

<報 文>

徳島県内の河川等における生活関連物質の
汚染実態調査*

中石 明希**・工内 輝実**・出羽 知佳**・管生 伸矢**・山本 昇司***

キーワード ①生活関連物質 ②トリクロサン (TCS) ③紫外線吸収剤 ④河川 ⑤レクリエーション場

要 旨

近年、多くの生活関連物質が生活排水を通して環境中に拡散することが報告されており、生活関連物質による水環境汚染や生態影響について問題となっている。徳島県は汚水処理人口普及率が高くはないことから、未処理の生活排水が比較的多く河川に流入していると考えられ、生活関連物質による水環境汚染が懸念される。そこで本研究ではトリクロサン、紫外線吸収剤や直鎖アルキルベンゼンスルホン酸及びその塩 (LAS) の 13 種の生活関連物質について、県内の河川における濃度の実態調査を実施した。生活排水が多く流入する下水道未普及地域を中心に、夏季に 13 物質中 7 物質、冬季に 13 物質中 9 物質が検出された。また、下水処理場付近に位置する河川では、トリクロサンが比較的高濃度に検出された。一方、人口が少なく人為的汚染が少ないと考えられる河川では全ての対象物質が非検出であった。

また、レクリエーション場として、小松海水浴場と歩危で通日調査を行った。海水浴場では、遊泳時間中はメトキシケイヒ酸エチルヘキシル (EHMC) とオクトクリレン (OC) が高濃度に検出されたが、遊泳時間終了後は非検出となった。歩危では全て非検出であり、対象の生活関連物質による汚染度は低いと考えられた。

さらに、県内の下水処理場の流入水及び処理水の調査を実施したが、トリクロサン、EHMC、LAS の除去率はいずれも 87%以上であった。

1. はじめに

近年、国内外の研究で、医薬品及びパーソナルケア製品 (Pharmaceuticals and Personal Care Products: PPCPs) 等の生活関連物質による河川等の水質環境汚染と生態影響について報告され、問題となってきた^{1,2)}。生活関連物質には、医薬品・医薬部外品や化粧品、消毒薬等が含まれ、われわれの生活に身近な化学物質であるといえる。生活関連物質の中には、難分解性で生物蓄積性の高いものや比較的低濃度でも生態系に影響を及ぼすものがあることが報告されているが、動態や生態影響については未だ不明な物質が多い^{2,3)}。

生活関連物質はヒトが使用すると、医薬品の場合は代謝等を経て体外に排出され、化粧品の場合は洗い落とされる等して、生活排水として家庭から排出される。生活排水の場合、下水道普及地域では、下水処理場で処理後河川に放流されるが、未普及地域では合併処理浄化槽等で処理されるか未処理のまま河川に放流されることとな

る。このため、下水道未普及地域での生活関連物質の水環境中の濃度は比較的高いことが推察されるが、医薬品以外の生活関連物質の濃度実態調査については報告例が少ない。

徳島県の平成 27 年度末の公共下水道普及率は 17% であり、これに合併処理浄化槽等の普及率を加えた汚水処理人口普及率でも 57% と全国平均 90% に対して低い⁴⁾。このため、比較的多くの未処理の生活排水が河川に流入していると考えられる。

そこで近年環境中への残留性や生態影響が懸念されている生活関連物質について、徳島県内の河川水中濃度等の調査を行った。

2. 方法

2.1 調査対象物質

調査対象とした生活関連物質である 13 物質を表 1 に示す。河川等の調査では 13 物質を対象としたが、レク

*Concentrations of Pharmaceuticals and Personal Care Products in Rivers of Tokushima, Japan

**Aki Nakaishi, Terumi Kunouchi, Chika Deba, Shinya Sugaoui (徳島県立保健製薬環境センター) Tokushima Prefectural Public Health, Pharmaceutical and Environmental Sciences Center

***Shoji Yamamoto (徳島県南部総合県民局保健福祉環境部) Tokushima Prefectural Government South District Administration Bureau Health, Welfare and Environment Department-Anan Office

