

宮城県の水環境に分布する医薬品類の分析

Analysis of Drugs in Aquatic Environments in Miyagi Prefecture

遠藤美砂子 中村 朋之
畠山 敬 川向 和雄

Misako TAGIRI-ENDO, Tomoyuki NAKAMURA
Takashi HATAKEYAMA, Kazuo KAWAMUKAI

環境水中の医薬品を分析する方法を検討するとともに、宮城県内で採取した下水処理水、畜舎場内水、河川水中の医薬品を分析した。下水処理水からは10種の医薬品が検出された。畜舎場内水からは使用している医薬品が検出されたが、場外に排出されるまでに大幅に減少する傾向がみられた。河川水は、91種の医薬品をスクリーニングし8種の医薬品を検出したが、いずれの医薬品も濃度は3 ppt 以下であった。

キーワード：医薬品；水環境；LC/MS；環境水分分析

Key words : Drugs ; Aquatic environment ; LC/MS ; Water analysis

1 はじめに

近年、新たな水環境汚染物質として医薬品や身体ケア用品が目ざされている。なかでも医薬品は、生理作用をもつものが多く、生体からの排出や未使用医薬品の処理などにより、環境へ放出されることが考えられる。特に抗生物質や合成抗菌剤の環境中への放出は、薬剤耐性菌の発生を引き起こすことが懸念される。環境中の医薬品の存在は、欧米でいち早く調査され、国内では下水処理場水¹⁾や東京都・神奈川県を中心とした地域において河川水²⁾からの医薬品の検出事例が報告されている。本県は畜産業が盛んなこともあり、畜産業由来の医薬品について、その環境中への排出状況を把握しておくことが重要と考えられる。

そこで、県内の下水処理水、畜舎場内水、河川水を採取し、動物用抗菌剤を中心とした医薬品類の分析方法を検討するとともに、それら医薬品の分布状況について調査したので報告する。

2 方法

2.1 分析対象物質

LC/MS分析では、下水処理場水は表1に示すマクロライド系抗生物質5物質を、畜舎場内水は表2に示す4物質を分析対象とした。LC/MS/MS分析では、下水処理水および河川水について動物用医薬品を中心とした表3に示す110物質を分析対象とした。

2.2 調査試料

2.2.1 下水処理水

県内のA下水処理場の処理場流入水および最終沈殿水の2カ所から採水した。

2.2.2 畜舎場内水

県内のB畜舎のラグーン処理水、緩衝池出口、場外排水路、河川流入直後4カ所から採水した。

2.2.3 河川水

宮城県蔵王町松川の図1に示す5カ所から採水した。

2.3 装置および測定条件

2.3.1 LC/MS 測定条件

LCはAgilent 1100シリーズLC/MSDを用い、分析カラムにはAgilent社製ZORBAX SB-Aq (2.1×150 mm, 3.5μm)を用いた。試料注入量は5μl、カラム温度は40℃、移動相は0.1%ギ酸とアセトニトリルのグラジエント溶出とし、流速は0.2 ml/minとした。グラジエント条件は表4(1)に示した。イオン化はESIのポジティブモードで行い、SIM測定により定量した。化合物毎の測定条件は表1および表2に示した。測定中固定した条件は、Nebulizer 圧力：40psi, Drying gas：10L/min；350℃；Capillary Voltage 4500Vに設定した。試料中濃度は標準添加法で、回収率は絶対検量線法で算出した。

2.3.2 LC/MS/MS 測定条件

LCはLC/MSと同様の条件で行い、グラジエント条件は表4(2)に示した。MS/MSはApplied Biosystems API3000を用いた。イオン化はエレクトロスプレー(ESI)によるポジティブモード(POS)ならびにネガティブモード(NEG)で行い、multiple reaction monitoring(MRM)測定により定量した。化合物毎のMRM測定条件は表3に示した。イオンスプレー電圧は5500V(POS)；-3500V(NEG)、イオン源温度は450℃、ネブライザーガスは13,カーテングスは11(POS)；9(NEG)、コリジョンガスは5に設定した。なお、dwell timeの制限から、LC/MS/MS分析は3系列(POS 2系列, NEG 1系列)で行った。試料中濃度は標準添加法で、回収率は絶対検量線法で算出した。

