

埼玉県における河川水のペルフルオロオクタンスルホン酸 (PFOS), ペルフルオロオクタン酸(PFOA)初期調査*

茂木 守**・野尻 喜好**・細野 繁雄**・杉崎 三男**

キーワード ①有機フッ素化合物 ②河川 ③LC/MS ④水道水源 ⑤ろ過残渣

要 旨

2006～07年にかけて、県内35河川38環境基準点の河川水のペルフルオロオクタンスルホン酸(PFOS)とペルフルオロオクタン酸(PFOA)濃度を測定した。PFOSおよびPFOAの幾何平均濃度はそれぞれ15および7.7 ng/L, 最大濃度はそれぞれ5,100および500 ng/Lであり、PFOS濃度がPFOAを上回る河川水が多かった。水道水源上流地点の河川水のPFOS, PFOA濃度は各国の飲料水や給水に関する暫定規制値よりも十分低かった。河川水のろ過残渣におけるPFOS検出割合は37/38, 各検体のPFOS濃度に占めるろ過残渣分は平均22%を示し、どちらもPFOAより高かった。

1. はじめに

ペルフルオロオクタンスルホン酸(PFOS; $C_8F_{17}SO_3H$)は、コーティング剤(撥水・撥油剤)、泡消火剤、界面活性剤などに、ペルフルオロオクタン酸(PFOA; $C_7F_{15}COOH$)はフッ素樹脂の加工助剤、塗料、乳化剤などに1950年代から使用されてきた有機フッ素化合物である^{1,2)}。これらの物質は水溶性、不揮発性のため、環境中に放出された場合は水系に移行しやすく、また、難分解性のため半永久的に環境に残留すると考えられる³⁾。また、人や世界各地の野生動物の血液などからppb～ppmレベルで検出されており⁴⁾、人の血中におけるPFOS, PFOAの半減期は、それぞれ8.67, 4.31年である⁵⁾。PFOS, PFOAは、哺乳類に対する発がん性、甲状腺機能不全、免疫系障

害、生殖障害などが指摘されており^{5,6)}、ラットやマウスを使った実験からそれらの無毒性量等は、どちらも0.03 mg/kg/dayとされている³⁾。

環境省は2002年に全国の河川、河口、湖沼、港湾、海域の20地点についてPFOS, PFOAの水質濃度を測定しており、それらの幾何平均濃度(濃度範囲)はそれぞれ1.4 ng/L(0.07～24 ng/L), 3.8 ng/L(0.33～100 ng/L)であった⁷⁾。また、Saitoらは2003年に全国79地点の河川水等(うち1地点は池水)のPFOS, PFOA濃度を測定し、それらの幾何平均濃度(濃度範囲)は、それぞれ1.5 ng/L(0.24～37.32 ng/L), 2.4 ng/L(0.20～456.41 ng/L)であった⁸⁾。このうち埼玉県内の荒川2地点と綾瀬川1地点の河川水からは、18.44～19.88 ng/LのPFOSと5.65～14.46 ng/LのPFOAが

* An Initial Survey of Perfluorooctanesulfonate (PFOS) and Perfluorooctanoic Acid (PFOA) in River Waters in Saitama Prefecture

** Mamoru MOTEGI, Kiyoshi NOJIRI, Shigeo HOSONO, Mitsuo SUGISAKI (埼玉県環境科学国際センター) Center for Environmental Science in Saitama

検出された。これらの値は、環境省および Saito らの調査における幾何平均濃度よりも高い値であった。しかし、埼玉県内全域の河川について PFOS、PFOA の濃度はわかっていなかったため、今回は2006年から2007年にかけて埼玉県内の環境基準点を有するすべての河川について、河川水中の PFOS、PFOA 濃度を調べた結果を報告する。

2. 方 法

2.1 調査地点

埼玉県内で環境基準点を有する全35河川について、最下流の環境基準点を調査地点とした。ただし、河川規模、利水状況を勘案し、荒川および利根川についてはそれぞれ2地点および1地点を追加し、全調査地点数を38地点とした(図1)。

2.2 試料の採取

各地点の河川水は、2006年4月または2007年5～6月に1回採取した。感潮河川における河川水の採取は順流時に行った。

河川水は、ステンレス製柄杓、ステンレス製バケツ、ステンレス製ロートを用いて1Lのポリプロピレン製容器に採取した。これらの採取器具は、あらかじめメタノール(関東化学、残留農薬試験用)で、採取容器はメタノールと精製水(局方)ですすいだものを使用した。また懸濁物質量