リエーション場の調査ではLASを除く12物質を対象とした。

表1 調査対象物質

化合物名	CAS番号	使用用途
TCS	3380-34-5	殺菌消毒剤
EHMC	5466-77-3	日焼け止め等化粧品用紫外線吸収剤
BP-3	131-57-7	日焼け止め等化粧品用紫外線吸収剤
OC	6197-30-4	日焼け止め等化粧品用紫外線吸収剤
HMS	118-56-9	日焼け止め等化粧品用紫外線吸収剤
OD-PABA	21245-02-3	日焼け止め等化粧品用紫外線吸収剤
BP	119-61-9	プラスチック製品等添加用紫外線吸収剤
UV-P	2440-22-4	プラスチック製品等添加用紫外線吸収剤
UV-326	3896-11-5	プラスチック製品等添加用紫外線吸収剤
UV-327	3864-99-1	プラスチック製品等添加用紫外線吸収剤
UV-328	25973-55-1	プラスチック製品等添加用紫外線吸収剤
UV-329	3147-75-9	プラスチック製品等添加用紫外線吸収剤
LAS ^(注)	—	合成洗剤添加用界面活性剤

注) LASはC10～C14の混合物

トリクロサンは化審法の優先評価化学物質に指定されており、水生生物への毒性を示すと報告されている⁵⁾。抗菌剤として薬用石けんや歯磨き粉等に広く使用されてきたが、平成28年に米国食品医薬品局(FDA)が抗菌性と長期使用における安全性への疑義からトリクロサン含有石けん等の販売停止を発表したことを受けて、厚生労働省は平成28年に国内石けんメーカー等に1年以内での代替品への切替を要請した。

EHMC, 2-ヒドロキシ-4-メトキシベンゾフェノン(BP-3), OC, サリチル酸ホモメンチル(HMS), 4-(ジメチルアミノ)安息香酸 2-エチルヘキシル(OD-PABA)は日焼け止めや化粧品に含まれる紫外線吸収剤である。薬機法の化粧品基準では、日焼け止め等へのEHMCの配合基準が20%以下、OC等は10%以下であり、EHMCは紫外線吸収剤の中で化粧品への配合率が最も高いことが知られている。これらの紫外線吸収剤は主に手洗いや入浴により洗い流され

生活排水として排出されると考えられる。

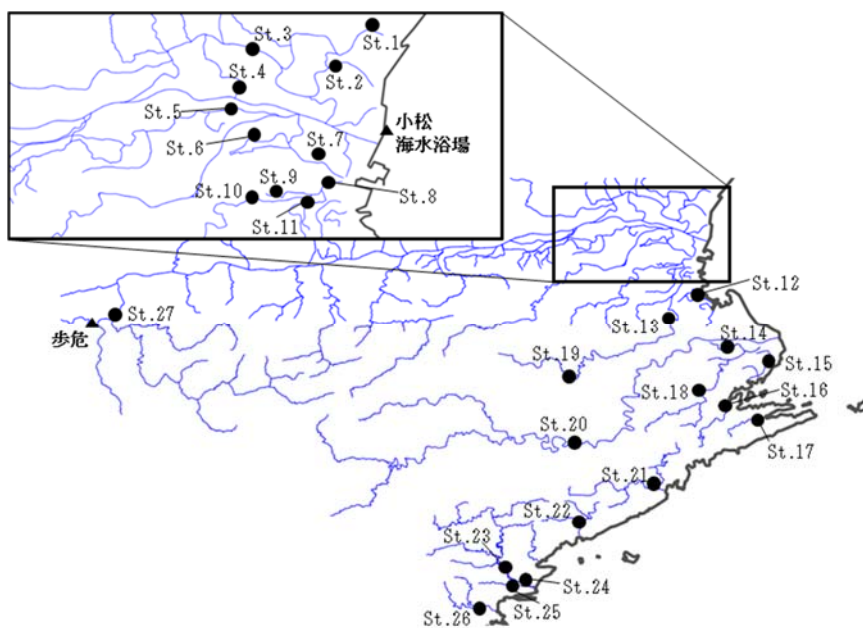
ベンゾフェノン(BP), 2-(2-ヒドロキシ-5-メチルフェニル)ベンゾトリアゾール(UV-P), 2-(5-クロロ-2-ベンゾトリアゾリル)-6-tert-ブチル-p-クレゾール(UV-326), 2-(3,5-ジ-tert-ブチル-2-ヒドロキシフェニル)-5-クロロベンゾトリアゾール(UV-327), 2-(3,5-ジ-tert-アミル-2-ヒドロキシフェニル)ベンゾトリアゾール(UV-328), 2-(2-ヒドロキシ-5-tert-オクチルフェニル)ベンゾトリアゾール(UV-329)は自動車部品等の工業的プラスチック製品の劣化防止剤として使われる紫外線吸収剤である。UV-P, UV-326, UV-327, UV-328, UV-329はいずれもベンゾトリアゾール系の紫外線吸収剤で、UV-327は化審法の監視化学物質に指定されており、難分解性のために生物蓄積性が懸念されている⁶⁾。

