

# OneBox 型マルチメディアモデルを用いた淀川流域のサルファ剤の環境動態解析

## Analysis of environmental behavior of sulfa drugs in the Yodo River Basin using OneBox type multi-media model

○李 昇 運 (大阪大学) 嶋 寺 光 (大阪大学)  
松 尾 智 仁 (大阪大学) 近 藤 明 (大阪大学)  
Shengyun LI\*<sup>1</sup> Hikari SHIMADERA\*<sup>1</sup> Tomohito MATSUO\*<sup>1</sup> Akira KONDO\*<sup>1</sup>  
\*<sup>1</sup> Osaka University

This study focuses on Sulfamethoxazole (SMX) that has been used in livestock husbandry and emitted into the Yodo River Basin. Emissions of SMX were estimated using statistical data on SMX usage and livestock excrement. A OneBox type multimedia fate model was utilized with the estimated emissions in order to simulate the behavior of SMX in four environmental media (atmosphere, soil water and sediment) in the study period from 2005 to 2015. Based on the calculated result, SMX emitted to soil was efficiently transported to water, which resulted in the largest amount of SMX in water among the four environmental media.

### はじめに

近年、医薬品や化粧品等のパーソナルケア製品 (Pharmaceutical and Personal Care Products、以下 PPCPs) に含まれる化学物質が、環境中から微量ながら検出されている<sup>1,2)</sup>。PPCPs には様々な種類があり、処方薬及び販売薬、動物用医薬品、化粧品、日焼け止め、芳香剤、診断用医薬品などが含まれる。PPCPs は日常的に大量に使用され、環境中へと排出されていることから、慢性的曝露による生態影響が懸念されている。医薬品が人に使用された場合、そこに含まれる化学物質は体内で代謝された後、代謝物として下水に放出され、下水処理場で処理されずに残ったものが河川へと放出される。一方、動物用医薬品が家畜に使用された場合、そこに含まれる化学物質は体内で代謝された後、代謝物は糞尿として排出される。糞尿の大部分は、たい肥化処理や液肥化処理により農地に還元される。また、糞尿の一部は、炭化・焼却処理や排水浄化処理が行われ、わずかではあるが野積みや素掘りなどの不適切な処理が行われている。医薬品の使用量は人に対するものよりも家畜に対するものの方が多く、上述の環境への排出経路を考慮すると、環境汚染に対しては動物用医薬品の影響が大きいと考えられる。本研究では、動物用医薬品の中でも特に販売量が多い、スルフォンアミド系合成抗菌剤に属するサルファ剤を対象とする。

化学物質の環境リスクを評価するためには、環境中の化学物質濃度を推定する必要がある。その方法の一つとして、大気・土壌・水域・底質といった複数の環境メディア内・メディア間における化学物質の挙動を表現する

マルチメディア運命予測モデルによる数値シミュレーションが挙げられる。本研究では、琵琶湖・淀川流域を対象に、OneBox 型マルチメディアモデルを用いて、環境中に排出された畜産用サルファ剤の動態解析を行った。

### 1. サルファ剤の排出量推計

#### 1.1 対象物質

畜産用抗菌剤として全国的に広く使われている、スルファメトキサゾール (Sulfamethoxazole、以下 SMX) を対象とした。SMX は合成薬であるため、天然抽出物に比べて自然界では難分解性を示す。農林水産省の統計資料<sup>3)</sup>によると、SMX は他のサルファ抗菌剤よりも多くの量が使用されている。SMX は人にも用いられるが、畜産用に比べて、使用量が少なく環境への影響は小さいものとみなし、本研究では人からの環境中への排出経路は対象外とした。

#### 1.2 全国使用量

農林水産省令第 62 号動物用医薬品等取締規則の公布に基づいて、2005 年から日本全国の動物医薬品販売の統計が整備されている。本研究では、2005~2015 年の動物用医薬品等販売高年報<sup>3)</sup>に記載されている、全国の SMX の原末換算量 (動物別) (Table.1) を基に、環境中への排出量を推計した。

#### 1.3 淀川流域における排出量

家畜に投与された SMX は、臓器代謝の後、最終的には排泄物として体外に排出される。本研究では、投与された SMX は最終的に全て環境中に排出されると仮定した。また、家畜 1 頭あたりの SMX 使用量および排泄物

量が全国一律であると仮定して、淀川流域に含まれる2

**Table.1** National SMX usage (unit: mol/y)

Year	Pig	Broiler	Layer (Hen)
2005	239045.4	19786.8	8823.8
2006	346112.9	17119.6	8931.9
2007	257784.2	15147.3	7573.6
2008	267719.8	4556.9	12531.6
2009	274549.2	10235.4	16256.2
2010	217701.6	3126.0	2456.1
2011	209620.8	10116.4	15527.5
2012	221407.2	14341.1	15850.7
2013	237189.0	16357.9	19084.2
2014	192707.7	44873.7	11717.0
2015	189509.8	38282.4	9986.7