(SS)を測定するため、2Lのポリプロピレン製容器に河川水を採取した。

2.3 分析方法

PFOS は関東化学、PFOA は和光純薬工業の標準物質を用いた。これらの濃度は、 $^{13}\text{C}_4$ -PFOS、 $^{13}\text{C}_4$ -PFOA (いずれも Wellington Laboratories, Inc.)をそれぞれ内部標準物質とし、同位体希釈法で定量した。ただし、2006年4月に採取した19地点の河川水は、 $^{13}\text{C}_4$ -PFOS が入手できていなかったため $^{13}\text{C}_4$ -PFOA を内部標準物質として PFOS 濃度を定量した。アセトニトリルは HPLC 用、酢酸アンモニウムは特級(いずれも関東化学)を用いた。分析に使用した金属製またはガラス製の器具は、あらかじめ n-ヘキサン(残留農薬測定用、関東化学)、アセトン(残留農薬試験用、関東化学)、メタノールの順に洗浄した。

PFOS、PFOA の分析は Saito らの方法を参考にした⁸⁾。採取した 1L の水をガラス繊維ろ紙($\phi 1\mu\text{m}$, GA100, アドバンテック東洋)とメンブレンフィルター($\phi 1\mu\text{m}$, 日本ミリポア)でろ過し、ろ液とろ過残渣に分けた。

ろ液は内部標準物質を 5 ng 添加後、Sep-pak コンセントレーター(Waters Co.)を用いて、あらかじめ 10 mL のメタノールと 20 mL の精製水でコンディショニングした SDB 固相カラム(Pre-sep C Agri, 和光純薬工業)に 10 mL/分の速度で通し

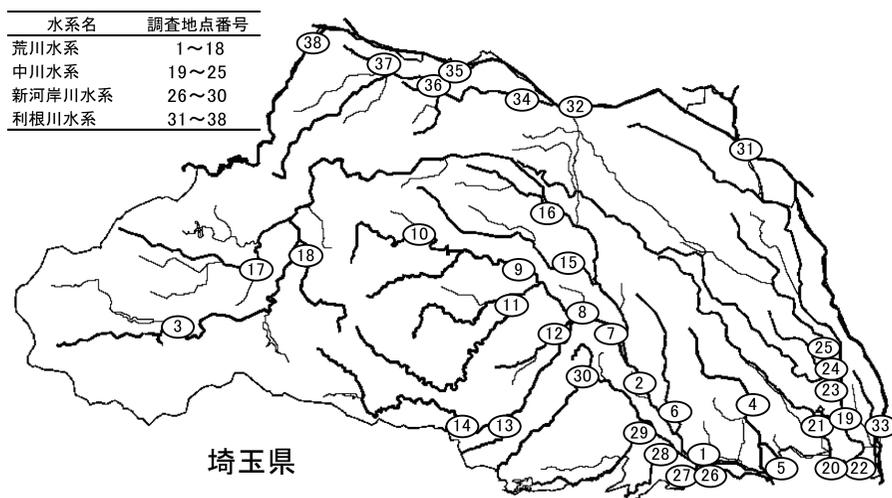


図1 河川水の調査地点

表1 PFOS, PFOA 測定における操作ブランク, LOD, LOQ, 添加回収率および変動係数

| | Blank ng/L | LOD ng/L | LOQ ng/L | 精製水添加回収率 % | CV % | 環境水添加回収率 % | CV % | |
|------|---------------|-------------|-------------|---------------|---------|---------------|---------|-----|
| PFOS | ろ液 | 0.02 | 0.05 | 0.1 | 103.7 | 4.8 | 91.9 | 3.8 |
| | ろ過残渣 | 0.11 | 0.2 | 0.5 | 79.9 | 12.8 | 107.9 | 5.5 |
| PFOA | ろ液 | 0.39 | 0.6 | 1 | 98.1 | 3.0 | 122.8 | 9.4 |
| | ろ過残渣 | 0.50 | 0.6 | 0.9 | 86.6 | 2.0 | 110.5 | 3.0 |