LASは、合成洗剤の原料であり、平成27年度のPRTRデータの推計によると、その排出量の6割が家庭で使用された洗剤によるものとされている。毒性情報に基づく水生生物に対する影響を考慮し、平成24年度に水生生物の保全に係る水質環境基準に追加された。

2.2 調査地点及び調査時期

生活排水の影響等調査の観点から、県内の主要な河川である吉野川・勝浦川・那賀川・海部川水系等の河川を対象とし、流域人口の比較的多い河川と少ない河川を含む計27カ所の地点を選定した(図1)。夏季の調査は、平成27年8月及び平成28年8月に実施し、冬季の調査は平成26年12月から平成27年3月に実施した。

さらに、日焼け止めに含まれる紫外線吸収剤の使用用



採水地点	水系
St.1	吉野川
St.2	吉野川
St.3	吉野川
St.4	吉野川
St.5	吉野川
St.6	吉野川
St.7	吉野川
St.8	吉野川
St.9	吉野川
St.10	吉野川
St.11	吉野川
St.12	神田瀬川
St.13	勝浦川
St.14	那賀川
St.15	打樋川
St.16	福井川
St.17	椿川
St.18	那賀川
St.19	勝浦川
St.20	那賀川
St.21	日和佐川
St.22	牟岐川
St.23	海部川
St.24	海部川
St.25	海部川
St.26	宍喰川
St.27	吉野川

図1 調査地点

途を考慮し、レクリエーション場における調査の観点から海水浴場とレジャースポーツ場でも調査を実施した。海水浴場の調査については、吉野川河口に近い、徳島市内唯一の海水浴場である小松海水浴場で平成 27 年 7 月 26 日の午前 6 時から翌日の午前 6 時まで実施した。レジャースポーツ場の調査については、ラフティング世界選手権 2017 開催地で、夏季にラフティングツアーが数多く実施される吉野川上流に位置する歩危で平成 26 年 8 月 31 日に実施した（図 1）。

下水処理場の流入水及び処理水の調査は平成 29 年 8 月 8 日に実施した。

試料はいずれもガラス瓶に採取し、保冷して実験室まで持ち帰った。いずれの試料も試料採取後速やかに前処理を行うようにし、測定に供した。

2.3 測定方法

トリクロサン及び紫外線吸収剤の前処理方法を図 2 に示す。GC/MS の測定条件を表 2 に示す。LAS については、環境庁告示第 59 号付表 12 に準じた方法で分析を実施した。下水処理場の流入水及び処理水については適宜希釈後に同様の方法で分析した。

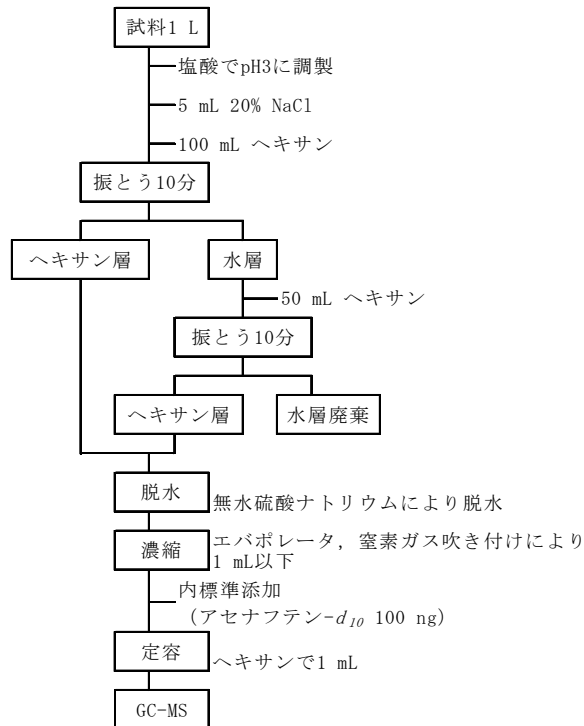


図 2 前処理方法

表 2 GC/MS 分析条件

機種	日本電子株式会社製 JMS-Q1000GC MKII
カラム	HP-5MS, 0.25 mm(内径)×30 m, 膜厚0.25 μm
注入口温度	250℃
注入量	1 μL
昇温条件	40℃(1分)-10℃/分-230℃(10分)-5℃/分-320℃(1分)
イオン源温度	250℃

