当

横浜国立大学、静岡県立大学

生活由来化学物質の処理技術

既存水処理技術の情報収集と検証対象候補の選定

生物学的処理

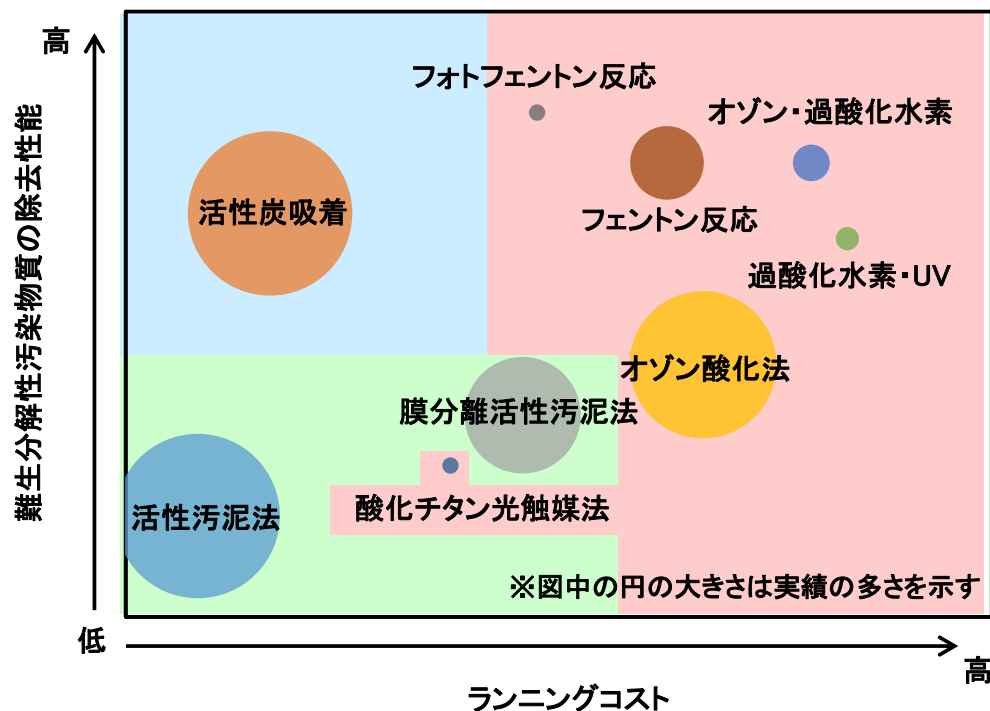
- 生物学的処理である活性汚泥法は下水処理場で一般的に用いられている
- ランニングコストが低い
- 難生分解性汚染物質のような低濃度の汚染物質の除去は想定されていない

物理学的処理

- 活性炭吸着はランニングコストが低く難生分解性汚染物質の除去性能が高い
- 汚染物質を吸着させたあとの二次処理が必要

酸化処理

- 主にオゾンを用いた方法（オゾン処理）と鉄を用いた方法（フェントン型処理）がある



酸化力の強い
オゾンやOHラジカルにより
有機物を分解する方法であり
難生分解性汚染物質の分解に有効

成果の概要 1 : 生活由来化学物質（医薬品類）の生態リスク評価 : ng/L

機関	採水地点	対象物質	クラリスロマイシン	14-ヒドロキシ クラリスロマイシン		エリスロマイシン		テルミサルタン		ジエチル-m- トルアミド		
			対象物質の用途		抗生物質		抗生物質		抗生物質		血圧降下剤	
季節			冬期	夏期	冬期	夏期	冬期	夏期	冬期	夏期	冬期	夏期
大阪市	第二寝屋川	鴨野大橋	600	150	580	200	100	29	860	1,200	100	210
大阪市	第二寝屋川	下城見橋	570	120	510	180	370	21	810	1,100	100	200
兵庫県	武庫川浄化センター上流		N.D.	N.D.	(0.4)	N.D.	N.D.	N.D.	8.8	(2.0)	(3.4)	N.D.
兵庫県	武庫川浄化センター下流		71	N.D.	32	N.D.	(3.4)	N.D.	190	47	20	N.D.
兵庫県	猪名川	猪名川橋	N.D.	2.5	N.D.	4.9	57	N.D.	(2.2)	28.0	N.D.	6.8
兵庫県	猪名川	利倉橋	470	77	470	81	57	17	1,300	420	26	45
名古屋市	新堀川	舞鶴橋	530	250	570	310	26	31	730	830	190	190
名古屋市	堀川	城北橋	340	23	330	29	23	N.D.	600	88	63	290
名古屋市	堀川	中土戸橋	400	100	390	130	25	9.3	730	490	73	180
東京都	多摩川	永田橋	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	11
東京都	多摩川	日野橋	180	57	220	79	30	16	620	370	18	120
東京都	多摩川	関戸橋	130	32	170	40	80	69	580	290	46	120
東京都	多摩川	多摩川原橋	180	30	230	40	82	49	670	290	30	120
C	C-1		(1.8)	N.D.	3.3	1.5	N.D.	N.D.	14	17	95	20
C	C-2		(1.8)	N.D.	3.7	1.4	(3.6)	N.D.	11	22	100	19
C	C-3		N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	25	N.D.
C	C-4		750	200	910	340	370	210	2,300	2,800	180	1,200
J	J-1		3.0	N.D.	3.0	N.D.	N.D.	N.D.	39	10	N.D.	(3.4)
J	J-2		860	150	900	220	80	38	2,200	1,300	76	290
PNEC			20		27		200		1,600		5,200	