添加回収試験：ろ液, ろ過残渣とも n=3

た。固相カラムは3,000 rpm, 10分間遠心脱水し, 3 mL のメタノールを通して溶離液を10 mL ガラス試験管に受けた。この抽出液は N₂気流下, 40℃で約 1 mL に濃縮した。

ろ過残渣はろ紙ごと50 mL のガラス遠沈管に入れ, 内部標準物質を 5 ng 添加後, 25 mL のメタノールを加えて10分間超音波抽出した。これを 3,000 rpm, 10分間遠心し, 上澄み液を100 mL ナスフラスコに移した。この操作は2回繰り返した。この抽出液は, 40℃のロータリーエバポレーターで約 3 mL に濃縮後10 mL ガラス試験管に移し, N₂気流下, 40℃で約 1 mL に濃縮した。

濃縮液はメンブレンフィルター(φ 0.2 μm, DISMIC[®], アドバンテック東洋)でろ過後, 高速液体クロマトグラフ(LC; Alliance 2695, Waters Co.) / 質量分析計(MS; ZMD2000, Micromass)で測定した。

LC による分離は ODS カラム(Zorbax XDB C18, 2.1×150 mm, 3.5 μm, Agilent Technologies, Inc.)を用いた。カラムオープンの温度は40℃, 注入量は20 μL に設定した。移動相は10 mM 酢酸アンモニウム水溶液(A 液)とアセトニトリル(B 液)を用いた。移動相の組成は, 0分(35%B) - 5分(45%B) - 12分(45%B) - 13分(35%B) - 20分(35%B)とし, 流速は0.2 mL/分とした。イオンソースと脱溶媒ガスの温度はそれぞれ150℃, 350℃とした。脱溶媒ガスとコンガスの流量は, それぞれ700 L/時, 100 L/時とした。キャピラリー電圧は1 kV に固定した。MS のイオン化モードは ESI negative を採用した。定量イオン(コーン電圧)は, PFOS が m/z=499 (60 V), PFOA が m/z=413 (10 V), ¹³C₄-PFOS が m/z=503 (60 V), ¹³C₄-PFOA が m/z=417 (10 V) で

あった。

各河川水の PFOS, PFOA 濃度はろ液とろ過残渣に分けて定量し, 各地点の河川水濃度はこれらの合計値とした。ろ液, ろ過残渣の PFOS, PFOA 測定における操作ブランク, LOD, LOQ, 添加回収率, 変動係数(CV)は表1のとおりである。添加回収率は, 1 L の精製水または環境水(埼玉県環境科学国際センター生態園の池水)をろ過後, ろ液とろ過残渣にそれぞれ 5 ng の PFOS, PFOA を添加し, 一連の抽出操作後, 内部標準物質をシリンジスパイクとして求めた。なお, ろ液とろ過残渣の合計値の算出において, 検出下限値未満の値は0として計算した。

3. 結果と考察

3.1 河川水濃度

河川水のろ液中の PFOS, PFOA およびそれらの内部標準物質のクロマトグラムの例を図2に示した。

35河川38地点の河川水の PFOS, PFOA の検出割合は, それぞれ37/38, 36/38と高かった。PFOS, PFOA 濃度は, それぞれ<0.25~5,100 ng/L(幾何平均濃度(GM):15 ng/L), <1.2~500 ng/L (GM:7.7 ng/L) の範囲であった(表2)。Saito らが2003年に行った全国調査(n=79)では, 河川水の PFOS, PFOA の GM はそれぞれ1.5, 2.4 ng/L であった⁸⁾。彼らの調査した河川は比較的大規模なものが多く, 単純に比較できないが, 埼玉県内の河川水の PFOS, PFOA の GM はそれぞれそれらの10倍, 3.2倍を示した。また, Saito らは2003年に大阪エリアにおける PFOS, PFOA の発生源追跡調査も行っており, 空港周辺の表面水から526.0 ng/L の PFOS, 下水処理