2.4 固相抽出による試料前処理

2.4.1 マクロライド系抗生物質分析の試料前処理

試料水(下水処理水)にEDTA(200mg/l)を加え、

添加試料についてはさらに1000pptとなるように標準溶液を加えた。濾紙 (glass microfiber filter, Whatman) で吸引濾過後、試料水をコンデショニングした OASIS HLB Plus (Waters) に10ml/分で10分通水した。その後、水10mlで洗浄してから、20分乾燥後、メタノール15mlで溶出し、エバポレータで濃縮乾固した。再度、クロロホルム3mlに溶解し、ディスクフィルターで濾過後濃縮した。200 μ lのメタノールに再溶解し、ディスクフィルターで濾過後、LC/MSに供した。

2.4.2 医薬品一斉分析の試料前処理

試料水にEDTA (200mg/l)を加え、添加試料についてはさらに下水処理水の場合は100ppt、畜産場内水の場合は1000ppt、河川水の場合は10pptとなるように標準溶液を加えた。濾紙で吸引濾過後、試料水を OASIS HLB Plus に10ml/分で通水した (下水処理水および畜産場内水:10分、河川水:30分)。その後、水10mlで洗浄してから、20分乾燥後、メタノール15mlで溶出し、エバポレータで濃縮乾固した。畜産場内水は1mlの水、下水処理水は10ml、河川水は300 μ lのメタノールに再溶解し濾過後、必要であればさらに希釈してLC/MSまたはLC/MS/MSに供した。

3 結果と考察

3.1 分析条件の検討

畜産物の残留動物用医薬品モニタリング検査の条件³⁻⁵⁾を参考として、動物用医薬品の他にクラリスロマイシンやロキシスロマイシンなどの人用抗生物質を追加して検討した。検討した条件は表1~表4に示した。

3.2 前処理法の検討

3.2.1 固相抽出

環境水分析でよく利用される Oasis HLB⁶⁾、Oasis MCX⁷⁾、Autoprep PS@LiqHQ等を用いて検討した結果、Oasis HLBを用いた場合、多くの医薬品を分析することができた。Oasis MCXは塩基性化合物の分析に有効と思われたが、タイロシンなどの分析ができなかった。Oasis HLBは試料夾雑物の精製は十分ではないが、たとえば畜舎で使用されている4医薬品を同時に精製でき、100pptオーダーの濃度であればLC/MSでも分析することが可能であった。

3.2.1 マクロライド系抗生物質の分析

夾雑物の多い下水処理場流入水などの場合、Oasis HLBの精製だけでは、LC/MSでの分析が困難であった。しかし、Oasis HLBメタノール溶出画分を各種の溶媒に再転溶した結果、水やクロロホルムを転溶液にすることで、多くの試料夾雑物を取り除くことができた。マクロライド系抗生物質はクロロホルムへの溶解性が高く⁸⁾、下水から高濃度で検出されるクラリスロマイシン¹¹⁾などがマクロライドであることから、下水処理場流入水を2.4.1の方法により精製し、マクロライド系抗生物質を分析したところ、表1に示す5物質をLC/MSで分析す

ることが可能であった。

3.3 添加回収

絶対検量線法により求めた下水処理水、畜舎場内水、河川水の添加回収率をそれぞれ表5、表6、表7に示した。下水処理水 (表5) は検出された医薬品の回収率のみ示した。LC/MS/MS (前処理は2.4.2)により110の医薬品を分析したところ、下水処理水では78物質、河川水では91物質が本分析法で測定可能であった。回収率が20%以下の場合でも、S/Nが十分に大きければ測定可能と判断した。また、検出下限値 (S/N=3)は下水処理水では10~500ppt、畜産場内水では20~100ppt、河川水では0.3~10pptであった。