N.D. : 検出下限値未満、() : 定量下限値未満N.A.、: 回収率異常により定量不可

成果の概要 1 : 生活由来化学物質（医薬品以外）の生態リスク評価 : ng/L

機関	採水地点		対象物質	リン酸トリス(1,3-ジクロロ-2-プロピル)		4-ノニルフェノール		カフェイン		トリクロサン		フェノール	
対象物質の用途				難燃剤、可塑剤		非イオン界面活性剤 の代謝物		精神神経系用薬		抗菌剤		消毒剤	
季節				冬期	夏期	冬期	夏期	冬期	夏期	冬期	夏期	冬期	夏期
大阪市	第二寝屋川	嶋野大橋	87	250	290	250	520	53	N.D.	44	N.D.	71	
大阪市	第二寝屋川	下城見橋	78	240	2,400	440	410	90	N.D.	48	N.D.	N.D.	
兵庫県	武庫川浄化センター上流		(1.6)	(1.3)	N.D.	N.D.	N.D.	33	N.D.	N.D.	N.D.	1,200	
兵庫県	武庫川浄化センター下流		19	10	N.D.	N.D.	N.D.	34	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	
兵庫県	猪名川	猪名川橋	(1.6)	4.3	N.D.	N.D.	N.D.	77	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	
兵庫県	猪名川	利倉橋	88	39	N.D.	N.D.	51	42	N.D.	43	N.D.	85	
名古屋市	新堀川	舞鶴橋	82	160	N.D.	N.D.	310	140	35	61	N.D.	N.D.	
名古屋市	堀川	城北橋	46	25	84	150	360	820	21	43	N.D.	N.D.	
名古屋市	堀川	中土戸橋	56	77	N.D.	190	250	190	37	49	N.D.	N.D.	
東京都	多摩川	永田橋	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	
東京都	多摩川	日野橋	44	87	N.D.	N.D.	N.D.	410	N.D.	41	180	220	
東京都	多摩川	関戸橋	35	65	N.D.	150	N.D.	370	N.D.	N.D.	690	N.D.	
東京都	多摩川	多摩川原橋	37	69	N.D.	N.D.	N.D.	310	N.D.	41	N.D.	N.D.	
C	C-1		(1.4)	(2.2)	N.D.	N.D.	130	40	N.D.	17	200	N.D.	
C	C-2		(1.8)	2.6	N.D.	N.D.	180	56	N.D.	N.D.	920	N.D.	
C	C-3		N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	27	N.D.	N.D.	240	N.D.	
C	C-4		110	300	N.D.	77	220	170	45	56	490	190	
J	J-1		5.8	N.D.	N.D.	N.D.	37	N.D.	N.D.	N.D.	N.A.	160	
J	J-2		180	120	N.D.	N.D.	140	27	48	40	150	160	
PNEC				200		210		5,200		28		800	

国内底質試料中の生活由来化学物質濃度(ng/g-dry)