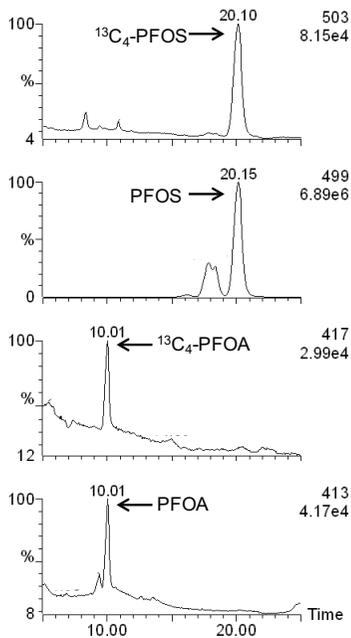


図2 河川水のろ液中のPFOS、PFOAおよびそれらの内部標準物質のクロマトグラム

施設放流口付近の河川水から67,000 ng/LのPFOAが検出されている⁸⁾。このように、高濃度のPFOS、PFOA検出地点においては、空港施設や下水処理施設など特定の発生源の存在が示唆されている。

今回の調査では、最大で5,100 ng/LのPFOSが河川水から検出され、この調査地点の上流に高濃度のPFOSをもたらす発生源の存在が予想される。ただし、この値は、水生生物(甲殻類)に対する予測無影響濃度23 $\mu\text{g/L}$ ⁶⁾を下回った。

今回PFOS、PFOAの両方が検出された河川水では、36地点中26地点でPFOS濃度がPFOA濃度よりも高かった。これは、Saitoらが行った埼玉県内河川の調査結果⁸⁾、および小高と益永が2004年に調査した東京湾流域の河川の河川水と同様な傾向を示した⁹⁾。

兵庫県は2006年に県内40河川の河川水のPFOS、PFOA濃度を調査した¹⁰⁾。その結果、PFOSは<1.7~61 ng/L (GM: 2.1 ng/L)、PFOAは<2.5~410 ng/L (GM: 17 ng/L)の範囲で検出された。この結果を今回の埼玉県の結果と比較すると、PFOS濃度は埼玉県で高く、PFOA

濃度は兵庫県で高い傾向が見られ、PFOSとPFOAの間で汚染レベルに地域差があると推察された。

3.2 水道水源上下流別濃度

今回の調査で、県営浄水場の取水点より上流に位置する調査地点は荒川水系の14地点、利根川水系の8地点で、それ以外の16地点はいずれも取水点より下流に位置する調査地点である。そこで、上流22地点と下流16地点に分けてPFOS、PFOAのGMを比較した(図3)。その結果、水道水源上流22地点のGM(幾何標準偏差(GSD))はPFOSで6.8(10.8) ng/L、PFOAで5.2(4.5) ng/L、水道水源下流16地点のGM(GSD)はPFOSで44.7(4.6) ng/L、PFOAで13.3(2.1) ng/Lであった。水道水源上流地点のGMはPFOS、PFOAともに水道水源下流地点よりも低かった。

一方、県営水道取水点の直近上流に当たる調査地点はNo.2、31、32、33である。取水点からの距離は1.2~25.4 kmと差があるが、これらの地点のPFOS、PFOA濃度はそれぞれ2.5~4.3、1.8~3.7 ng/Lであった。これらの値は、PFOSに対するイギリスの給水規制監視レベル: 300 ng/L¹¹⁾やPFOAに対する米国ニュージャージー州の暫定的飲料水指針値: 40 ng/L¹¹⁾よりも十分低かった。

今回5,100 ng/LのPFOSが検出されたNo.37地点は水道水源の上流地点に当たる。この河川の2006年度平均流量は0.23 m³/秒であり¹²⁾、下流の水道水源であるNo.32地点の2006年平均流量は208.28 m³/秒となっている¹³⁾。そのため、仮にNo.37を流下したPFOSがすべて水道水源であるNo.32に到着したとしても、およそ900倍に希釈されると推定される。

3.3 PFOS、PFOA濃度に占めるろ過残渣比率

PFOSのろ液、ろ過残渣検出割合はそれぞれ38/38、37/38で、検出濃度はそれぞれ0.05~4,700 ng/L、<0.2~410 ng/Lの範囲であった(表2)。各河川水のPFOS濃度に占めるろ液とろ過残渣のPFOS濃度比率を図4に示した。ろ過残渣比率は0~67%で、その算術平均が22%であった。このことから河川水のPFOS測定においては、ろ液だけでなくろ過残渣も含めた分析が必要であることが示された。高いPFOS濃度を示し