3. 結果と考察

3.1 前処理方法の検討

水中のトリクロサン・紫外線吸収剤の分析の前処理には、既報^{7, 8)}の固相抽出を利用した方法を参考とし、まず種々の固相抽出カートリッジを使用して添加回収試験を実施した。しかし、この方法では固相抽出カートリッジの種類だけでなく物質ごとの抽出効率も大きく異なり、対象の12物質一斉抽出において十分な回収率を得るのが困難であった。そこで、溶媒抽出法を検討することとした。抽出溶媒についてはヘキサン及びジクロロメタンの2種類で比較し、また試料のpHを3に調整した場合と未調整の場合についても比較検討した。その結果、試料のpHを3に調整後ヘキサンで液液抽出を行った場合に、対象12物質について回収率が79%から111%と最も良好な結果となった（表3）。したがって、今回の調査ではこの方法を採用することとした。

表3 抽出条件の検討結果

化合物名	添加回収率(%)			
	ヘキサン		ジクロロメタン	
	pH調整なし	pH3に調整	pH調整なし	pH3に調整
TCS	87	99	379	256
EHMC	84	97	124	120
BP-3	94	103	320	259
OC	100	111	253	183
HMS	97	104	265	182
OD-PABA	98	109	210	173
BP	94	100	181	136
UV-P	93	102	359	252
UV-326	88	104	157	168
UV-327	73	83	114	142
UV-328	74	83	74	123
UV-329	68	79	208	177

3.2 徳島県内の河川調査結果

夏季及び冬季に県内の河川 27 カ所について調査を実施した。その結果を表 4 に示す。夏季には、LAS, トリクロサン, EHMC, OC, BP, UV-P, UV-326 の 13 物質中 7 物質が検出され、冬季には、それらに加えて BP-3, UV-329 の 13 物質中 9 物質が検出された。夏季には LAS が 0.7-57 μg/L, トリクロサンが 0.01-0.11 μg/L, EHMC が 0.01-0.15 μg/L 検出され、冬季には、LAS が 0.6-140 μg/L, トリクロサンが 0.01-0.14 μg/L, EHMC が 0.01-0.10 μg/L 検出されており、調査地点における夏季の検出率は、LAS が 62%, トリクロサンが 24%, EHMC が 15%であり、冬季の検出率は LAS が 93%, トリクロサンが 22%, EHMC が 15%であった。

トリクロサンについては、St. 8 と St. 9 で夏季・冬季ともに、化学物質が環境中の生物に対して有害な影響を及ぼさないと予想される予測無影響濃度 (PNEC) 0.028 μg/L⁹⁾ を超過していた。平成 20 年度に St. 9 で実施された調査では、トリクロサンは 0.093-0.85 μg/L と報告されている¹⁰⁾。分析方法の違いや間欠的な生活排水の流入、河川流量の変動を考えると単純に比較できないが、