3.4 定量および同定

絶対検量線法により求めた回収率からも明らかのように、試料毎に回収率が大きく異なっていた。これは固相抽出における回収量の他に、質量分析におけるイオン促進/抑制によるものと思われ、絶対検量線法では正確な定量値が得られないと考えられる。そこで試料の定量値は標準添加法で算出することとした。また、夾雑物の影響による誤検出を避けるため、検出された物質については、LC/MS/MS分析によって定量用イオンの他に確認用イオンを測定し、そのイオン強度比 (確認用イオンの面積/定量用イオンの面積)を標準溶液と比較して同定した^{3, 8)}。

3.5 実試料の分析

3.5.1 下水処理水の分析

下水処理水からは10種の医薬品が検出された (表8)。そのうち、クラリスロマイシンが最も高濃度 (処理場流入水:1400ppt、最終沈殿水:900ppt)で検出され、他の下水処理場の結果¹⁾と一致した。また、処理場流入水から最終沈殿水の間で濃度が減少する傾向がみられた。下水処理水は最終的に塩素処理⁹⁾され、海へ排出されることから、高濃度の医薬品が河川へ排出される可能性は高くないと考えられる。

3.5.2 畜舎場内水の分析

B畜舎で使用されている医薬品の場内水における残留量を調査した (表9)。ラグーン処理水では、3物質で700ppt以上検出されたものの、場外排水路以降で検出されたのはリンコマイシンのみであった。リンコマイシンも河川流入直後には、大幅に減少 (180ppt)していた。このことから、B畜舎からの医薬品の排出量はあまり多くないと思われる。

3.5.3 河川水の分析

91種類の医薬品をスクリーニングしたが、検出される医薬品は少なく (表10)、濃度も低かった (3ppt以下)。上流付近よりも下流付近の方がやや高い濃度で検出され、種類も多い傾向にあった。採水した河川は、畜舎が多く存在する場所であるが、畜産由来医薬品の河川への流出はあまり多くはないと考えられる。他の地域の河川水からは、スルファメトキサゾール、オキシテトラサイ

クリンなどが100 ppt以上検出された例²⁾があり、この例と比較しても排出されている医薬品は少ないと思われる。

4 まとめ

環境水中の医薬品を分析する方法を検討するとともに、宮城県内で採取した下水処理水、畜舎場内水、河川水中の医薬品を分析した。下水処理水からは10種の医薬品が検出された。そのうち、クラリスロマイシンが最も高濃度に存在した。畜舎場内水からは使用している医薬品が検出されたが、場外に排出されるまでに大幅に減少する傾向がみられた。河川水は、91種の医薬品をスクリーニングし8種の医薬品を検出したが、いずれの医薬品も濃度は3ppt以下であった。採水した河川は、畜舎が多く存在する場所であるが、畜産由来医薬品の河川への流出はあまり多くはないと考えられる。他の地域の河川水と比較しても排出されている医薬品は少ないと思われる。

表1 マクロライド系抗生物質のMS分析条件

医薬品名	モニター時間(分)	SIMイオン(m/z)	Fragmentor(V)
チルミコシン	13-18	435.4	140
エリスロマイシン	13-18	734.5	160
クラリスロマイシン	18-25	748.5	160
ロキシスロマイシン	18-25	837.5	160
タイロシン	18-25	916.5	160