表2 河川水の PFOS, PFOA 濃度

単位:ng/L

| 地点番号 | 水系 | 河川名 | 地点名 | 採取日 | PFOS | | | PFOA | | |
|--------|------|--------|------------|-----------|-------|------|-------|------|------|------|
| | | | | | ろ液 | ろ過残渣 | 計* | ろ液 | ろ過残渣 | 計* |
| 1 | | 荒川 | 笹目橋 | 2006/4/19 | 66 | 22 | 88 | 4.9 | <0.6 | 4.9 |
| 2 | | 荒川 | 治水橋 | 2007/5/10 | 3.5 | 0.8 | 4.3 | 3.7 | <0.6 | 3.7 |
| 3 | | 荒川 | 中津川合流点前 | 2006/4/20 | 0.05 | <0.2 | <0.25 | <0.6 | <0.6 | <1.2 |
| 4 | | 芝川 | 八丁橋 | 2006/4/20 | 34 | 9.2 | 43 | 18 | <0.6 | 18 |
| 5 | | 新芝川 | 山王橋 | 2006/4/20 | 100 | 19 | 120 | 13 | <0.6 | 13 |
| 6 | | 鴨川 | 中土手橋 | 2006/4/19 | 60 | 8.7 | 69 | 20 | <0.6 | 20 |
| 7 | | 入間川 | 入間大橋 | 2007/5/10 | 5.2 | 1.1 | 6.3 | 8.1 | <0.6 | 8.1 |
| 8 | | 越辺川 | 落合橋 | 2007/5/10 | 6.3 | 1.4 | 7.6 | 8.4 | <0.6 | 8.4 |
| 9 | 荒川 | 都幾川 | 東松山橋 | 2007/5/10 | 3.7 | 1.1 | 4.8 | 3.3 | <0.6 | 3.3 |
| 10 | | 槻川 | 兜川合流点前 | 2006/4/19 | 4.4 | 2.7 | 7.2 | 7.3 | <0.6 | 7.3 |
| 11 | | 高麗川 | 高麗川大橋 | 2007/5/10 | 1.3 | 0.3 | 1.6 | 1.5 | <0.6 | 1.5 |
| 12 | | 小畔川 | とげ橋 | 2007/5/10 | 3.3 | 0.6 | 3.9 | 8.0 | <0.6 | 8.0 |
| 13 | | 霞川 | 大和橋 | 2007/5/10 | 8.6 | 2.4 | 11 | 8.1 | <0.6 | 8.1 |
| 14 | | 成木川 | 成木大橋 | 2007/5/10 | 1.4 | 0.3 | 1.8 | 1.7 | <0.6 | 1.7 |
| 15 | | 市野川 | 徒歩橋 | 2006/4/19 | 6.8 | 14 | 21 | 14 | <0.6 | 14 |
| 16 | | 和田吉野川 | 吉見橋 | 2006/4/24 | 5.4 | 1.8 | 7.3 | 13 | <0.6 | 13 |
| 17 | | 赤平川 | 赤平橋 | 2007/5/9 | 0.40 | 0.2 | 0.6 | 1.2 | <0.6 | 1.2 |
| 18 | 横瀬川 | 原谷橋 | 2007/5/9 | 1.1 | 0.5 | 1.6 | 3.2 | <0.6 | 3.2 | |
| 19 | 中川 | 中川 | 八条橋 | 2006/4/20 | 29 | 7.2 | 36 | 16 | <0.6 | 16 |
| 20 | | 綾瀬川 | 内匠橋 | 2006/4/20 | 88 | 9.6 | 97 | 26 | <0.6 | 26 |
| 21 | | 古綾瀬川 | 綾瀬川合流点前 | 2007/6/18 | 20 | 13 | 33 | 16 | 1.3 | 17 |
| 22 | | 大場川 | 葛三橋 | 2007/5/9 | 5.4 | 1.3 | 6.7 | 12 | <0.6 | 12 |
| 23 | | 元荒川 | 中島橋 | 2006/4/20 | 29 | 6.4 | 36 | 16 | <0.6 | 16 |
| 24 | | 新方川 | 昭和橋 | 2006/4/20 | 39 | 12 | 52 | 14 | <0.6 | 14 |
| 25 | | 大落古利根川 | ふれあい橋 | 2007/5/9 | 4.6 | 1.2 | 5.7 | 5.7 | <0.6 | 5.7 |
| 26 | 新河岸川 | 新河岸川 | 笹目橋 | 2006/4/19 | 51 | 15 | 66 | 10 | <0.6 | 10 |
| 27 | | 白子川 | 三園橋 | 2006/4/19 | 35 | 9.8 | 45 | 13 | <0.6 | 13 |
| 28 | | 黒目川 | 東橋 | 2007/5/11 | 16 | 4.5 | 20 | 7.8 | <0.6 | 7.8 |
| 29 | | 柳瀬川 | 栄橋 | 2006/4/19 | 380 | 21 | 400 | 20 | <0.6 | 20 |
| 30 | | 不老川 | 不老橋 | 2006/4/19 | 29 | 10 | 39 | 18 | <0.6 | 18 |
| 31 | 利根川 | 利根川 | 栗橋 | 2007/5/8 | 1.8 | 0.7 | 2.5 | 2.5 | <0.6 | 2.5 |
| 32 | | 利根川 | 利根大堰 | 2007/5/8 | 3.2 | 1.0 | 4.2 | 1.8 | <0.6 | 1.8 |
| 33 | | 江戸川 | 流山橋 | 2007/5/9 | 3.1 | 1.3 | 4.3 | 3.2 | <0.6 | 3.2 |
| 34 | | 福川 | 昭和橋 | 2006/4/18 | 200 | 38 | 240 | 490 | 5.9 | 500 |
| 35 | | 小山川 | 新明橋 | 2006/4/18 | 120 | 23 | 140 | 15 | <0.6 | 15 |
| 36 | | 唐沢川 | 森下橋 | 2007/5/8 | 24 | 3.1 | 27 | 7.5 | <0.6 | 7.5 |
| 37 | | 元小山川 | 県道本庄妻沼線交差点 | 2006/4/18 | 4,700 | 410 | 5,100 | 25 | <0.6 | 25 |
| 38 | | 神流川 | 神流川橋 | 2007/5/8 | 0.38 | 0.2 | 0.6 | <0.6 | <0.6 | <1.2 |
| 幾何平均** | | | | | 11 | 3.2 | 15 | 7.4 | <0.6 | 7.7 |
| 全体 | | | | | 7.7 | 2.9 | 16 | 8.2 | <0.6 | 8.2 |
| | | | | | 4,700 | 410 | 5,100 | 490 | 5.9 | 500 |
| | | | | | 0.05 | <0.2 | <0.25 | <0.6 | <0.6 | <1.2 |