**Table.2** Amount of livestock excrement (unit: ton/y)

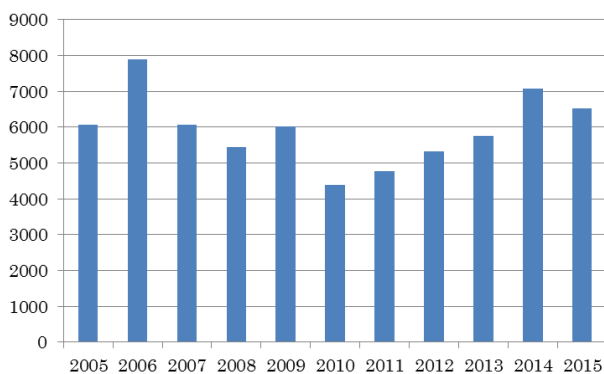
Animal	Pig	Layer (Hen)	Broiler
National	22380	7450	5140
Yodo River Basin	400	607	191

府4県（大阪、京都、兵庫、滋賀、三重、奈良）と全国における家畜排泄物量<sup>4)</sup> (Table.2) の割合に基づいて、式(1)の通り、淀川流域におけるSMXの排出量  $E_{local}$  を算出した。

$$E_{local} = \sum_{i=0}^n E_{i,all} \times \frac{S_{i,local}}{S_{i,all}} \quad (1)$$

ここで、 $i$  は動物の種類、 $E_{all}$  は全国におけるSMX排出量、 $S_{all}$  および  $S_{local}$  はそれぞれ全国および淀川流域における家畜排泄物量である。

淀川流域における2005～2015年の年別SMX排出量の推計結果を Fig.1 に示す。本研究では、SMXは全て土壌へと排出されると仮定した。

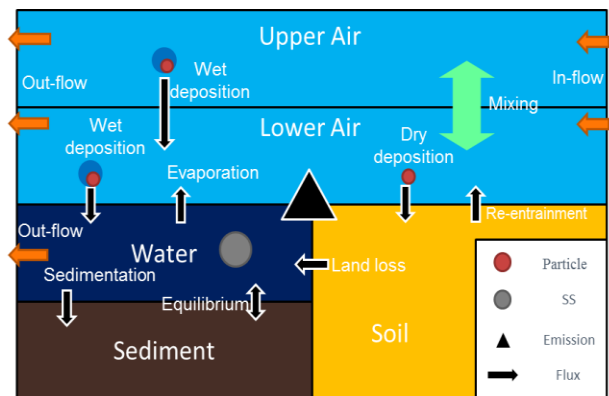


**Fig.1** Estimated annual SMX emissions (unit: mol/y) in the Yodo River Basin

## 2. マルチメディアモデル

### 2.1 モデル概要

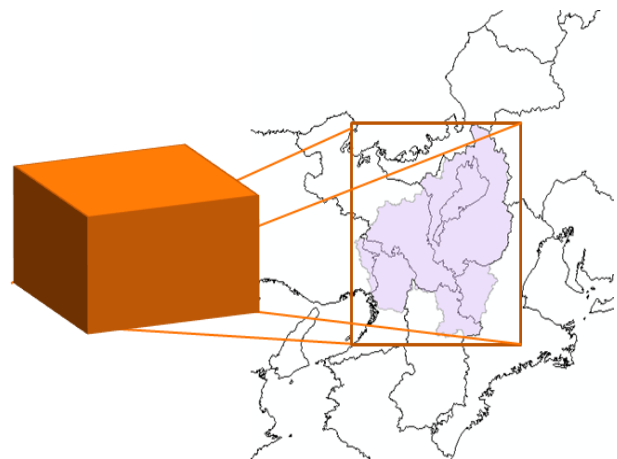
マルチメディアモデルは、化学物質の環境メディア間の移動に着目したモデルである。本研究では、環境を大気、土壌、水域、底質の4つのメディアで構成した。各メディアの関係とフラックスを Fig.2 に示す。大気・水域では移流による化学物質の流出を考慮した。大気は気相、粒子相から成り、上層大気と混合層に相当する下層大気の2層を考慮した。水域は液相、浮遊粒子相から成り、土壌からの流出や底質との平衡を考慮した。



