

氏名	NGUYEN PHAM HONG LIEN <small>ニュアン ファム ホン リエン</small>
学位(専攻分野)	博士(工学)
学位記番号	工博第2850号
学位授与の日付	平成19年9月25日
学位授与の要件	学位規則第4条第1項該当
研究科・専攻	工学研究科都市環境工学専攻
学位論文題目	Study on Distribution and Behavior of PFOS (Perfluorooctane Sulfonate) and PFOA (Perfluorooctanoate) in Water Environment (水環境におけるPFOS(ペルフルオロオクタンスルホン酸)およびPFOA(ペルフルオロオクタン酸)の分布と挙動に関する研究)
論文調査委員	<small>(主査)</small> 教授 田中宏明 教授 藤井滋穂 教授 伊藤禎彦

### 論文内容の要旨

本論文は、ペルフルオロスルホン酸PFOS、ペルフルオロオクタン酸PFOAの汚染現況を世界レベルで調査し報告するとともに、水道水への影響、下水処理場放流水の影響を検証するもので、8章からなっている。

第1章は序論であり、PFOS、PFOAがPOPs(残留性有機汚染物質)として急速に問題となる経緯およびその汚染調査の現況について示し、それに対する本研究の目的を示している。

第2章は、PFOS、PFOAの水環境における汚染調査現況について文献をもとに考察している。従来の研究で、大西洋外海水・北極圏のシロクマ血清など様々な分布調査がなされているが、環境水の測定地域は、北欧、北米および日本など、先進国に限られ、それ以外の国、特に開発途上国では全く調査報告がなく、汚染実態の把握が不明であることを示し、その調査の重要性を示している。

第3章では、環境水のPFOS、PFOA分析法の開発を検討している。まず、PFOS、PFOA分析法について、従来の数十の研究例を調査し、PFOS、PFOA分析では、様々な方法が試みられているが固相抽出(SPE)、LC-MSが最も分析に適していることを見いだすと同時に、研究に使用する機器に最適なSPE、LCおよびMSの条件を検討した。結果として、SPE1000倍濃縮の場合、PFOS、PFOAでそれぞれ0.1、0.2ng/Lまで定量できる手順を開発した。また環境水へのPFOS、PFOA添加実験により、その回収率が90%程度であることも確認している。

第4章は、LC-MSが利用できない海外での調査プロトコルを2種類提案している。ひとつは、現地大学の協力と日本から持参の現場前処理装置を使い、数十試料を対象とする集中調査法であり、他は、水試料そのものを日本に直接持ち帰るスポットサンプル法である。ともに最終的なLC-MSによる定量分析は日本で実施する。ついで本手法により実施した国内外の調査の概要もまとめている。その調査国数は、日本を含め9カ国に及び、内ベトナム・タイ・マレーシア・シンガポール・トルコは、本研究が世界で初めて調査である。一連の調査は、河川・湖沼などの環境水に加え、水道水や下水処理場放流水で実施している。

第5章は、環境水の汚染実態について考察している。調査流域・地域の表流水中の中央値は、ジョーホールバル(マレーシア)で7.3/13(PFOS/PFOA;ともにng/L)、コタキナバル(マレーシア)で0.1/0.2、ボン川(タイ東北部)0.2/0.7、チャオブラヤ川下流(タイ)1.5/4.2、ハノイ(ベトナム)0.1/0.9、シンガポール4.7/16.4、深圳(中国)2.5/14.3、トルコ1.0/3.1、オレブロ(スウェーデン)0.9/0.1であることを見いだした。日本では淀川流域で高く、その中央値はPFOSが3.4ng/L、PFOAが34.4ng/Lであった。季節を変えた同一地点の調査結果より、採水日によって差は生じるが、地域による差に比べれば小さく、PFOSおよびPFOAの汚染レベルを決める要因が、主に場所に依存すること、すなわち近隣特定の排出源の影響が大きいことを推定した。

