

# 愛媛県内の水道水等に含有される ペルフルオロオクタンスルホン酸及びペルフルオロオクタン酸の実態調査

大内 かずさ 菰田 健太郎 入野 智美 大塚 有加 阪東 成純\*<sup>1</sup> 四宮 博人

Keywords : perfluorooctanesulfonic acid, PFOS, perfluorooctanoic acid, PFOA, LC/MS/MS

ペルフルオロオクタンスルホン酸 (PFOS) やペルフルオロオクタン酸 (PFOA) に代表される有機フッ素化合物は水にも油にも溶けやすいため、界面活性剤や泡状消火剤、撥水剤、フッ素コーティング剤等様々な用途で使用されている。令和2年4月1日に、水質管理上留意すべき項目として要検討項目から水質管理目標設定項目への変更が適用され、PFOS 及び PFOA の合算として 0.00005 mg/L 以下 (50 ng/L 以下) と暫定目標値が設定された。愛媛県内の水道水等における PFOS 及び PFOA の存在実態については、ほとんど明らかになっていないことから、愛媛県内の 19 市町における 104 地点を調査した。今回の調査では、すべての調査地点において暫定目標値を超える地点はなく、飲用に供することによる健康への影響は小さいと考えられた。なお、調査した 104 地点のうち、水道水 62 地点、地下水 21 地点、計 83 地点が暫定目標値の 10 分の 1 である 5 ng/L 以下であった。

## はじめに

ペルフルオロオクタンスルホン酸 (PFOS) やペルフルオロオクタン酸 (PFOA) に代表される有機フッ素化合物は水にも油にも溶けやすいため、界面活性剤や泡状消火剤、撥水剤、フッ素コーティング剤等様々な用途で使用されている。PFOS 及び PFOA は、環境中への残留性が高いため、国内外において規制が進み<sup>1,2)</sup>、水道法においては令和2年4月1日に、水質管理上留意すべき項目として要検討項目から水質管理目標設定項目へ変更され、PFOS 及び PFOA の合算として 0.00005 mg/L 以下 (50 ng/L 以下) と暫定目標値が設定されたところである<sup>3)</sup>。しかし、愛媛県内の水道水等における有機フッ素化合物の存在実態については、ほとんど明らかになっていないことから、今回、有機フッ素化合物のうち PFOS 及び PFOA について、愛媛県内の水道水及び地下水における実態を調査したので報告する。

## 材料と方法

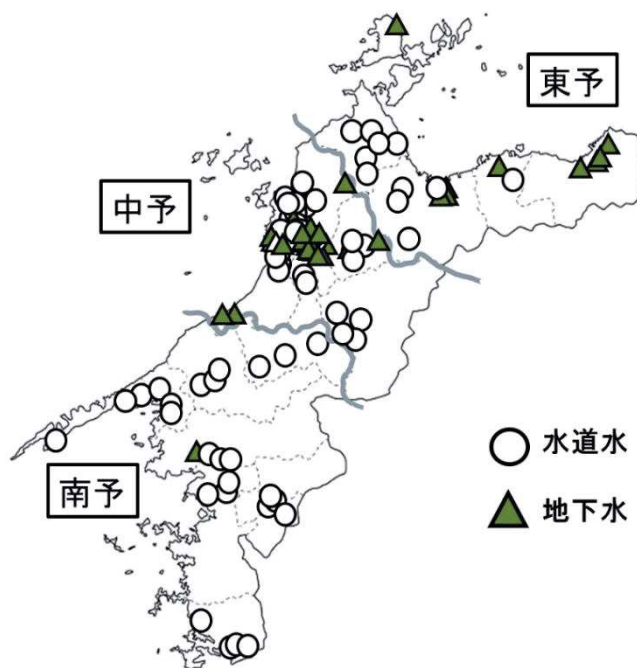
### 1 採水地点

愛媛県内の 19 市町における 104 地点 (水道水 73 地点、地下水 31 地点) について 2021 年 5 月から 12 月の期間に調

査を行った (図1)。

### 2 試薬等

使用する器具は、テフロン製のものを避け、メタノールで洗浄したものを使用した。



PFOS, PFOA 標準原液は、試験研究用 (メタノール溶液、

図1 愛媛県内の採水地点

愛媛県立衛生環境研究所 東温市見奈良1545番地4

\*1 愛媛県保健福祉部健康衛生局薬務衛生課

100 µg/mL, AccuStandard社)を用いた。また、内部標準原液は、PFOS, PFOAのラベル化体の試験研究用(メタノール溶液, 50 µg/mL, Cambridge Isotope Laboratories社)を、希釈に用いるメタノールはLC/MS用(和光純薬株式会社)を用いた。標準液及び内部標準液は、各標準原液を適宜メタノールで希釈し調製した。なお、PFOA及び内部標準物質は全て直鎖体のものを、PFOSは直鎖体の割合が71%のものを使用し、直鎖体のピーク位置に検出したピークのみを対象物質として検量線を作成した。