	底質濃度 (ng/g-dry)					
	ロサルタン	イルベサルタン	テルミサルタン	クラリスロマイシン	アジスロマイシン	ロキシスロマイシン
	血圧降下剤	血圧降下剤	血圧降下剤	抗生物質	抗生物質	抗生物質
東京都_東京湾ST.5	<0.06	<0.03	21	1.3	8.5	<0.08
東京都_東京湾ST. 8	<0.06	0.40	42	1.4	12	0.16
東京都_東京湾ST.32	0.17	0.10	10	0.42	<0.80	0.06
名古屋市_港新橋	0.24	0.35	36	0.56	4.9	<0.08
大阪市_1_大阪湾中流	<0.06	0.37	44	2.4	<0.80	0.95
大阪市_2_淀川河口中央	0.21	0.21	12	0.74	10	<0.08
大阪市_3_毛馬橋左岸	<0.06	0.14	18	0.65	0.81	0.18
兵庫県_姫路沖	<0.06	0.09	4.0	1.8	<0.80	<0.08
A	<0.06	<0.03	7.0	0.24	<0.80	<0.08
B	0.11	0.09	17	1.3	<0.80	<0.08
C	<0.06	0.79	37	16	<0.80	0.50
D1	<0.06	<0.03	0.65	0.46	<0.80	<0.08
D2	<0.06	0.12	4.7	6.4	<0.80	0.37
D3	<0.06	0.18	7.5	1.4	<0.80	0.16
E	<0.06	0.05	1.4	0.77	<0.80	<0.08
F	<0.06	<0.03	2.9	1.5	3.1	<0.08
G	0.09	0.26	9.0	3.7	<0.80	<0.08
PNECsed	4.5×10^6	4.3×10^6	7.2×10^6	0.37	6.3	2.0