**Fig.2** Schematic of multimedia model

### 2.2 OneBox 型モデル

対象領域である淀川流域 (Fig.3) を1つの箱と仮定し、各メディアにおける濃度は均一と仮定する OneBox 型マルチメディアモデルを用いた。計算領域は、南北方向に約 111km、東西方向に約 74km、高さ方向に 2km とした。



**Fig.3** Yodo River Basin as simulation domain of OneBox type model

### 2.3 計算条件

上述の通り、家畜に投与された SMX は全て土壌に排出されると仮定した。排出量推計を行った 2005～2015年の淀川流域を対象に SMX の動態解析を行った。

また、モデル内のパラメータのうち代表的な 35 種について、SMX 濃度計算結果に対する感度係数を以下の方法

によって算出した。あるメディア  $i$  の感度係数  $S_i$  は式(2)のように定義する。

$$S_i = \left| \frac{Y_{i,1.25} - Y_{i,0.75}}{0.5Y_i} \right| \quad (2)$$

ここで、 $Y$  はパラメータ変更前のメディア中濃度、 $Y_{1.25}$ 、 $Y_{0.75}$  はそれぞれ対象パラメータを 1.25、0.75 倍した時のメディア中濃度である。各メディアの感度係数  $S_i$  と重み  $w_i$ 、各メディアの存在量の比率によって、各パラメータの環境全体での SMX 濃度計算結果に対する感度係数を式(3)によって求めた。

$$\bar{S} = \frac{\sum_{i=1}^n w_i S_i}{\sum_{i=1}^n w_i} \quad (3)$$

### 3. 計算結果

#### 3.1 濃度の経年変化

2005～2015年の各メディア、すなわち大気気相中 (gs)、大気粒子相中 (pt)、土壌中 (sl)、水域液相中 (lq)、水域浮遊粒子相中 (ss) と底質中 (sd) における存在量 (M) および濃度 (C) の計算結果を Fig.4 および Fig.5 示す。本研究では、SMX は全て土壌に排出されると仮定したが、SMX は水域に最も多く存在する結果となった。また、SMX の濃度変動は排出量変動 (Fig.1) にほぼ対応しており、流域内で長期的に蓄積されることはなかった。計

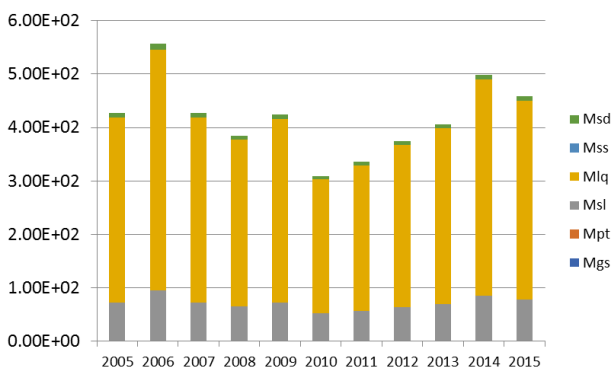


Fig.4 Amount of SMX in each media (unit: mol) from 2005 to 2015

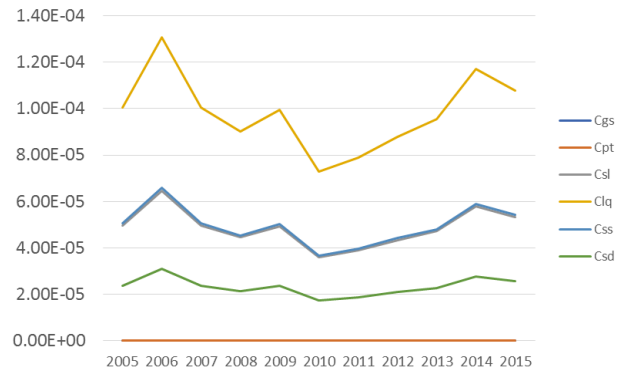


Fig.5 Annual SMX concentration in each media (unit: ng/L) from 2005 to 2015

算期間 11 年間を通して継続的に SMX が排出されており、SMX のメディア存在比は計算期間を通して大きくは変動しなかった。これらの結果は、降雨流出に伴って、速やかに SMX が土壌から水域に輸送されたことを示している。したがって、流域内で SMX が使用されなくなると、流域内での濃度は速やかに低下すると考えられる。しかし、流域外へと流出した SMX は、広域的な水質汚染を引き起こす可能性がある。

水中 SMX 濃度の年平均値は、計算期間において平均で約 90 ng/L、最大で約 130ng/L となった。現時点では、国内における SMX 濃度の実測事例がほとんどなく、計算結果の妥当性が評価できていない。

#### 3.2 感度解析

マルチメディアモデルに使用されているパラメータ 35 種の SMX 濃度に対する感度係数を Table.4 に示す。SMX が水域に速やかに流出することを反映して、底質浮上速度、流域平均流量、水域の面積、水深、SMX の水中半減期などの水域における動態に関するパラメータの感度が高くなった。

