

## 東京湾流域河川における溶存態・懸濁態 PFCs の空間分布及び輸送量

○頭士泰之<sup>1,2</sup>, Ye Feng<sup>2</sup>, 茂木守<sup>3</sup>, 野尻喜好<sup>3</sup>, 細野繁雄<sup>3</sup>, 鈴木俊也<sup>4</sup>, 小杉有希<sup>4</sup>,  
矢口久美子<sup>4</sup>, 益永茂樹<sup>2</sup>

(<sup>1</sup> 国立環境研究所, <sup>2</sup> 横浜国立大学, <sup>3</sup> 埼玉県環境科学国際センター,  
<sup>4</sup> 東京都健康安全研究センター)

### 【はじめに】

2009 年 5 月, 残留性有機汚染物質の廃絶に係るストックホルム条約においてペルフルオロオクタンスルホン酸 (PFOS) とその合成前駆物質 (PFOSF) が新たに指定された。この動きを中心として PFOS やその他類縁体を含む残留性有機フッ素化合物 (PFCs) に関する汚染問題取り組みは国際的に活発になっている。我々はこれまでに, PFOS を含む多種類の PFCs による水域汚染について東京湾とその流域を対象として汚染実態解明に取り組んできた<sup>(1,2)</sup>。2009 年 4~5 月に実施した東京湾流域全域の調査では, 河川水中の溶存態 PFCs 35 種について汚染実態を明らかにした<sup>(2)</sup>。その一方で, PFCs の類縁体ごとで環境挙動の差異を示唆する結果も得られた。これは PFCs のアルキル鎖長や官能基の異なりによる環境媒体への分配傾向の違いの現れだと考えられる。そこで, 懸濁物 (SS) 中の PFCs の存在実態を調べ, 溶存態 PFCs と併せて東京湾流域河川における PFCs 空間分布および東京湾への輸送実態を明らかにする事を試みた。

### 【方法】

**試料採取:** 東京湾流域全域を対象として, 2009 年 4 月 3 日~5 月 1 日の約 1 ヶ月間に河川水試料を採取した。試料収集にあたって前日に降雨が無く, 採取当日も水質に影響する降雨が無い事を条件とした。各小流域の末端 (n=50) や主要河川末端 (n=6) で採取した河川水試料を主として, 溶存態及び懸濁態に分けて PFC 分析を行った。

**PFC 分析:** 溶存態の PFC 分析手順については別報<sup>(2)</sup>を参照されたい。懸濁態 PFC の分析について, 河川水 500 mL をガラスフィルターでろ過し, SS を捕集した。このフィルターをポリプロピレンチューブに収め, 同位体標識の PFC 標準試薬を添加した。MeOH/EtOH (1 : 1) 混液を加え, 振とう・超音波抽出操作を各 20 分行った。この抽出操作を 3 回繰り返す。窒素パージにより濃縮した粗液を固相カートリッジ (Oasis@HLB) に通過させた。得られた溶出液をさらに濃縮し LC-MS/MS にて PFCs 含有量を定量した。SS の乾燥重量については別途測定した。本稿では, 良好な回収率が得られた PFOS 類 (C4-C10), PFOS 分岐異性体, PFOS 前駆物質としてスルホンアミド類 (FOSAs), スルホンアミドエタノール類 (FOSEs), スルホンアミドアセテート類 (FOSAA), PFOA 類 (C5-C17), その分岐異性体 (C8-C11), PFOA 類前駆物質としてテロマー不飽和カルボン酸類 (FTUCAs), テロマースルホン酸 (THPFOS), リン酸 (PFHxPA) を対象に報告する。

### 【結果と考察】

対象とした 35 種の懸濁態 PFCs は <0.003–4.4 ng/L (0.11–2470 ng/g-dry; SS 重量が定量下限未満を除く) の範囲で検出された。1 L 当たりの PFC 含有量 (ng/L) について, これら濃度は溶存態 PFCs よりも各々 1-2 桁低いものであったが, PFOA 類の長鎖同族体や一部の前駆物質については溶存態と同程度かより高い濃度であった。1 L 当たりの溶存態お

---

## Spatial Distribution and Loadings of Particle Sorbed and Dissolved Perfluorinated Compounds in the Basin of Tokyo Bay

Yasuyuki ZUSHI<sup>1,2\*</sup>, Feng YE<sup>2</sup>, Mamoru MOTEGI<sup>3</sup>, Kiyoshi NOJIRI<sup>3</sup>, Shigeo HOSONO<sup>3</sup>, Toshinari SUZUKI<sup>4</sup>, Yuki KOSUGI<sup>4</sup>, Kumiko YAGUCHI<sup>4</sup>, Shigeki MASUNAGA<sup>2</sup>

<sup>1</sup>National Institute for Environmental Studies, <sup>2</sup>Yokohama National University, <sup>3</sup>Center for Environmental Sciences, <sup>4</sup>Tokyo Metropolitan Institute of Public Health

\*Tel: +81-29-850-2917, Email: zushi.yasuyuki@nies.go.jp

よび懸濁態トータル PFC 含有量と 1 g-dry あたりの懸濁態トータル PFC 含有量について, 図 1 に東京湾流域における空間分布を示した。空間分布傾向が把握しやすいよう, 各項目の最大濃度を 1 に規格化して空間的な相対濃度を示した。溶存態同様, 懸濁態 PFCs も都市域において汚染レベルが高くなる傾向が見られた。特に g 当量の懸濁態 PFCs については溶存態 PFC 濃度との相関が強くなり, 都市域での増加傾向が見られた。都市域河川では排水, デトリタスやその他