テルミサルタン、クラリスロマイシンは全地点から検出

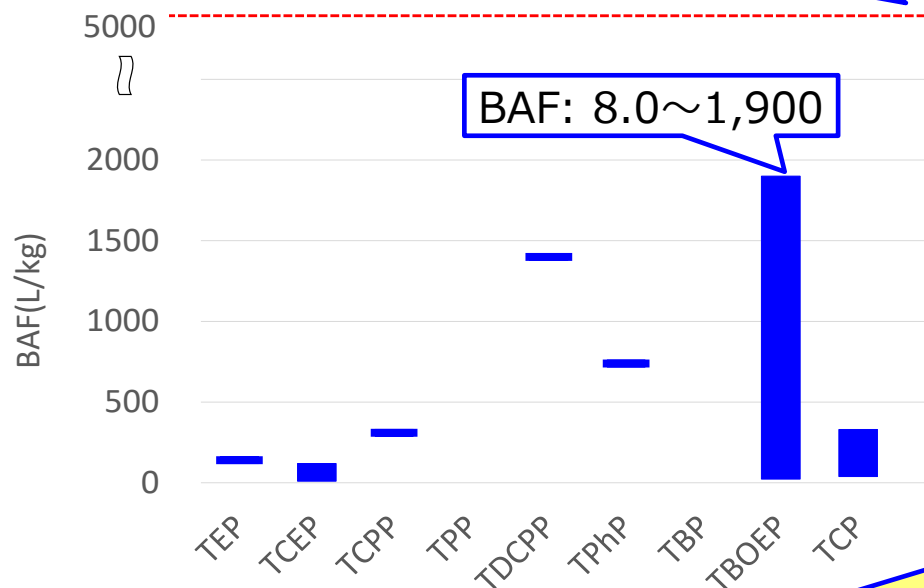
予測無影響濃度（PNEC）を超過した地点

- ・環境濃度がPNECを超過
- ・環境濃度がPNECの10倍以上

魚試料における物質ごとのBAFの範囲（左：PFRs, 右：BUVSs）

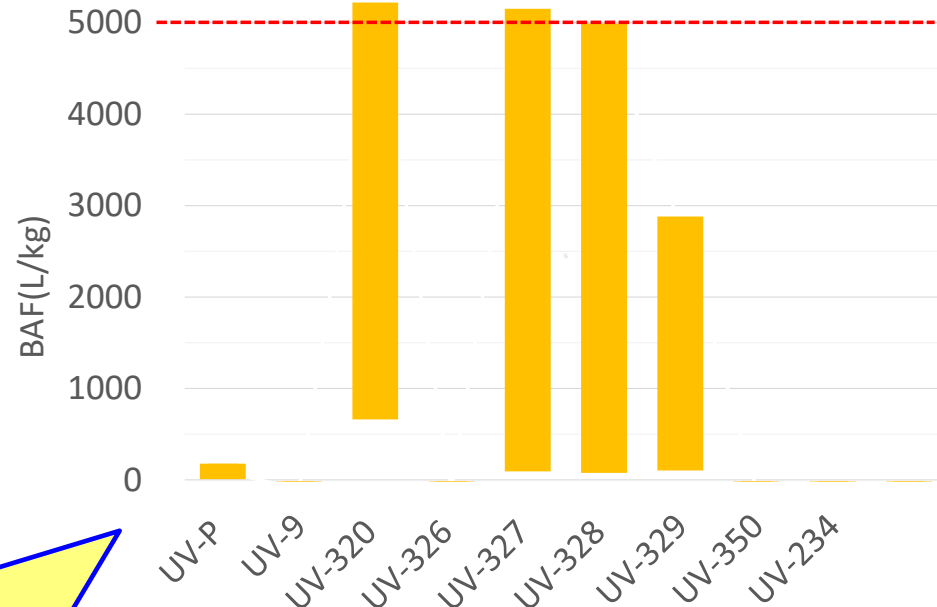
PFRs

POPs条約の高蓄積性の
判断基準：5,000



BUVSs

BAF: 89~**5,137**

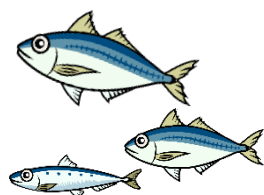


BUVSsに高い蓄積性のある可能性

公共用水域 UV326 : 146地点全地点でN.D.

UV327 : N.D.~9.0ng/L (146地点中132地点でN.D.)

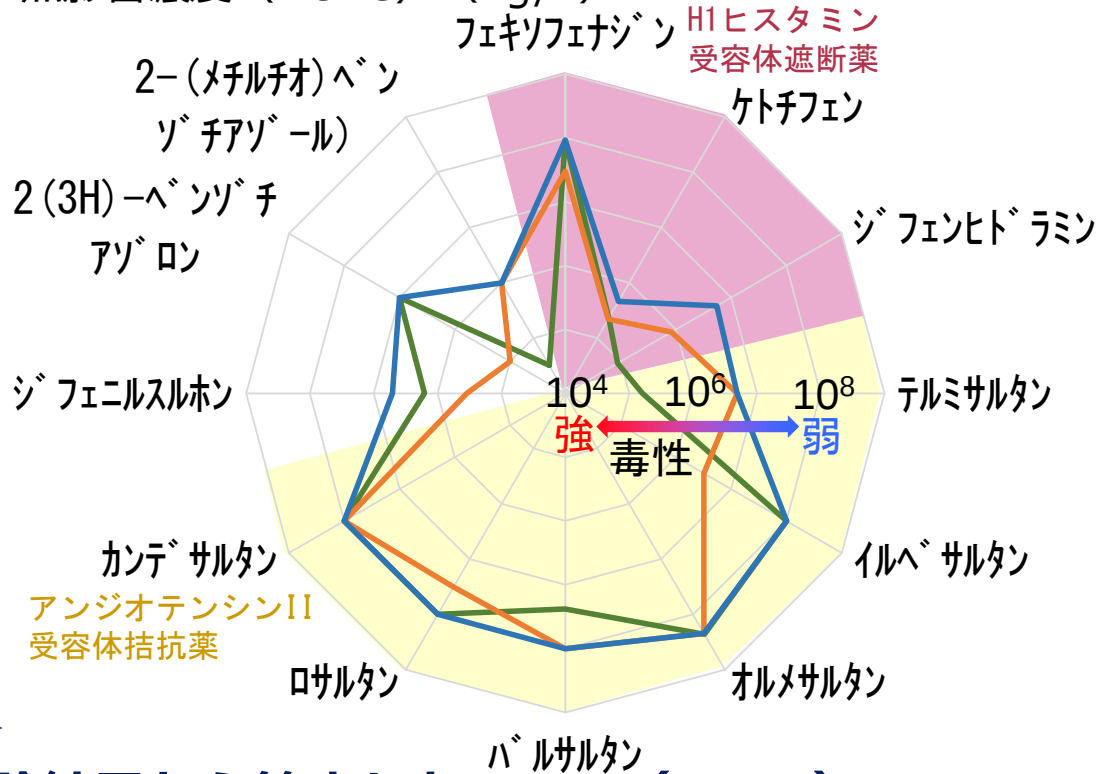
UV-P : N.D.~200ng/L (146地点中123地点でN.D.)