### 4. 結論

PPCPs の一種で畜産用抗菌剤として広く用いられている SMX を対象に、OneBox 型マルチメディアモデルを用いて淀川流域における環境動態解析を行った。土壌へと排出された SMX の大部分は速やかに水域へと流出し、水域から流域外へと流出した。感度解析においては、SMX が水域に速やかに流出することを反映して、水域における動態に関するパラメータの SMX 濃度計算結果に対する感度が高くなった。

今後の課題として、本モデルを用いて将来予測等の更なる解析を行うためには、実測値との比較による妥当性検証が必要である。

また、本研究における排出量推計は非常に簡易的なものであり、動物代謝率、体内残留、排泄物の環境への直

接放出と下水処理の割合、堆肥としての再利用、年内の投薬時期などを一切考慮できていない。関連データの収集を行い、より精緻な排出量推計を行うことで、計算結果の信頼性を向上させる必要がある。

さらに、本研究で用いた OneBox 型マルチメディアモデルでは、各メディアの空間変動が考慮できていない。しかし現実には、畜産農家は淀川流域内に均一に分布しているわけではなく、SMX 排出量にも大きな空間変動があると考えられる。したがって、空間変動が考慮できる分布型マルチメディアモデルを用いて、流域内の SMX 濃度分布を推計する必要がある。

**Table.4** Result of Sensitivity Analysis

Variable	Parameter Explain	Sensitivity Index	Main influenced media <sup>1</sup>
War	Width	1.69E-11	AR PT
Lar	Length	5.85E-06	AR PT
Uard	Wind speed of lower air	5.68E-06	AR PT
Rar	Cleanliness of upper air	2.94E-07	AR PT
Hadif	Thickness of ground layer	8.69E-08	AR PT
RO	Rainfall	2.50E-01	GS PT SL
RW	Raindrop radius	4.68E-10	AR PT
Vgw	Rain drop velocity	2.19E-10	AR PT
Vptdd	Settling velocity	5.44E-07	AR PT
Gpt	Particle generation	4.47E-22	AR
SC_ptd	Particle surface concentration in lower air	2.52E-08	AR PT
SC_ptu	Particle surface concentration in upper air	7.38E-09	AR PT
Swt	Area of water area	4.70E-01	LQ SS SD
Hwt	Water depth	4.50E-01	LQ SS SD
Qwt	Annual mean flow	4.82E-01	LQ SS SD
Hwdif	Ground diffusion layer	5.74E-02	SD
Hsl	Soil depth	2.35E-01	SL
Vslrs	Soil particle	8.29E-06	AR PT

	scattering rate		
Vslro	Soil particle rainfall outflow	3.27E-05	SD
Eps	Porosity	2.75E-01	SS SD
Sita	Moisture content	2.33E-01	AR PT SL
OC	Organic carbon proportion	3.77E-03	PT SL
RO	Rainfall surface outflow rate	1.02E-01	AR PT SL
Vssdp	Suspended Solid settling velocity	6.58E-02	SS SD
Hsd	Sediment depth	1.05E-01	SD
Vsdrs	Sediment floatation speed	8.17E+04	LQ SD
HE	Henry coefficient	8.15E-08	AR PT
VP	Vapor Pressure	3.06E-08	AR PT
POW	Octanol / water partition coefficient	3.06E-03	AR PT SL
DA	Atmospheric diffusion coefficient	8.17E-08	AR PT
DW	Water diffusion coefficient	5.72E-02	SD
HL_gs	Half-life in atmosphere	2.73E-06	AR PT
HL_lq	Half-life in water	3.20E-01	LQ SS SD
HL_sl	Half-life in soil	4.28E-02	AR PT SL LQ SS SD
HL_sd	Half-life in sediment	2.07E-03	SD

<sup>1</sup>AR means Atmosphere. PT means Particle in air. SL means Soil. LQ means Water. SS means suspended solid and SD means Sediment.

#### 参考文献

- 1) 鈴木俊也 水環境中のヒト用医薬品の存在実態及び環境中濃度の予測 東京健安研七周年報
- 2) 清野敦子・益永茂樹・中西準子 水環境中における医薬品の検出 第 37 回日本水環境学会年会 2003
- 3) 動物用医薬品等販売高年報 動物医薬品検査所 - 農林水産省  
<http://www.maff.go.jp/nval/iyakutou/hanbaidaka/index.html>
- 4) 家畜排せつ物の管理と利用の現状と対策について- 環境省  
<https://www.env.go.jp/council/09water/y0917-03/mat03.pdf>