### 3 分析方法

通知法等<sup>4,6)</sup>に準じ、固相抽出法により前処理を行った。

固相抽出は、Waters社製の固相カラム (Oasis HLB Plus Short Cartridge 225 mg) を用い、メタノール10 mL、精製水10 mLによりコンディショニングを行った後、内部標準物質5 ngを添加した試料水500 mLを流した。次いで、カラムに窒素ガスを30分間通気し、対象物質をメタノール5 mLで溶出させた。溶出液は、窒素を吹き付けて0.5 mL以下に濃縮した後メタノールで0.5 mLに定容し、試験溶液とした。

測定は、液体クロマトグラフ-質量分析計 (LC/MS/MS) により行った。LC/MS/MSの分析条件は表1に示すとおりである。定量下限値は直鎖としてPFOSは0.32 ng/L、PFOAは0.45 ng/Lとした。

### 結果

PFOS及びPFOAの検出状況を、2物質合算濃度として、水道水、地下水ごとに示した(図2, 3)。

表1 LC/MS/MS 分析条件

LC 条件 (Waters 社製 UPLC H-Class)	
カラム	Waters 社 ACQUITY UPLC BEH C18 2.1×100 mm 1.7 µm
注入量	5 µL
カラム温度	40°C
流速	0.2 mL/min
移動相	A 液:10 mM 酢酸アンモニウム B 液:10 mM 酢酸アンモニウム-アセトニトリル (10:90) B:20% (0-1 min) - B:100% (16-21min) - B:40% (21-24 min)
MS/MS 条件 (Waters 社製 Xevo TQ-S micro)	
イオン化法	ESI ネガティブモード
プローブ電圧	1.0 kV
SRM 条件	(Precursor ion (m/z) / Product ion (m/z)) PFOS (499/80), <sup>13</sup> C <sub>8</sub> -PFOS (507/80) PFOA (413/169), <sup>13</sup> C <sub>8</sub> -PFOA (421/376)
その他条件	コーン電圧 15V イオン源温度 150°C 脱溶媒温度 500°C コーンガス流量 50 L/hr 脱溶媒ガス流量 1100 L/hr

調査した地点のうち水道水62地点、地下水21地点、計83地点が暫定目標値の10分の1である5 ng/L以下であり、そのうち28地点(水道水18地点、地下水10地点)は定量下限値未満であった。全地点での検出濃度の平均値はPFOSが1.6 ng/L、PFOAが2.1 ng/L、合算として3.8 ng/Lであった。水道水の検出濃度範囲は、PFOSが0.33~26.3 ng/L、PFOAが0.53~13.1 ng/Lであり、平均値は、PFOS 1.4 ng/L、PFOA 1.9 ng/L、合算として3.2 ng/Lであった。また、地下水の検出濃度範囲は、PFOSが0.38~15.2 ng/L、PFOAが0.89~11.0 ng/Lであり、平均値は、PFOS 2.3 ng/L、PFOA 2.7 ng/Lで、合算として5.0 ng/Lであった。水道水と地下水の平均値を比較したところ、両物質ともに地下水において検出濃度が高かった(表2)。

次に、東予、中予、南予の地域別の水道水におけるPFOS及びPFOAの検出状況を示した(表3)。東予地域の平均値は、PFOS 1.9 ng/L、PFOA 2.4 ng/L、合算として4.3 ng/L、中予地域の平均値は、PFOS 1.9 ng/L、PFOA 2.2 ng/L、合算として4.1 ng/L、南予地域の平均値は、PFOS