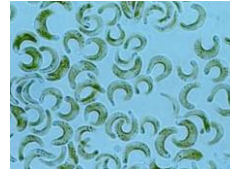
成果の概要3 生活由来化学物質の生態毒性評価

毒性情報のない12物質の生態毒性試験実施

無影響濃度 (NOEC) (ng/L)



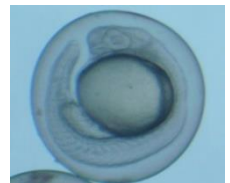
藻類生長阻害試験
OECD TG201



ミジンコ類繁殖試験
Environmental Canada
Biological test method
(2010)



魚類胚期・仔魚期
短期毒性試験
OECD TG212

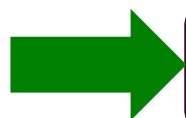


ふ化仔魚に浮腫あり
ジフェニルスルホン 16 mg/L

対照区

試験結果から算出したPNEC (ng/L)

物質名	フェキソフェナジン	ケチフェン	ジフェンヒドラミン	テルミサルタン	イルベサルタン	オルメサルタン	バルサルタン	ロサルタン	カンデサルタン	ジフェニルスルホン	2(3H)-ベンゾチアゾロン	2-(メチルチオ)ベンゾチアゾール
PNEC	300,000	2,200	880	1,600	32,000	>2.2 × 10 ⁶	240,000	320,000	>1.0 × 10 ⁶	3,500	1,000	320