* ろ液とろ過残渣の合計濃度は、検出下限未満を0として計算した。

** 幾何平均の算出に当たって、検出下限未満は検出下限の1/2の値を使用した。

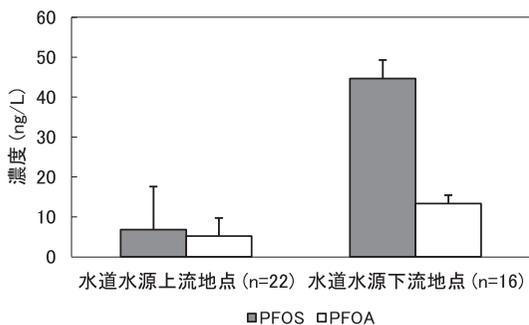


図3 水道水源上下流地点別の PFOS, PFOA 幾何平均濃度 (バーは幾何標準偏差)

た No.37, No.29地点の PFOS ろ過残渣比率はそれぞれ 8%, 5% と低く、一定濃度以上の PFOS が河川水中に存在すると、ろ過残渣に含まれる粒子への吸着が制限されることが示唆された。

海水の事例ではあるが、懸濁粒子物質中の有機炭素割合と PFOS 濃度と正の相関関係が見られたという報告もあり¹⁴⁾、河川水における PFOS のろ過残渣への吸着挙動にもその有機炭素が関与している可能性がある。