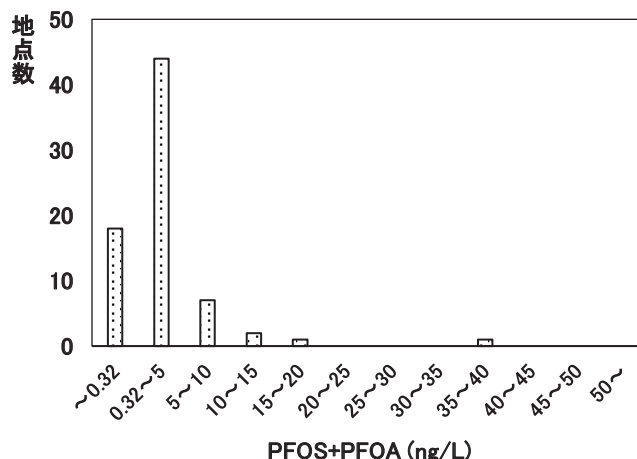


図2 水道水の濃度別検出状況

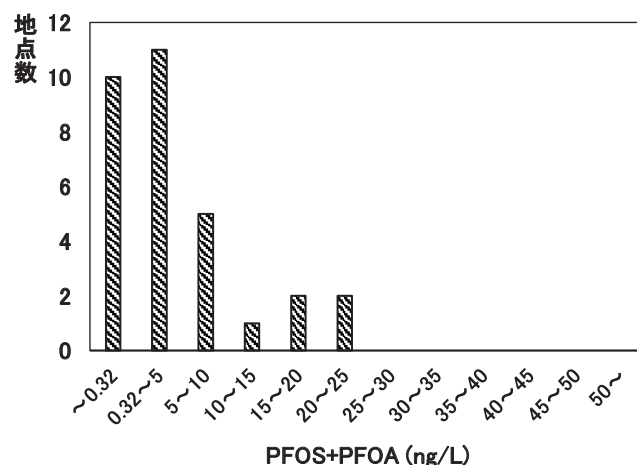


図3 地下水の濃度別検出状況

表2 愛媛県内の水道水及び地下水のPFOS・PFOA検出値

(ng/L)

地点数	PFOS			PFOA			PFOS・PFOA 合算			
	平均値	最小値	最大値	平均値	最小値	最大値	平均値	最小値	最大値	
全地点	104	1.6	0.33	26.3	2.1	0.53	13.1	3.8	0.33	38.2
水道水	73	1.4	0.33	26.3	1.9	0.53	13.1	3.2	0.33	38.2
地下水	31	2.3	0.38	15.2	2.7	0.89	11.0	5.0	1.2	22.5

表3 水道水のPFOS・PFOAの地域別検出値

(ng/L)

地点数	PFOS			PFOA			PFOS・PFOA 合算			
	平均値	最小値	最大値	平均値	最小値	最大値	平均値	最小値	最大値	
東予地域	12	1.9	0.36	15.7	2.4	1.4	13.1	4.3	0.38	15.7
中予地域	34	1.9	0.60	26.3	2.2	0.80	11.9	4.1	1.5	38.2
南予地域	27	0.46	0.33	2.3	1.1	0.53	8.5	1.6	0.33	9.5