サブテーマ1、2へ情報提供

成果の概要 3 複合暴露における生態リスク評価の検討

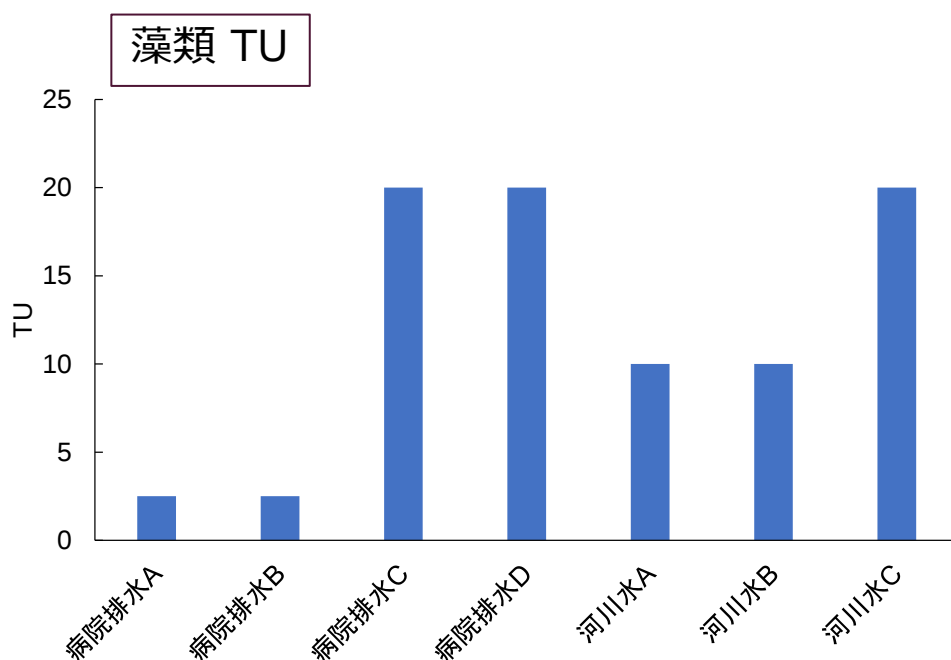
病院排水・河川水を用いた複合暴露における生態リスク評価の試行

Tamura, I. et al (2017)*を参考に、試料の毒性への生活由来物質の寄与を算出

病院排水・河川水の生態毒性試験

➡ 試料全体の毒性の大きさTU（毒性単位）

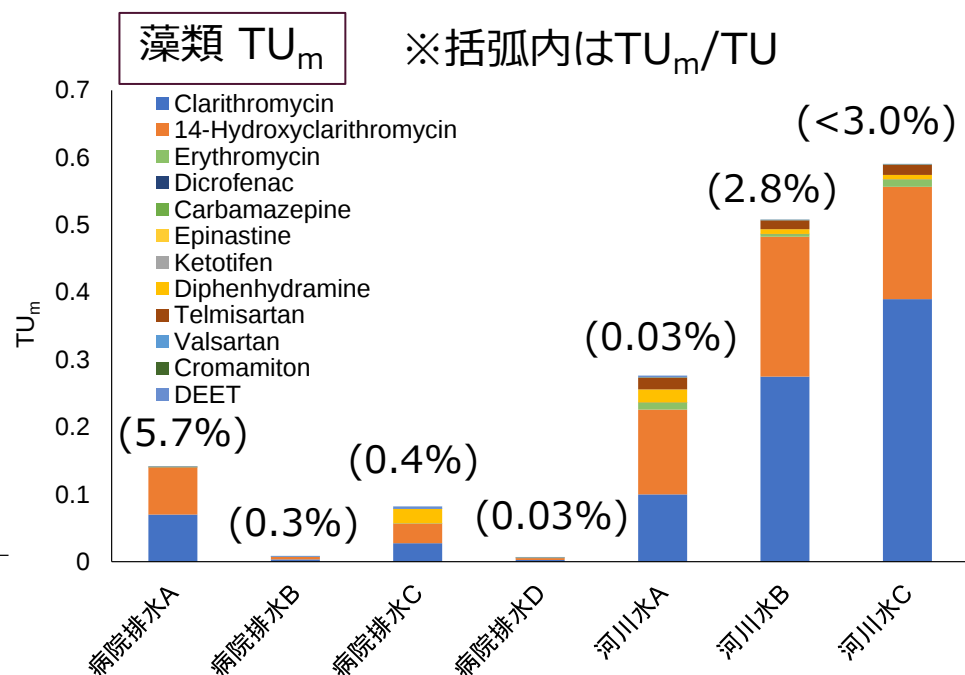
$$TU = 100(\%) / \text{NOEC}(\%)$$



病院排水・河川水中の生活由来化学物質濃度から推計

➡ 生活由来化学物質の毒性の大きさの和 TU_m

$$TU_m = \text{試料中濃度}(\text{ng/L}) / \text{NOEC}(\text{ng/L})$$

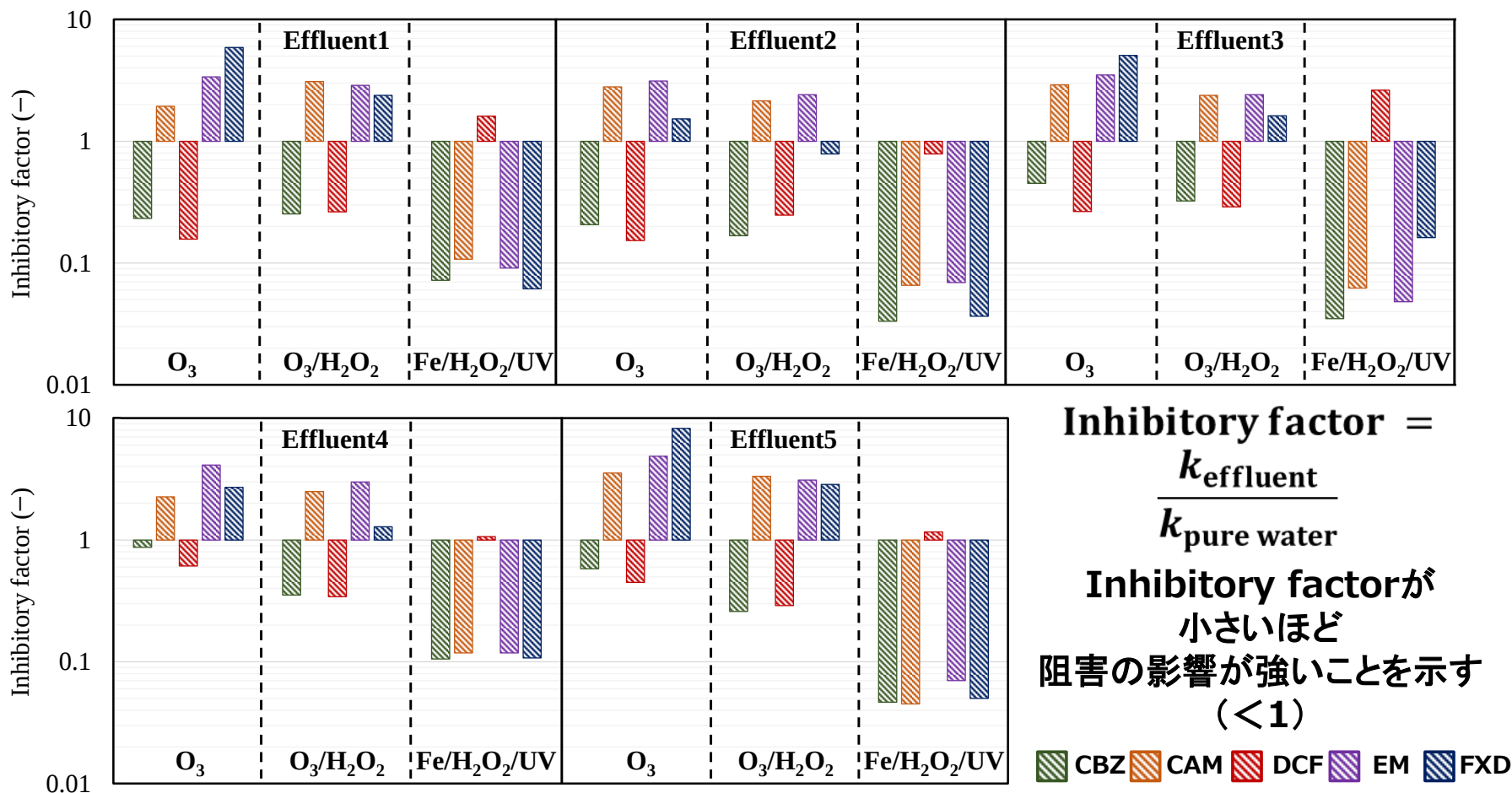


➡ 生活由来化学物質以外の寄与の可能性、独立作用や相乗作用の可能性について検証必要

*: Tamura, I. et al. Contribution of pharmaceuticals and personal care products (PPCPs) to whole toxicity of water samples collected in effluent-dominated urban streams. *Ecotoxicology and Environmental Safety*, 144 (2017) 338-350.

成果の概要4：低コストな水処理技術の実用化

実排水における分解反応の阻害影響



フोटフェントン反応を用いた場合、DCFを除く4物質で大きく阻害され、
オゾン酸化法、オゾン/過酸化水素法を用いた場合、CBZ、DCFが阻害されたが、
