

## 都市河川における水中および底質中の防腐剤12種の存在実態

木村久美子<sup>1,2</sup>, 亀田豊<sup>3</sup>, 山本裕史<sup>4</sup>, 中田典秀<sup>5</sup>, 渡部茂和<sup>1</sup>, 益永茂樹<sup>2</sup>  
 ( <sup>1</sup>さいたま市健康科学研究センター, <sup>2</sup>横浜国立大学大学院環境情報学府, <sup>3</sup>千葉工業大学工学部, <sup>4</sup>徳島大学大学院SAS研究部, <sup>5</sup>京都大学大学院工学研究科 )

### 【はじめに】

防腐剤は、化粧品や食品、医薬品などさまざまな分野で大量に使用されている。これら生活関連化学物質は、主に家庭から下水道や浄化槽を通して環境中に排出されるが、雨天時越流下水や未処理の家庭排水、また下水処理効率の低い物質の環境への負荷が懸念されている。

そこで我々は一昨年より、家庭排水の寄与が大きいと推測される防腐剤の水試料の一斉分析法を確立し、その方法を用いて河川溶存態中の濃度測定を行っており、その結果、数種の防腐剤が高濃度で存在することを報告した<sup>1), 2)</sup>。本研究ではさらに河川底質中の分析法を確立し、同時に採取した河川水および底質試料について濃度測定を行った。

### 【方法】

#### 分析対象物質

国内で化粧品に使用することができる防腐剤12種(2-フェノキシエタノール: 2-PE、レゾルシノール: RC、イソプロピルメチルフェノール: IPMP、クロロキシレノール: CX、メチルパラベン: MP、エチルパラベン: EP、プロピルパラベン: PP、イソプロピルパラベン: IPP、ブチルパラベン: BP、イソブチルパラベン: IBP、クロルフェネシン: CP、トリクロサン: TCS)を対象とした。

#### 分析試料

下水道普及率の異なる徳島、京都、埼玉を対象地域とし、それぞれの地点で1回調査を行った。徳島の冷田川については事前に予備調査を行ったため、計2回の調査となった。調査対象地点は、徳島は冷田川および田宮川、京都は西高瀬川および宇治排水路、埼玉は鴨川および古隅田川とし、河川水および河川底質を同時に採取した。河川水については、GF/Fろ紙を通過した溶存態試料を、底質については、2500 rpmで5分間遠心分離を行い上澄みを除去した後、2 mm目開きのふるいを通して均質化した湿試料を対象とした。

#### 分析方法

河川水の溶存態試料については、既報<sup>1)</sup>に従い分析を行った。底質試料の分析は、湿試料1g程度にサロゲートを数種添加した後、酢酸エチル10 mLで10分間超音波抽出を行い、さらにメタノール10 mLで10分間超音波抽出を行った。メタノールでの抽出は2回行った。抽出液は遠心分離を行って上澄みを採取し、ガラスウールでろ過した後、エバポレーターで乾固直前まで濃縮した。酢酸エチルで再溶解して試験管に移した抽出液を窒素パーズで乾固直前まで濃縮し、ジクロロメタン100 μL、BSTFA100 μLを添加し、40度で1時間静置してTMS誘導体化を行った。誘導体化後の試料について、活性炭カラム(InertSep GC: 150 mg/3mL)によるクリーンアップ後、イオントラップ型GC/MSによりスキャン測定を行った。

### Occurrence of twelve preservatives in urban river water and sediment

Kumiko KIMURA<sup>1,2</sup>, Yutaka KAMEDA<sup>3</sup>, Hiroshi YAMAMOTO<sup>4</sup>, Norihide NAKADA<sup>5</sup>, Shigekazu WATANABE<sup>1</sup>, Shigeki MASUNAGA<sup>2</sup>

<sup>1</sup>S.C. Institute of Health Science and Research (7-5-12 Suzuya, Chuo-ku, Saitama, Japan Tel: 048-840-2266, Fax: 048-840-2267 E-mail: [aea47-u1u1@city.saitama.lg.jp](mailto:aea47-u1u1@city.saitama.lg.jp)), <sup>2</sup>Grad. Sch. of Env. & Info. Sci, Yokohama National Univ.,

<sup>3</sup>Chiba Institute of Technology, <sup>4</sup>Inst. Socio, Arts & Sci., Univ. of Tokushima, <sup>5</sup>Grad. Sch. of Eng., Kyoto Univ.