参考文献

- 1) 八十島誠, 山下尚之, 中田典秀, 小森行也, 鈴木穰, 田中宏明: 水環境学会誌, 27, 707 (2004).
- 2) 清野敦子, 古荘早苗, 益永茂樹: 水環境学会誌, 27, 685 (2004).
- 3) 遠藤美砂子, 柳田則明: 分析化学, 56, 317 (2007).
- 4) 遠藤美砂子, 山内一成, 氏家愛子, 柳田則明: 宮城県保健環境センター年報, 24, 63 (2006).
- 5) 遠藤美砂子, 柳田則明: 宮城県保健環境センター年報, 25, 62 (2007).
- 6) M.E.Lindsey, M.Meyer, E.M.Thurman: *Anal. Chem.*, 73, 4640 (2001).
- 7) D.Calamari, E.Zuccato, S.Castiglioni, R.Bagnati, R.Fanelli: *Environ. Sci. Technol.*, 37, 1241 (2003).
- 8) Official Journal of the European Communities: 2002/657/EC, L 221/16 (2002).
- 9) 久保田領志, 田原麻衣子, 清水久美子, 徳永裕司, 西村哲治: 第44回全国衛生化学技術協議会年会講演集, 151 (2007).

表2 畜舎場内水分析のMS分析条件

医薬品名	モニター時間(分)	SIMイオン(m/z)	Fragmentor(V)
リンコマイシン	5-12.5	407.2	160
チルミコシン	12.5-18	435.4	140
タイロシン	18-22	916.5	160
バルネムリン	22-25	565.4	140

表4 グラジエント条件

(1) LC/MS			(2) LC/MS/MS		
時間(分)	0.2%ギ酸(%)	アセトニトリル(%)	時間(分)	0.2%ギ酸(%)	アセトニトリル(%)
0	100	0	0	100	0
5	70	30	1	70	30
10	70	30	5	70	30
25	50	50	15	0	100
26	0	100	19	0	100
31	0	100	20	100	0
32	100	0	30	100	0



図1 河川水(蔵王町松川)の採水場所

表5 下水処理場水試料における医薬品の添加回収率

医薬品名	分析法	添加濃度(ppt)	回収率(%)	
			処理場流入水	最終沈殿水
エリスロマイシン	LC/MS	1000	50	18
クラリスロマイシン	LC/MS	1000	49	35
ロキシスロマイシン	LC/MS	1000	59	40
オフロキサシン	LC/MS/MS	100	15	57
スルファジアジン	LC/MS/MS	100	45	38
スルファメトキサゾール	LC/MS/MS	100	31	31
スルファピリジン	LC/MS/MS	100	59	31
トリメプリーム	LC/MS/MS	100	44	51
クロラムフェニコール	LC/MS/MS	100	-	130
チアベンダゾール	LC/MS/MS	100	52	53