第6章では、環境水の調査と並行して実施した水道水調査について考察した。国内16都道府県、海外8カ国の調査より、

水道水中、PFOS・PFOAは、国内でともに98%、海外ではそれぞれ77%、78%の試料で検出されることを示した。PFOS/PFOA濃度の幾何平均は、淀川流域で2.7/12ng/L、淀川以外の国内で0.5/1.4ng/L、海外で0.5/1.1 ng/Lであった。水道水の汚染レベルは、環境水の汚染レベルと対応しており、PFOS・PFOAとも明確な正の相関が認められた。

第7章では、下水処理場の水環境汚染への影響を5カ国12カ所の下水処理場放流水調査より検討し、それが総じて河川水などに比べ高いが、処理場間での濃度差も大きいことを明らかとした。その中央値は、PFOSでは深圳、シンガポール、日本（淀川流域）、オレブロ、イスタンブールそれぞれ、PFOSで38,23,8.5, 3.5, ND ng/L、PFOAで29, 43, 48, 2.7, 17ng/Lとなった。その水環境への影響を定量的に評価するため実施した淀川流域調査からは、(1) 淀川を通じての大阪湾への年間排出負荷量は、PFOS 15kg、PFOA 120kg、(2) 淀川への負荷量は、流量では宇治川が7割程度と主要だが、PFOS・PFOAでは、流量で1割程度の桂川が約5割を占める、(3) 桂川での負荷量はほぼ、その上流の下水処理場放流水による、などを明らかにし、その人為影響の大きいことを示した。

第8章は結論であり、本論文で得られた成果について要約するとともに本分野における将来の研究展望を言及している。

### 論文審査の結果の要旨

本研究は、新規残留性有機汚染物のペルフルオロスルホン酸PFOS、ペルフルオロオクタン酸PFOAの水環境中での汚染実態、水道汚染影響、負荷源について各種の調査により検討したものである。主要な成果は下記の通りである。

1. 固相抽出とLC-MSとを組合せ分析する方法により、環境水のPFOS、PFOAを各0.1、0.2ng/Lまでの定量化する手法を確立した。さらに、LC-MSなどの分析装置のない海外で、PFOS・PFOA測定するための手順を開発し、広範な地域で汚染の実態を把握することに成功した。
2. 海外7ヶ国、9地域で調査を実施し、濃度レベルがPFOS、PFOAで各々ND~4.7、ND~16.4ng/Lであることを見いだした。日本では淀川流域で高く、その中央値はPFOSが3.4ng/L、PFOAが34.4ng/Lであった。
3. 時期による差違は地域差に比べれば小さく、これらの汚染が、主に場所に依存すること、すなわち近隣特定の排出源の影響が大きいことを推定した。
4. 国内外各地の水道水調査で、PFOS・PFOAが、国内でともに98%、海外ではそれぞれ77%、78%の試料で検出された。
5. 水道水の汚染レベルは、環境水の汚染レベルと対応しており、PFOS・PFOAとも明確な正の相関が認められた。
6. 5カ国12カ所での下水処理場放流水調査より、そのPFOS、PFOAは総じて河川水などに比べ高いが、処理場間での差も大きいことを明らかとした。国別の中央値は、PFOSでND~38ng/L、PFOAで2.7~48ng/Lとなった。
7. 淀川下流域44地点調査より、淀川を通じての大阪湾への推定年間排出負荷量が、PFOS 15kg、PFOA 120kgであり、その主要な負荷源が桂川上流の下水処理場放流水によることを明らかとした。

以上、本論文は、現在のPFOS、PFOAの汚染現況を初めて世界レベルで報告するものであり、さらにその水道・下水道との関連性を論じており、学術上、実際上寄与するところが少なくない。よって、本論文は博士（工学）の学位論文として価値あるものと認める。また、平成19年8月21日、論文内容とそれに関連した事項について試問を行った結果、合格と認められた。