【結果および考察】

底質試料の添加回収試験

新たに開発した底質試料の分析方法について、試料に標準物質を添加し、回収試験を行った。添加回収結果は 86.2 ~ 172.7%であった。最も高い回収率を示した物質は CP で、この物質については、ラベル化体が市販されていないため他物質のラベル化体により補正を行っている。そのため、抽出効率、GC-MS 分析の際のイオン化効率の違いから適切に補正が行われていない可能性が考えられる。

河川溶存態および底質中防腐剤濃度

河川水溶存態試料および底質試料中の防腐剤濃度と組成を Fig. 1、2 に示す。京都河川のうち西高瀬川は河川水のほぼ 100%が下水処理水であり、宇治排水路は主に病院排水および浄化槽処理水が流入する河川である。埼玉河川は、鴨川は下水道普及率が 80%程度の河川、古隅田川は、下水道普及率が低く、農業排水や浄化槽排水が多く流入する河川である。徳島河川は冷田川、田宮川ともに下水道普及率が 0%の河川である。

河川水溶存態試料中からは 8 種の防腐剤が検出された。検出された物質については下水道普及率によらずほぼ同じであったが、検出濃度については大きな差があった。特に 2-PE と IPMP については京都での検出濃度が数十 ~ 百 ng/L 程度であるのに対し、徳島および埼玉では 500 ~ 900 ng/L の高濃度であった。田宮川については、6 月と 12 月の 2 回調査しており、その検出濃度には大きな差があった。特に 2-PE については、6 月は 20 ng/L、12 月は 880 ng/L と 40 倍もの差があった。この一因として、2-PE は生分解性が高い物質であり<sup>3)</sup>、水温の高い時期は分解が比較的早く進むことが予想される。6 月と 12 月では水温が大きく異なるため、このような濃度差になった可能性が考えられる。9 月に調査を行った宇治排水路についても、病院排水や浄化槽排水が多く流入しているにも関わらず 2-PE の濃度が低い結果となったが、これについても同様の理由である可能性が考えられる。

底質試料中からは 3 種の防腐剤が検出された。すべての地点で検出された物質濃度の 75%以上を TCS が占める結果となった。今回の結果からは TCS の検出濃度において溶存態試料と底質試料の間の相関は見られなかった。2-PE や MP も検出されたが、この 2 物質は水溶性が高く、生分解性も高いため、底質中に蓄積するとは考えにくい。分析に供したのが湿試料であり、含水率が 25 ~ 40%程度であったため、水分中に混入していた可能性が高いと考える。

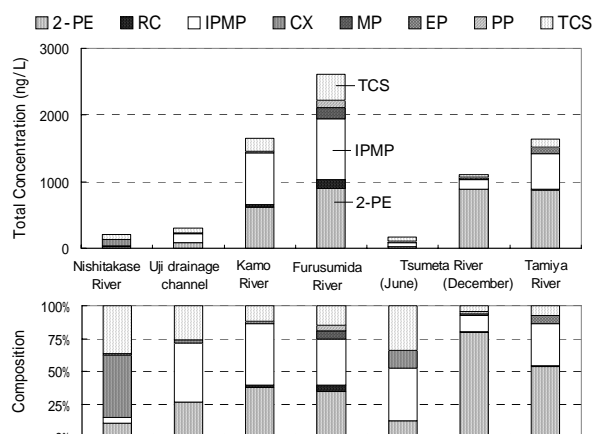


Fig. 1 Concentration and composition of contaminants in surface water

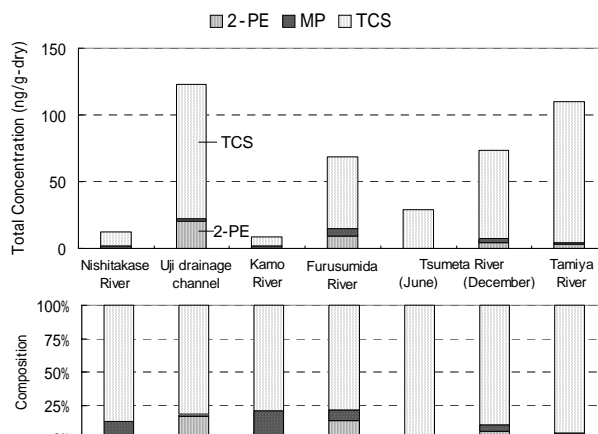


Fig. 2 Concentration and composition of contaminants in sediment

【謝辞】

本研究は、環境省環境研究総合推進費「RF-1004 水生・底生生物を用いた総毒性試験と毒性同定による生活関連物質評価・管理手法の開発」による助成を受けて実施した。ここに記して謝意を表す。

【参考文献】

- 1) 木村ら(2011) 第 45 回日本水環境学会年会講演集 pp.527
- 2) 木村ら(2011) 第 20 回環境化学討論会講演要旨集 pp.178 ~ 179
- 3) 大比賀ら(2012) 第 46 回日本水環境学会年会講演集 pp.645