-:測定不能

* n=3

表3 医薬品のLC/MS/MS一斉分析のMS/MS条件

医薬品名	メソッド名	Precursor ion (m/z)	Product ion (m/z)	Dwell time (ms)	Declustering potential	Focusing potential	Collision energy	Collision cell exit potential
2-アセチルアミノ-5-ニトロチアゾール	NEG	185.93	138.90	10	-31	-130	-18	-9
クロルスロン	NEG	379.88	343.80	50	-51	-200	-16	-11
クロラムフェニコール	NEG	321.06	152.00	200	-41	-150	-24	-7
クロキサシリン	NEG	434.05	292.90	10	-31	-110	-18	-9
ジクラズリル	NEG	405.06	333.90	10	-46	-190	-26	-11
ジフルベンスロン	NEG	308.96	156.00	150	-36	-130	-14	-13
エトバベイト	NEG	235.89	191.90	10	-46	-170	-30	-15
フロルフェニコール	NEG	355.78	335.80	50	-61	-120	-14	-9
モネシリン	NEG	669.49	87.10	100	-61	-270	-78	-7
ナイカルバジン	NEG	300.88	136.90	10	-31	-120	-16	-9
ニフルステレン酸ナトリウム	NEG	257.92	183.80	50	-41	-160	-18	-13
ナラシン	NEG	763.53	255.10	10	-41	-160	-46	-15
ベンジルペニシリン	NEG	332.88	192.00	100	-31	-120	-16	-13
フェノキシメチルペニシリン	NEG	349.04	207.90	10	-36	-170	-14	-11
サリノマイシン	NEG	749.51	241.09	10	-66	-290	-48	-13
スルファメトラン	NEG	334.05	136.40	50	-61	-250	-40	-7
トルフェナム酸	NEG	260.01	215.90	50	-46	-170	-22	-11
チアンフェニコール	NEG	353.78	185.00	100	-51	-190	-30	-9
パージニアマイシン	NEG	524.25	245.08	10	-41	-180	-46	-15
アルベンダゾール代謝物	POSA	240.01	198.10	10	61	280	24	14
アンピシリン	POSA	350.06	106.00	20	36	170	29	18
アザペロン	POSA	328.20	165.00	10	46	90	33	10
クロビドール	POSA	191.99	101.10	20	56	240	39	18
シフロフロキサシン	POSA	332.13	288.10	20	66	340	25	18
クロルテトラサイクリン	POSA	479.15	444.10	50	41	180	29	14
ジアベリジン	POSA	261.11	123.20	10	46	270	33	8
ジフチルサキシネート	POSA	231.23	101.08	10	21	130	19	18
ジフロキサシン	POSA	400.23	356.20	10	41	180	29	10
ダノフロキサシン	POSA	358.11	314.20	50	51	230	27	20
ダイアジノン	POSA	305.13	169.13	10	41	180	27	12
エンロフロキサシン	POSA	360.00	316.20	10	46	200	29	18
フルアズロン	POSA	506.10	158.15	10	46	220	29	10
イソメタジウム	POSA	460.21	298.10	100	41	170	33	16
キタサマイシン	POSA	772.61	109.20	10	51	210	61	8
レバミゾール	POSA	204.79	178.20	20	41	200	31	12
マルボフロキサシン	POSA	363.19	320.10	10	46	180	23	20
モランデル	POSA	220.87	123.20	20	46	200	49	8
メロキシカム	POSA	352.08	115.11	10	36	150	31	20
ノルフロキサシン	POSA	320.18	276.10	10	56	240	27	18
ネオスピラマイシン	POSA	699.28	174.20	30	51	240	41	12
オフロキサシン	POSA	362.12	318.20	10	41	180	27	20
オルビフロキサシン	POSA	396.14	352.20	10	46	210	27	10
オルメトプリム	POSA	274.89	123.20	10	41	190	33	22
オキシテトラサイクリン	POSA	461.16	426.10	20	41	180	27	14
プロボキサシリン	POSA	210.17	111.05	10	21	210	21	20
ピベロニルプトキシド	POSA	356.29	177.17	10	26	130	17	10
ピラントール	POSA	207.01	150.20	50	46	210	39	10
プロベタンホス	POSA	282.12	138.03	30	16	120	25	10
ピリメタミン	POSA	248.77	177.10	10	41	190	41	12
スルファセタミド	POSA	215.07	156.00	10	21	100	15	10
スルファジメトキシ	POSA	311.04	156.10	10	51	240	29	10
スルファドキシ	POSA	311.04	156.10	10	51	240	29	10