表4 河川の調査結果

地点	水系	夏季												冬季												
		LAS	TCS	EHMC	BP-3	OC	HMS	OD-PABA	BP	UV-P	UV-326	UV-327	UV-328	UV-329	LAS	TCS	EHMC	BP-3	OC	HMS	OD-PABA	BP	UV-P	UV-326	UV-327	UV-328
St. 9	吉野川	28	0.03	0.03	N.D.	0.01	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	140	0.07	0.10	0.04	0.02	N.D.	N.D.	N.D.	0.03	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.
St. 6	吉野川	57	0.02	0.15	N.D.	0.01	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	98	0.06	0.05	0.03	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	0.01	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.
St. 8	吉野川	43	0.11	0.10	N.D.	0.04	N.D.	N.D.	0.01	0.02	0.01	N.D.	N.D.	51	0.14	0.05	0.05	0.04	N.D.	N.D.	N.D.	0.01	0.04	0.01	N.D.	0.01
St. 15	打樋川	0.9	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	26	0.02	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.
St. 16	福井川	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	10	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.
St. 4	吉野川	0.7	0.01	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	10	0.01	0.01	0.01	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.
St. 5	吉野川	0.7	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	7.7	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.
St. 3	吉野川	2.4	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	6.1	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.
St. 11	吉野川	1.9	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	6.0	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.
St. 14	那賀川	1.1	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	4.8	0.01	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	0.01	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.
St. 12	神田瀬川	2.6	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	4.7	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.
St. 2	吉野川	2.6	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	4.2	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.
St. 7	吉野川	2.0	N.D.	0.01	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	4.2	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.
St. 26	穴喰川	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	4.1	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.
St. 18	那賀川	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	3.5	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.
St. 25	海部川	0.7	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	3.2	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.
St. 21	日和佐川	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	3.1	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.
St. 19	勝浦川	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	2.9	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.
St. 1	吉野川	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	2.9	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	0.01	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.
St. 17	樽川	1.5	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	2.3	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.
St. 24	海部川	1.4	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	1.3	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.
St. 22	牟岐川	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	1.0	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.
St. 10	吉野川	1.7	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	0.9	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.
St. 13	勝浦川	-	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	0.8	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.
St. 27	吉野川	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	0.6	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.
St. 20	那賀川	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	0.01	N.D.	N.D.	N.D.
St. 23	海部川	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.

N.D.: Not Detected

トリクロサンについては厚生労働省が一部メーカー等に代替品への切替えを通知する以前に、メーカー側が自主的に切替えを進めていたこともあり、今回の調査を実施した平成 27 年度には既に環境中への排出が減少傾向に転じていた可能性が示唆される。

LAS は平成 28 年度の PRTR データの推計値によると、徳島県内で使用された 146 トンのうち 90%程度が家庭からの排出によるものとされており、家庭から排出される代表的な化学物質である¹¹⁾。また、LAS は比較的生分解しやすく、夏季の高温下では分解が速いとの報告がある¹²⁾。St. 9 で LAS が夏季に 28 µg/L、冬季に 140 µg/L 検出されており、淡水域（河川・湖沼）の 4 つの類型の環境基準 20-50 µg/L と比べても冬季が高濃度であったのは、生物分解活性の低下による可能性が示唆される。

LAS が夏季・冬季ともに 20 µg/L 以上で検出されて、生活排水の流入が比較的多いと考えられる St. 9 や St. 6 では、夏季・冬季ともにトリクロサンと EHMC も検出された。これらの河川の流域は下水道未普及地域であり、人口が比較的多いことから、生活排水に起因するものと考えられる。

調査対象河川の中で流域人口が最も多い St. 9 では、LAS が冬季には St. 8 の 2.7 倍の濃度であったが、トリクロサンの濃度は St. 8 の 2 分の 1 であった。また、夏季においても St. 9 では、トリクロサンは St. 8 の 3 分の 1 程度の濃度であった（表 5 及び図 3）。St. 8 周辺は一部下水道が整備されているが、付近に下水処理場があり、これまでにも下水処理場の処理水流入地点付近では生活関連物質の濃度が高くなると報告されている¹³⁾ ように、生活排水だけでなく、下水処理場の処理水の影響を受けることが推察される。

一方、下水道の比較的普及している St. 7 では、生活排水の流入量が少なく、生活排水の影響は比較的受けにくいと考えられる。今回の調査でも、St. 7 では夏季に

表 5 河川の推定流域人口

地点	推定流域人口（人）
St. 9	24,000
St. 6	16,000
St. 8	11,000
St. 7	9,000
St. 22	2,200
St. 23	600