CAM、EM、FXDは促進された。 → 現段階においては、オゾン酸化法が有望

成果の概要4：低コストな水処理技術の実用化

実用化に向けたケーススタディー

大規模施設において有望と考えられるオゾン酸化法を、
標準活性汚泥法の三次処理としての導入を想定したケーススタディー

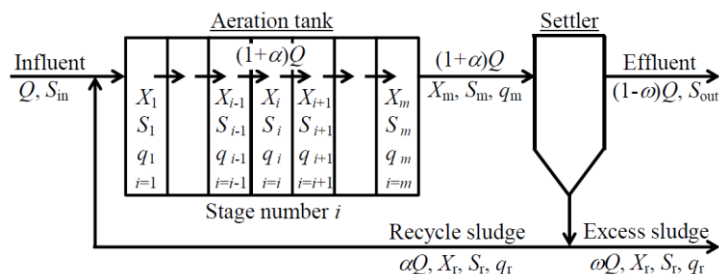
標準活性汚泥法による生活由来化学物質の除去率を推算

↓ ← 運転パラメータ、生分解速度定数、汚泥への吸着定数

オゾン酸化法による生活由来化学物質の除去率を推算

↓ ← 実排水中の生活由来化学物質の反応速度定数

オゾン酸化法の処理条件別の最終排水中の生活由来化学物質濃度を推算

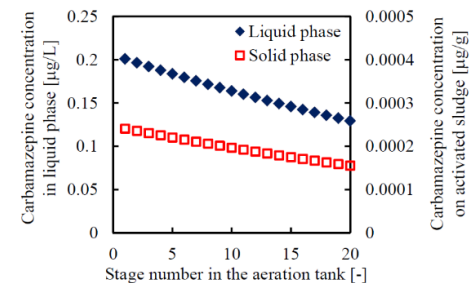


$$f_{X_1} = \frac{dX_1}{dt} = \frac{m\alpha Q}{V} X_r - \frac{m(1+\alpha)Q}{V} X_1 + r_X = 0$$

$$f_{X_i} = \frac{dX_i}{dt} = \frac{m(1+\alpha)Q}{V} (X_{i-1} - X_i) + r_X = 0$$

$$f_{S_1} = \frac{dS_1}{dt} = \frac{mQ}{V} (S_{in} + \alpha S_r) - \frac{m(1+\alpha)Q}{V} S_1 - k_r X_1 S_1 - k_s X_1 S_1 + \frac{k_s X_1 q_1}{K_d} = 0$$

$$f_{q_1} = \frac{dq_1}{dt} = \frac{m\alpha Q X_r}{X_1 V} q_r - \frac{m(1+\alpha)Q}{V} q_1 + k_s S_1 - \frac{k_s q_1}{K_d} = 0$$