スルファジアジン	POSA	251.11	156.00	20	31	140	23	10
スルファグアニジン	POSA	215.10	92.20	30	31	140	35	16
スルファモノメトキシ	POSA	281.08	156.00	50	41	180	25	10
スルファメトキシピリダジン	POSA	281.00	156.00	50	41	180	25	10
スルファメトキサゾール	POSA	254.07	92.20	20	36	180	35	16
スルファピリジン	POSA	250.09	156.00	10	36	160	23	12
スピラマイシン	POSA	843.34	174.30	30	61	300	51	12
サラフロキサシン	POSA	386.03	342.10	10	46	200	27	12
スルファチアゾール	POSA	256.03	156.00	20	31	150	21	10
5-ヒドロキシチアベンダゾール	POSA	201.81	175.00	10	86	260	35	12
チアベンダゾール	POSA	217.90	191.00	20	51	290	37	14
テトラサイクリン	POSA	445.20	410.10	50	41	140	27	12
トリクロルホン	POSA	257.01	127.10	50	31	130	25	22
トリメトプリム	POSA	290.88	230.10	20	51	210	33	16
トリベレナミン	POSA	256.25	211.10	10	36	100	23	20
キシラジン	POSA	221.09	90.20	10	61	180	31	16
アルベンダゾール	POSB	266.01	234.00	10	51	270	29	14
クラリスロマイシン	POSB	748.55	158.24	10	46	180	47	30
ジフラゾン	POSB	361.07	222.10	20	66	290	25	14
ドキシサイクリン	POSB	445.20	98.20	200	46	160	61	18
デキサメタゾン	POSB	435.16	415.10	10	31	140	13	24
エブリノメクチン	POSB	914.54	186.20	20	31	140	23	12
エリスロマイシン	POSB	734.47	158.20	10	51	200	43	12
エトキシキン	POSB	218.26	148.15	10	36	170	33	14
フェノブカルブ	POSB	208.10	95.20	10	31	150	21	16
フルベンダゾール	POSB	313.92	282.00	10	61	290	31	18
ファミフル	POSB	326.05	93.10	10	36	150	41	16
フルメキン	POSB	262.10	202.20	10	36	170	45	14
フルニキン	POSB	297.11	264.00	10	46	190	47	18
ヒドロコルチゾン	POSB	405.21	327.20	50	46	190	25	10
リンコマイシン	POSB	407.20	82.20	50	31	130	111	16
ロイコマラカイトグリーン	POSB	331.26	239.30	10	51	210	45	16
メキシダゾール	POSB	296.10	264.10	10	46	200	31	18
マラカイトグリーン	POSB	329.27	208.27	10	41	180	51	20
モキシデガチン	POSB	640.37	528.30	20	26	110	13	18
ナリジクス酸	POSB	232.88	187.20	10	31	170	35	12
ノロピオシン	POSB	613.26	189.20	10	46	200	39	14
オキシベンダゾール	POSB	250.17	218.10	10	46	200	27	14
オキシリノ酸	POSB	262.09	216.00	50	31	140	41	14
オキサシリン	POSB	402.03	160.00	50	31	150	19	12
ピロミド酸	POSB	289.14	243.00	10	31	170	41	16
ホキシム	POSB	299.11	129.10	10	26	110	21	20
ロベニジン	POSB	334.09	155.10	10	26	120	31	10
リファキシミン	POSB	786.44	754.40	10	51	240	33	26
ロキシスロマイシン	POSB	837.51	158.25	30	56	290	47	26
ロキサルソン	POSB	264.01	91.05	50	41	170	31	16
スルファベンズアミド	POSB	277.09	156.00	10	26	110	19	10
スルファクロルピリダジン	POSB	285.00	156.00	20	41	200	21	10
スルファジミジン	POSB	279.00	186.00	10	41	200	25	12
スルフィソゾール	POSB	240.13	156.04	10	36	150	21	10
スルファメラジン	POSB	265.09	92.20	10	41	210	41	16
スルファメチゾール	POSB	271.07	156.10	10	36	160	23	26
スルファキノキサリン	POSB	301.03	156.00	10	36	170	25	10
チアムリン	POSB	494.29	192.20	10	46	180	29	14
チルミコシン	POSB	869.42	174.30	100	61	320	59	12
テメホス	POSB	467.02	419.10	10	56	240	29	14
タイロシン	POSB	916.52	174.20	10	51	230	55	12
バルネムリン	POSB	565.37	263.10	30	31	140	25	18