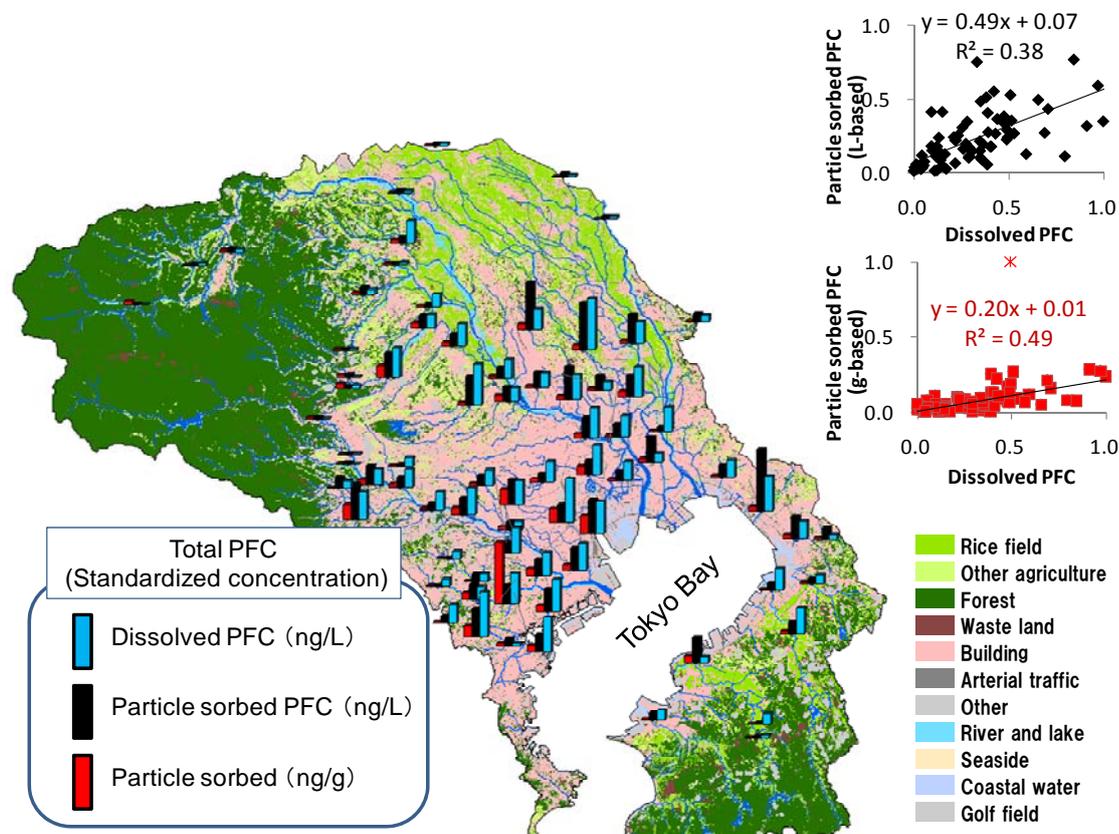


図 1 東京湾流域における河川水中の溶存態及び懸濁態 PFC 濃度(規格化後)の分布

有機物が増加するなど, 流下に伴い PFCs が吸着しやすい懸濁物組成に遷移していることが原因と考えられる。このことから, より詳細な傾向把握には有機炭素量等での補正が必要である。

表 1 には, 東京湾流入主要 6 河川からの PFC 負荷量を示した。PFOA 類について炭素鎖長が増加するに伴い懸濁態としての輸送比率が増加し, PFTrDA(C13)では輸送比率が逆転した。このことから PFCs の多くは溶存態として輸送されているものの, 長鎖の PFOA 類(C12-C15)に関しては, 大半が懸濁態として輸送されていると言える。降雨時には PFCs や SS の流出量増加があることから, これらの影響の調査が求められる。

表 1 溶存態及び懸濁態 PFC の東京湾への輸送量(μg/sec)と懸濁態の占める割合

	PFHpA	PFOA	PFNA	PFDA	PFUnDA	PFDoDA	PFTrDA	PFTeDA	PFPeDA	PFHxS	PFOS	NEtFOSAA	FOSA
Dissolved PFC	400	1300	7000	220	310	7.2	2.0	0.9	0.7	630	1800	47	80
Particle Sorbed PFC	20	7.5	41	6.5	38	5.2	10	1.4	2.5	1.6	63	5.2	3.2
Ratio (%)	0.6	0.6	0.6	2.9	10.9	42.0	83.5	60.7	77.4	0.3	3.4	10.0	3.8

### 【結論】

溶存態および懸濁態 PFCs は, 都市域において高濃度となる傾向を示した。PFCs の多くは溶存態として輸送されるが長鎖の PFOA 類は主に懸濁態として輸送される事が明らかとなった。今後, 降雨による輸送量の調査が求められる。

### 【参考文献】

(1) Zushi et al., *Environ. Pollut.* 2010, 756. (2) Zushi et al., *Environ Sci Technol* 2011, 2887.