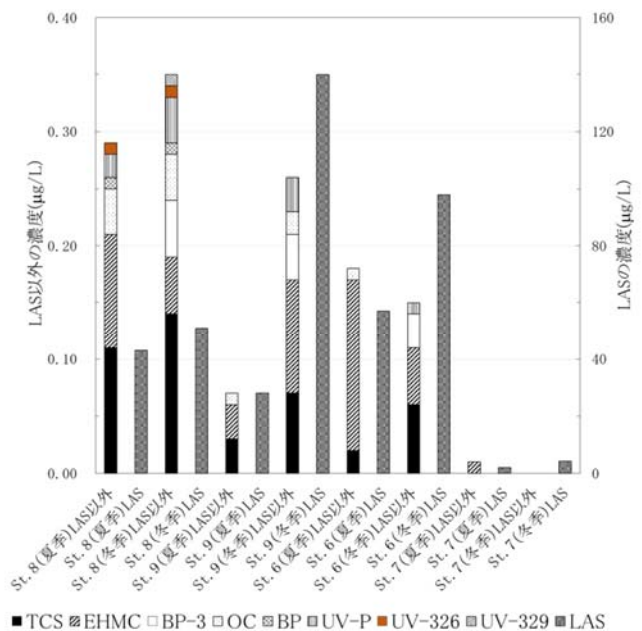


図 3 検出された物質の濃度

EHMC が 0.01 µg/L 検出されたものの、冬季には検出されず、LAS の検出濃度も St. 9 の 30 分の 1 以下であることから、この状況をよく反映しているものと考えられる。

St. 23 は人口が少なく流域に一部農業集落排水施設が整備されており、生活排水の流入は少ないと考えられ、夏季・冬季ともに LAS も含め全ての対象物質が非検出であった。

3.3 海水浴場の調査結果

調査は、海水浴客の多い夏季に焦点をあて、人出の比較的多い日曜日にあたる平成27年7月26日の午前6時から27日の午前6時まで実施した(表6)。日中(午前11時から午後4時の間)は、100人から300人程度の遊泳客が常時海中にいたが、午後9時には遊泳客は見当たらなかった。早朝午前6時には、数人のサーフィンをしている客が見受けられた。

海中にいる人数が数人程度の午前6時には全て非検出であったが、午前11時に遊泳客が100人程度になると、まずEHMCが検出され、遊泳客が200人程度の午後2時にはEHMC、BP-3、OC、HMSの4物質が検出され、遊泳客がピークに達した後の午後4時には紫外線吸収剤が最も高濃度に検出された。その後、午後5時に遊泳時間が終了し、遊泳客がいない午後9時にはEHMCのみ検出されたが、翌日午前6時には前日同様、紫外線吸収剤は全て非検出となった。

表6 海水浴場の調査結果 (μg/L)

化合物名	調査時刻					
	6:00	11:00	14:00	16:00	21:00	6:00
TCS	N. D.	N. D.	N. D.	N. D.	N. D.	N. D.
EHMC	N. D.	0.14	0.12	0.64	0.01	N. D.
BP-3	N. D.	N. D.	0.02	0.01	N. D.	N. D.
OC	N. D.	N. D.	0.02	0.26	N. D.	N. D.
HMS	N. D.	N. D.	N. D.	0.01	N. D.	N. D.
OD-PABA	N. D.	N. D.	N. D.	N. D.	N. D.	N. D.
BP	N. D.	N. D.	N. D.	N. D.	N. D.	N. D.
UV-P	N. D.	N. D.	N. D.	N. D.	N. D.	N. D.
UV-326	N. D.	N. D.	N. D.	N. D.	N. D.	N. D.
UV-327	N. D.	N. D.	N. D.	N. D.	N. D.	N. D.
UV-328	N. D.	N. D.	N. D.	N. D.	N. D.	N. D.
UV-329	N. D.	N. D.	N. D.	N. D.	N. D.	N. D.

検出されたのは、全て日焼け止め等の化粧品に含有される紫外線吸収剤で、最も高濃度になったのは、遊泳客が最も多かった午後4時で、EHMCが0.64 μg/L、OCが0.26 μg/Lであり、トリクロサンや工業製品添加剤として使用されるUV-326等は検出されなかった。EHMCは日焼け止め等への配合上限が高く、最も汎用されている紫外線吸収剤であるが、今回の調査においてもEHMCが最も高濃度であった。また、今回検出された紫外線吸収剤は、遊泳客数に概ね依存的な濃度であったことから、遊泳客の使用している日焼け止め等の化粧品由来であると考えられる。

今回遊泳時間中に海水浴場で検出されたEHMC、OCの濃度は、河川水で検出された濃度よりも高濃度であり、遊泳時間終了後13時間で非検出にはなったものの、他の海水浴場等でも同様に一時的にEHMC、OCの濃度が上昇している可能性が示唆される。しかし、これらの紫外線吸収剤の水環境中での動態と生態影響については不明な点が多く、より詳細な調査が必要であると考えられる。