表7 河川水（蔵王町松川）試料における医薬品の添加回収率

医薬品名	回収率(%)				
	①大日向橋付近	②秋山沢橋付近	③別荘地奥	④さんさ亭付近	⑤宮大橋付近
2-アセチルアミノ-5-ニトロチアゾール	94	87	73	86	94
クロルスロン	70	58	54	60	66
クロラムフェニコール	120	100	93	110	110
クロキシサリン	—	—	—	—	—
ジクラズリル	54	46	51	62	52
ジフルベンズロン	63	55	59	79	60
エトバベイト	120	110	69	79	110
フロルフェニコール	74	82	73	84	69
モネンシン	52	61	48	33	44
ナイカルバジン	34	25	25	31	35
ニフルステレン酸ナトリウム	14	—	13	14	25
ナラシン	30	49	30	15	25
ベンジルペニシリン	—	—	—	—	—
フェノキシメチルペニシリン	—	—	—	—	—
サリノマイシン	34	53	35	17	28
スルファニトラン	47	43	48	35	45
トルフェナム酸	69	56	63	90	62
チアンフェニコール	78	71	54	66	70
パーシニアマイシン	66	40	42	—	54
アルベンダゾール代謝物	44	50	51	69	44
アンピシリン	—	—	—	—	—
アザペロン	—	—	—	—	—
クロビドール	67	81	76	36	75
シフロフロキサシン	27	40	45	34	20
クロルテトラサイクリン	54	75	50	93	62
ジアベリジン	25	19	30	30	24
ジフチルサキシネート	—	—	—	—	—
ジフロキサシン	15	34	29	26	21
ダノフロキサシン	—	—	—	—	—
ダイアジノン	10	15	8.8	6.0	12
エンロフロキサシン	12	25	20	18	17
フルアズロン	13	4.2	12	4.6	12
イソメタジウム	—	—	—	—	—
キタサマイシン	28	15	17	9.1	22
レバミゾール	35	21	32	26	29
マルボフロキサシン	6.1	14	12	16	9.8
モランテル	30	25	33	33	31
メロキシカム	38	28	38	41	39
ノルフロキサシン	—	—	—	—	—
ネオスピラマイシン	—	—	—	—	—
オフロキサシン	12	21	19	14	16
オルビフロキサシン	43	65	56	52	69
オルメトプリム	31	25	37	35	28
オキシテトラサイクリン	73	100	86	130	91
プロボキスル	62	44	47	22	71
ピベロニルフトキシド	37	—	24	21	37
ピランテル	29	17	27	27	24
プロベタンホス	43	52	36	27	43
ピリメタミン	26	23	24	31	24
スルファセタミド	36	25	28	37	27
スルファジメトキシ	45	17	18	26	38
スルファドキシ	32	18	17	35	26
スルファジアジン	32	23	25	33	24
スルファグアニジン	54	53	50	32	44
スルファモノメトキシ	54	37	25	44	45
スルファメトキシピリダジン	33	25	20	30	27
スルファメトキサゾール	39	25	19	40	39
スルファピリジン	33	21	20	42	31
スピラマイシン	—	—	—	—	—
サラフロキサシン	20	40	24	32	28
スルファチアゾール	38	28	24	43	31
5-ヒドロキシチアベンダゾール	68	66	75	49	58
チアベンダゾール	72	73	83	54	71
テトラサイクリン	61	84	71	120	67
トリクロルホン	45	44	50	57	70
トリメトプリム	36	26	33	35	35
トリベレナミン	—	—	—	—	—
キシラジン	29	19	31	32	27
アルベンダゾール	42	36	28	22	47
クラリスロマイシン	42	30	30	20	41
ジフラゾン	30	24	13	15	38
ドキシサイクリン	—	—	—	—	—
デキサメタゾン	53	55	48	44	51
エブリノメクチン	13	3.9	14	12	12
エリスロマイシン	52	39	32	62	50
エトキシキン	—	—	—	—	—
フェノプロカルブ	50	52	42	26	48
フルベンダゾール	120	74	88	61	100
ファムフル	89	85	72	72	79
フルメキン	42	37	43	27	39
フルニキシ	59	60	61	53	66
ヒドロコルチゾン	52	45	49	42	46
リンコマイシン	48	34	44	42	47
ロイコマラカイトグリーン	—	—	2	—	—
メベンダゾール	159	88	95	85	146
マラカイトグリーン	14	12	14	12	20
モキシデグチン	13	10	13	4	8
ナリジクス酸	117	75	103	42	101
ノビヒオシン	25	18	22	8	15
オキシベンダゾール	63	56	54	49	57
オキシリン酸	115	61	72	79	114
オキサリリン	—	—	—	—	—
ピロミド酸	47	32	45	35	38
ホキシム	—	—	—	—	—
ロベニジン	14	19	12	21	24
リファキシミン	51	38	43	27	47
ロキシスロマイシン	22	20	16	16	19
ロキサソロン	—	—	—	—	—
スルファベンズアミド	140	46	65	82	120
スルファクロルピリダジン	78	49	41	47	73
スルファジミジン	57	43	20	32	42
スルファイソゾール	160	140	99	160	130
スルファメラジン	48	32	32	45	39
スルファメチゾール	41	35	18	34	34
スルファキノキサリン	68	35	32	41	67
チアムリン	19	12	19	25	19
チルミコシン	9.4	14	12	5.5	18
テメホス	—	—	—	—	—
タイロシン	44	33	34	23	42
バルネムリン	28	20	16	10	26