SS が 2 mg/L 未満の 7 地点 (No. 3, 9, 10, 11,

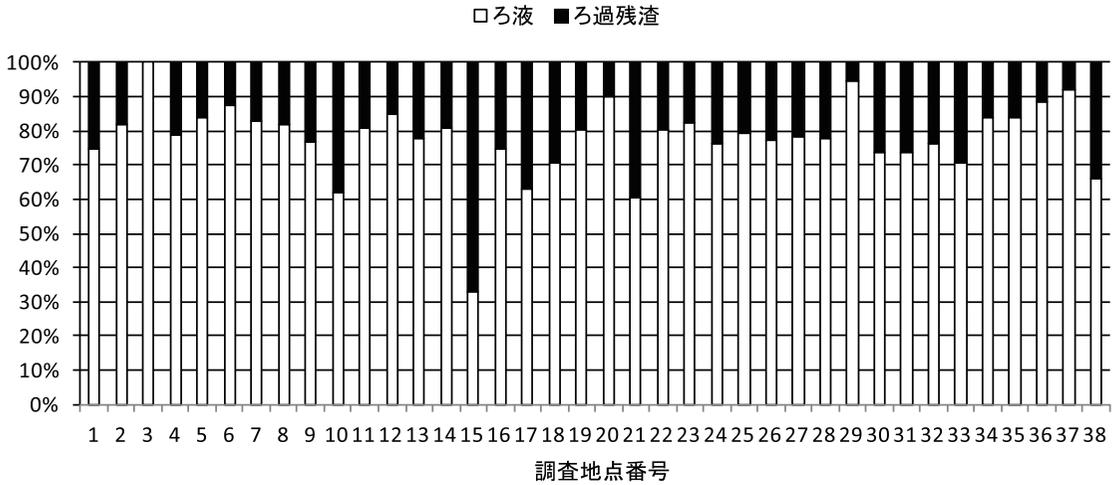


図4 河川水のろ液，ろ過残渣のPFOS濃度割合

14, 17, 38)を除く31地点のSS当たりのPFOS濃度は、66~68,000 ng/g-dryの範囲であった。この値は、小高と益永が調査した東京湾流域6河川の懸濁態PFOS濃度(9.9~33.4 ng/g-dry)⁹⁾よりも高かった。彼らは水試料をガラス繊維ろ紙でろ過して懸濁態を得たが、われわれはガラス繊維ろ紙とメンブレンフィルターでろ過したため、PFOSがメンブレンフィルターに吸着し、SS当たりの濃度を引き上げた可能性もある。SS当たりのPFOS濃度が極端に高いNo.37地点(68,000 ng/g-dry)を除いた30地点のSS当たりのPFOS濃度とろ液のPFOS濃度の間には強い正の相関($R=0.909, p < 0.001$)が見られた(図5)。

一方、PFOAのろ液、ろ過残渣検出割合はそれぞれ36/38, 2/38で、検出濃度はそれぞれ<0.6~490 ng/L, <0.6~5.9 ng/Lの範囲であった(表2)。ろ過残渣中にPFOAが検出されたNo.34とNo.21のPFOAろ過残渣比率はそれぞれ1.2, 7.4%で、SS当たりのPFOA濃度はそれぞれ450, 42 ng/g-dryであった。PFOSに比べてろ過残渣中のPFOA検出割合が極端に低い理由として、ろ過残渣のPFOA検出下限値(0.6 ng/L)がPFOSの検出下限値(0.2 ng/L)よりも高いことがあげられるが、ろ液のPFOA濃度が20 ng/Lを超える河川水でも、ろ過残渣からPFOAが検出されない場合があるため、PFOSよりもPFOAはろ過残渣への吸着が低いと考えられる。これは、小高と益永が河川水や海水を溶存態と懸

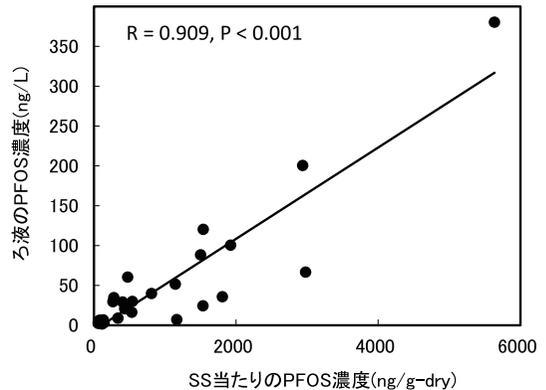


図5 SS当たりのPFOS濃度とろ液のPFOS濃度の関係 (n=30; No.3,9,10,11,14,17,37,38を除く)

濁態に分けてPFOS, PFOAを測定し、PFOAはPFOSよりも懸濁物に吸着され難いことを示した結果と一致した⁹⁾。

4.まとめ

2006~07年にかけて実施した調査から、埼玉県内の河川水のPFOS, PFOA濃度は、国内の調査事例に比べて総じて高く、またPFOAよりもPFOS濃度が高い傾向にあることが明らかとなった。PFOS, PFOAの最大検出濃度はそれぞれ5,100, 500 ng/Lであった。水道水源上流地点の河川水のPFOS, PFOA濃度は、各国の飲料水や給水に関する暫定規制値よりも十分低く、問題ないレベルと考えられる。河川水のろ過残渣の