3.4 レジャースポーツ場の調査結果

調査はラフティングの小歩危コースのゴール地点付近で行い、ラフティング利用者の多い夏季の平成27年8月31日の午前6時から午後6時まで実施した(表7)。調査地点は吉野川上流に位置し、周辺は峡谷で剣山国定公園に指定された景勝地であり、生活排水の影響が低い地域であると考えられる。調査当日は水位等の関係で、ほとんどのラフティングツアー業者が調査地点から8km上流をゴール地点とする大歩危コースに変更しており、調査地点は日焼け止め剤等に含まれる紫外線吸収剤が最も高濃度となる地点ではなかったと推察されるが、おおよその濃度の把握は可能であると考えられる。

ラフティング利用者が多いのは午前9時から午後4時であるが、いずれの時刻においても紫外線吸収剤及びトリクロサンは検出されず、対象の生活関連物質による汚染度は低いと考えられた。

表7 レジャースポーツ場の調査結果 (μg/L)

化合物名	調査時刻					
	6:00	9:00	12:00	14:00	16:00	18:00
TCS	N. D.	N. D.	N. D.	N. D.	N. D.	N. D.
EHMC	N. D.	N. D.	N. D.	N. D.	N. D.	N. D.
BP-3	N. D.	N. D.	N. D.	N. D.	N. D.	N. D.
OC	N. D.	N. D.	N. D.	N. D.	N. D.	N. D.
HMS	N. D.	N. D.	N. D.	N. D.	N. D.	N. D.
OD-PABA	N. D.	N. D.	N. D.	N. D.	N. D.	N. D.
BP	N. D.	N. D.	N. D.	N. D.	N. D.	N. D.
UV-P	N. D.	N. D.	N. D.	N. D.	N. D.	N. D.
UV-326	N. D.	N. D.	N. D.	N. D.	N. D.	N. D.
UV-327	N. D.	N. D.	N. D.	N. D.	N. D.	N. D.
UV-328	N. D.	N. D.	N. D.	N. D.	N. D.	N. D.
UV-329	N. D.	N. D.	N. D.	N. D.	N. D.	N. D.

3.5 下水処理場の調査結果

県内の下水処理場のうち、二次処理のみの処理場Aと高度処理及び紫外線処理を実施している処理場Bで流入水と処理水について調査した(図4)。前日の大雨による影響と考えられるがCODは平常時の3分の1程度であり、またグラブサンプリングであるため、採取した流入水と処理水は必ずしも平常時の水質を代表しているとは言えないが、おおよその処理状況の把握は可能であると考えられる。河川で比較的高濃度に検出されていたトリクロサン、EHMC、LASについては両処理場とも87%以上の除去率であった。特に高度処理を実施している処理場BではLASの除去率は99.9%と高かった。一方、処理水中の各物質の濃度はいずれも河川水中の濃度よりも高く、St.8のように下水処理場付近の河川は、その放流水の影響を受けることが示唆された。しかし、本県では下水処理場よりも合併処理浄化槽等で生活排水を処理している家庭が多くあり、水環境中の生活関連物質の挙動を見るには、浄化槽での処理状況についても知見を集積する必要があると考えられる。