—:測定不能

* LC/MS/MSIによる結果, 10ppt添加, n=3

表 6 畜舎場内水試料における医薬品の添加回収率

医薬品名	回収率(%)			
	ラグーン 処理水	緩衝池出 口	場外排水 路	河川流入 直後
リンコマイシン	79	95	110	120
チルミコシン	43	18	33	-
タイロシン	52	43	60	34
バルネムリン	23	10	32	-

-:測定不能
* LC/MSによる結果, 1000ppt添加, n=3

表 8 下水処理場水中の医薬品

医薬品名	分析法	採水場所における 濃度 (ppt)	
		処理場流 入水	最終沈殿 水
エリスロマイシン	LC/MS	110	ND
クラリスロマイシン	LC/MS	1,400	900
ロキシスロマイシン	LC/MS	110	98
オフロキサシン* ¹	LC/MS/MS	340	260
スルファジアジン	LC/MS/MS	35	18
スルファメトキサゾール	LC/MS/MS	58	47
スルファピリジン	LC/MS/MS	370	340
トリメプリーム	LC/MS/MS	28	23
クロラムフェニコール	LC/MS/MS	-	11
チアベンダゾール	LC/MS/MS	31	44

-:測定不能
ND: 検出下限値未満
*¹ オフロキサシンまたはレボフロキサシン

表 9 畜舎場内水中の医薬品

医薬品名	採水場所における濃度 (ppt)			
	ラグーン 処理水	緩衝池出 口	場外排水 路	河川流入 直後
リンコマイシン	2,300	1,500	770	180
チルミコシン	780	ND	ND	-
タイロシン	790	ND	ND	ND
バルネムリン	ND	ND	ND	-

-:測定不能
ND: 検出下限値未満
* LC/MSによる結果

表 10 河川水（蔵王町松川）中の医薬品

医薬品名	採水場所における濃度 (ppt)				
	①大日向 橋付近	②秋山沢 橋付近	③別荘 地奥	④さんさ 亭付近	⑤宮大 橋付近
クロピドール	ND	ND	ND	ND	0.94
クロラムフェニコール	ND	0.37	ND	ND	ND
スルファモノメキシム	ND	ND	0.41	ND	ND
スルファピリジン	ND	ND	ND	0.82	1.8
フルニキシム	ND	ND	0.51	ND	ND
チアベンダゾール	ND	ND	ND	ND	0.87
プロポキスル	ND	2.8	ND	ND	3.0
ダイアジノン	ND	ND	ND	ND	1.1

ND: 検出下限値未満
* LC/MS/MSによる結果