既存の下水処理場では流入CBZ ($0.36 \mu\text{g L}^{-1}$) に対して41%を除去
オゾン酸化法を後処理として加えることで、実排水中の阻害影響を考慮しても、
最終的な除去率を99%以上に増加させることができる

見込まれる環境政策への貢献



環境省

生活由来化学物質の環境影響評価に関する検討事業



同事業と情報共有を通じた成果の活用

生活由来化学物質

環境省「化学物質環境実態調査」でも調査



同調査のデータの補完

生活由来化学物質の実用的な処理技術開発



実施設への導入

研究成果の発表状況について

査読付き論文 2件

- 1) Kosuke Muramatsu、Masahiro Tokumura、Qi Wang、Yuichi Miyake、Takashi Amagai、Masakazu Makino、Mitigation of the inhibitory effects of co-existing substances on the Fenton process by UV light irradiation、Journal of Environmental Science and Health、Part A、55、730-738、2020. (IF=2.269)
- 2) Madoka Wanikawa、Kosuke Muramatsu、Masahiro Tokumura、Qi Wang、Yuichi Miyake、Takashi Amagai、Masakazu Makino、Development of Analytical Method for Degradation of PPCPs by Photo-Fenton Reaction、Organohalogen Compounds、81、254-257、2019.

査読付き論文に準ずる成果発表 1件

Nishino, T., Kato, M., Miyazawa, Y., Tojo, T., Asakawa, D., Okata, M., Matsumura, C., Haga, Y., Kakoi, T., Hasegawa, H., Okamura, T. and Sawai, A.: Ecological risk assessment of pharmaceuticals and personal care products in the water environment of 15 cities in Japan. Research Square.
<https://doi.org/10.21203/rs.3.rs-719999/v1>

その他誌上発表（査読なし）

- 1)西野貴裕、環境浄化技術 2020年11月号、国内都市河川における化学物質のスクリーニング
- 2)国立環境研究所：令和元年度POPs及び関連物質等に関する日韓共同研究業務報告書(2020)
- 3)国立環境研究所：令和2年度POPs及び関連物質等に関する日韓共同研究業務報告書(2021)
- 4)国立環境研究所：令和3年度POPs及び関連物質等に関する日韓共同研究業務報告書(印刷中)

研究成果の発表状況について

口頭発表（学会等）	45件
「国民との科学・技術対話」の実施	10件
本研究に関連する受賞	4件

主な発表事例（学会等）

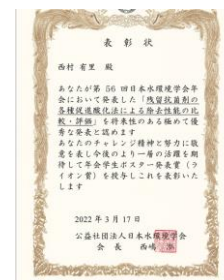
- ・ Takahiro Nishino, Mika Kato, Yoshitaka Miyazawa, Toshiki Tojo, Chisato Matsumura, Hitomi Hasegawa, Atsushi Sawai, SETAC North America 41th Annual Meeting (2020), Pharmaceuticals and personal care products in the aquatic environment in Japan: A risk assessment study
- ・ 坂本和暢、羽賀雄紀、松村千里、第30回環境化学討論会（2022）「GC-HRMSを用いた魚中におけるベンゾトリアゾール系紫外線吸収剤(BUVSs)の分析法開発と濃度実態について」
- ・ Madoka Wanikawa、Yuri Nishimura、Masahiro Tokumura、Qi Wang、Yuichi Miyake、Takashi Amagai、Masakazu Makino、Comparison of Oxidation Processes in Degradation of Pharmaceuticals and Personal Care Products、The Water and Environment Technology Conference 2021 (WET 2021)、Online. (August 2021)

主な発表事例（国民との科学・技術対話）

- ・ 東京都環境科学研究所公開研究発表会（令和元年12月20日、参加者約140名）
- ・ 第12回サイエンスフェアin兵庫（令和2年1月26日、聴講者約100名）
- ・ 環境サマースクール2021「環境浄化と食品、化粧品の意外な関係」（令和3年8月5日、静岡県立大学、聴講者約15名）



東京都環境科学研究所
公開発表会での講演風景



第56回日本水環境学会
年会ポスター発表 表彰状