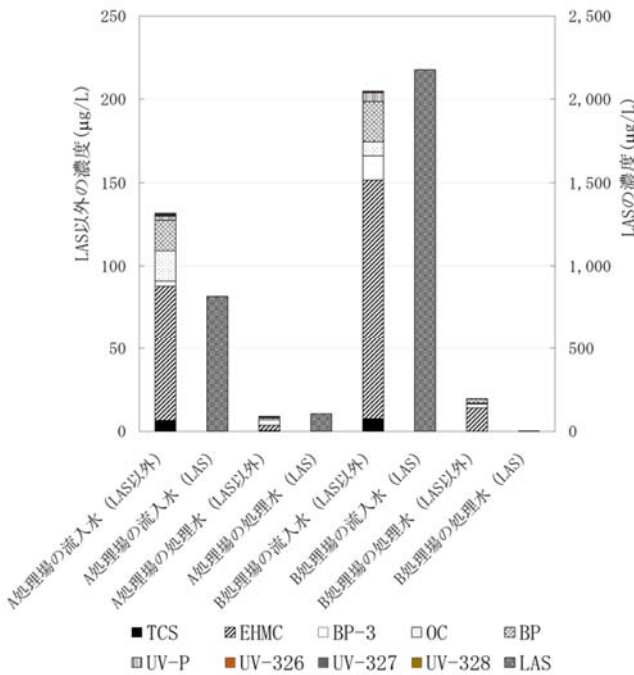


図4 下水処理場の調査結果

4. まとめ

生活関連物質であるトリクロサン、紫外線吸収剤及びLASについて徳島県内における河川水中の濃度実態調査を27地点で行った。対象の13物質のうち、夏季には7物質が、冬季には9物質が検出された。LASが20 µg/L以上検出され、生活排水の流入が比較的多い下水道未普及地域では夏季・冬季ともにトリクロサン及びEHMCも検出された。下水処理場の処理水が流入するSt.8では、流域人口の多いSt.9に比べてトリクロサンの濃度が高かった。一方、人口が少なく人為的汚染が少ないと考えられるSt.23では、夏季・冬季ともに全ての対象物質が非検出であった。

レクリエーション場として、小松海水浴場と歩危で通日調査を行った。海水浴場では、遊泳時間中はEHMCとOCが高濃度に検出されたが、遊泳時間終了後は非検出となった。歩危では全て非検出であり、対象の生活関連物質による汚染度は低いと考えられた。

さらに、県内の下水処理場の流入水及び処理水について調査した。河川で比較的高濃度に検出されたトリクロサン、EHMC及びLASは、両処理場とも87%以上の除去率であった。しかし、処理水中の濃度は河川水に比べて高く、St.8のように処理場付近の河川はその影響を受けることが示唆された。

今回の調査では測定回数が少なく、各々の河川等の状況を正確に表しているとは限らないため、生活関連物質の水環境中の動態や生態影響を調べるには、より詳細な調査が必要であると考えられる。

5. 引用文献

- Daughton C.D. and Ternes T.A.: Pharmaceuticals and personal care products in the environmental: agents of subtle change?. Environ. Health Persp, 107 Suppl.6, 907-938, 1999
- 中田晴彦: 排水および環境試料(河川水・底質・野生生物)中のPPCPs類について. 学会誌「EICA」, 17, 37-40, 2013
- 亀田豊: 河川及び湖沼の水圏生態系における紫外線吸収剤の汚染状況と食物網内の生物蓄積性に関する研究. 平成21年度河川整備基金助成事業, 2009
- 徳島県: 汚水処理人口の普及状況, <http://www.pref.tokushima.jp/docs/2014090400143/> (2017.8.12アクセス)
- 山本裕史: 防菌防カビ剤の河川環境における動態と生態リスクの総合的評価. 平成22年度河川整備基金助成事業, 2010
- Nakata H., Shinohara R., Murata S. and Watanabe M.: Detection of benzotriazole UV stabilizers in the blubber of marine mammals by gas chromatography-high resolution mass spectrometry. Journal of Environmental Monitoring, 12, 2088-2092, 2010
- 亀田豊, 山下洋正, 尾崎正明: 環境中の香料及び紫外線吸収剤の多成分同時分析手法の確立と環境中濃度の把握. 水環境学会誌, 31, 39-46, 2008
- 中山義博, 高木康人, 兔本文昭: 環境水中の日焼け止め成分分析の検討について. 奈良県保健環境研究センター年報, 46, 77-78, 2011
- 環境省: 化学物質の環境リスク評価 第7巻, <http://www.env.go.jp/chem/report/h21-01/> (2017.8.12アクセス)
- 田村生弥, 新田和代, 平田佳子, 山本敦史, 関澤純, 山本裕史: 下水道未整備地域を流れる小河川における生活関連汚染物質の動態解明と濃度簡易予測モデルの構築~徳島市冷田川を例として. 環境化学, 20(4), 339-349, 2010
- 徳島県: 徳島県における化学物質排出状況, <http://www.pref.tokushima.jp/docs/2011031000202/> (2017.8.12アクセス)
- 田村生弥, 太田美菜子, 関澤純, 山本裕史: 下水道未普及地域における河川生物膜による直鎖アルキルベンゼンスルホン酸浄化作用の評価. 環境工学研究論文集, 44, 127-134, 2007
- 杉下寛樹, 山下尚之, 田中宏明, 田中周平, 藤井滋穂, 宝輪勲, 小西千絵: 淀川流域の下水処理場放流水と支川における医薬品の存在実態. 環境工学研究論文集, 44, 307-312, 2007