PFOS 検出割合は37/38, その濃度割合は平均で22%を占めた。一方, PFOA 検出割合は2/38で, 検出された濃度割合も平均で4.3%であった。

PFOS は2009年のストックホルム条約締結国会議において POPs 登録され, 日本国内においてもエッセンシャルユースを除いて製造, 輸入, 使用が禁止された。一方, PFOA も主要な製造事業所からの環境放出量等が削減され, 最終的に廃絶するという計画(2010/2015 PFOA Stewardship Program)により, 新たな環境汚染が生じる可能性は低いと考えられる。これらの措置が, 環境中のこれらの化学物質濃度にどう影響するか, 今後も定期的な調査を実施することで確認していきたい。

謝辞 本調査における一部の河川水の採取は, 埼玉県環境科学国際センター水環境担当各位にご協力いただいた。ここに記して深謝の意を表する。

— 文 献 —

- 1) Giesy J. P., Kannan K.: Global distribution of perfluorooctane sulfonate in wildlife. *Environ. Sci. Technol.*, 35, 1339-1342, 2001
- 2) Giesy J. P., Kannan K.: Perfluorochemical surfactants in the environment. *Environ. Sci. Technol.*, 36, 146A-152A, 2002
- 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6巻, 2008
- 4) Lau, C., Anitole, K., Hodes, C., Lai, D., Pfahles-Hutchens, A., Seed, J.: Perfluoroalkyl acids: A review of monitoring and toxicological findings. *Toxicol. Sci.*, 99, 366-394, 2007
- 5) Nakayama, S., Harada, K., Inoue, K., Sasaki, K., Seery, B., Saito, N., Koizumi, A.: Distributions of perfluorooctanoic acid (PFOA) and perfluorooctane sulfonate (PFOS) in Japan and their toxicities. *Environ. Sci.*, 12, 293-313, 2005
- 6) Kennedy Jr., G. L., Butenhoff, J. L., Olsen, G. W., O'Connor, J. C., Seacat, A. M., Perkins, R. G., Biegel, L. B., Merphy, S. R., Farrar, D. G.: The toxicology of perfluorooctanoate. *Crit. Rev. Toxicol.*, 34, 351-384, 2004
- 7) 環境省環境保健部環境安全課: 平成15年度版 化学物質と環境, 2004
- 8) Saito, N., Harada, K., Inoue, K., Sasaki, K., Yoshinaga, T., Koizumi A.: Perfluorooctanoate and perfluorooctane sulfonate concentrations in surface water in Japan. *J. Occup. Health*, 46, 49-59, 2004
- 9) 小高良介, 益永茂樹: 東京湾におけるフッ素系界面活性剤の環境挙動. 水環境学会誌, 29, 221-228, 2006
- 10) Yoshida, M., Kobuke, Y., Nakano, T.: Contamination of PFOA and PFOS in the rivers of Hyogo Pref., Japan. *Organohalogen Compounds*, 69, 2881-2884, 2007
- 11) 田中周平, 藤井滋穂, Nguyen Pham Hong LIEN, 野添宗裕, Chinagarn KUNACHEVA, 木村功二, Binaya SHIVAKOTI: 世界10カ国21都市の水環境におけるPFOS・PFOA汚染の現況. 水環境学会誌, 31, 665-670, 2008
- 12) 埼玉県環境部: 平成18年度公共用水域及び地下水の水質測定結果 資料編, 2010
- 13) 独立行政法人水資源機構利根導水総合事業所: 利根大堰地点河川流量～取水量曲線図(平成18年), http://www.water.go.jp/kanto/tono/01mizu_data/tmp_file/syusuikyokusen_tone_H18.pdf
- 14) Ahrens, L., Taniyasu, S., Yeung, L. W. Y., Yamashita, N., Lam, P. K. S., Ebinghaus, R.: Distribution of polyfluoroalkyl compounds in water, suspended particulate matter and sediment from Tokyo Bay, Japan. *Chemosphere*, 79, 266-272, 2010