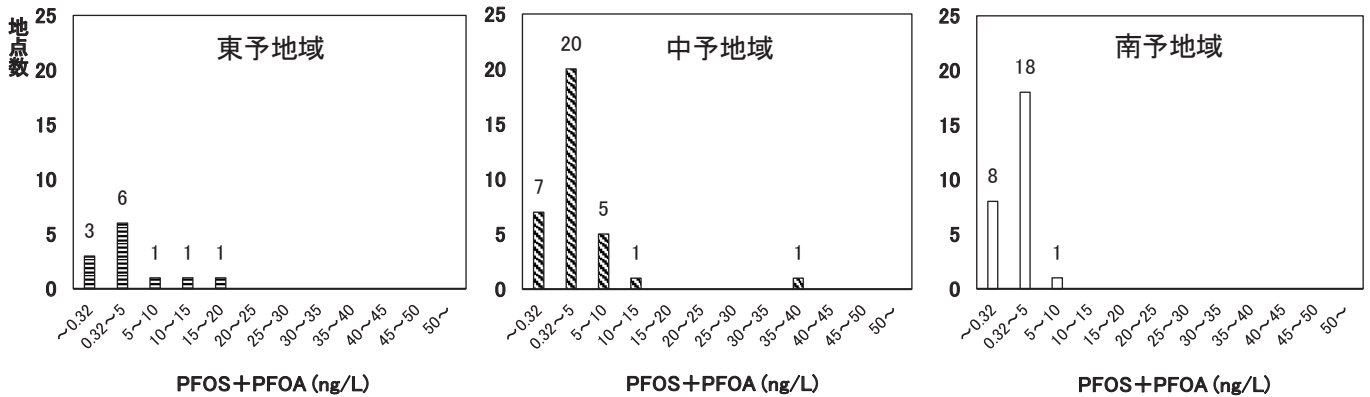


図4 水道水の地域別検出状況

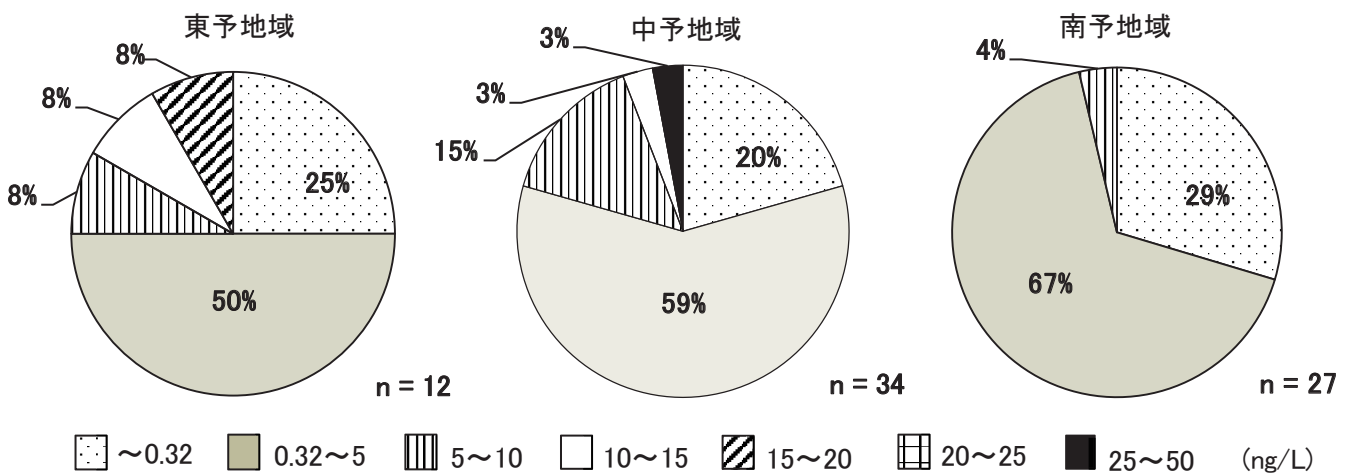


図5 水道水の地域別検出濃度別割合

0.46 ng/L, PFOA 1.1 ng/L, 合算として1.6 ng/Lであり, 南予地域が両物質ともに検出濃度が低かった. また, 地域別のPFOS, PFOA合算濃度別検出地点数及びその濃度別割合を比較したところ, 南予地域は96%が5 ng/L以

下であり, 東予, 中予地域と比較して暫定目標値の10分の1以下である地点が多くみられたが, 暫定目標値を超える地点はなかった(図4, 5).

## 考察

国内の水道水等のPFOS及びPFOAの実態調査についてはいくつか報告がある。環境省が実施した令和元年度及び令和2年度の有機フッ素化合物全国存在状況把握調査<sup>7,8)</sup>によると、四国内の地下水の検出状況は、PFOS及びPFOAの合算濃度として、徳島県0.3及び3.7 ng/L、香川県1.3及び28 ng/L、高知県7.2及び2.5 ng/Lであった。愛媛県は令和元年度の調査で0.8 ng/Lであった。今回調査した地下水31地点の合算検出濃度範囲は1.2～22.5 ng/Lであり、四国内の検出状況とは比較的近い値となった。

宅間ら<sup>9)</sup>によると、高知県内の配水池におけるPFOSの濃度はND、PFOAの濃度は検出限界 (1.5 ng/L) ～定量限界 (1.8 ng/L) 以下であり、今回調査した水道水73地点の平均値はPFOS、PFOAともに宅間らの報告より高い値であった。

また、中予地域の一部では、暫定目標値以下ではあるものの、比較的高い濃度が検出された。これら地域と同一の浄水場系から配水される水道水の濃度を比較すると、最も低い濃度は1.8 ng/L、最も高い濃度は38.2 ng/Lであり、約20倍の濃度差がみられた。今井ら<sup>10)</sup>は、浄水場の水源に地下水を使用し、その地下水が汚染されている場合には、浄水場にて混合される地下水の汚染及び混合される水量の影響を受ける可能性が示唆されると報告している。当該浄水場は、地下水を水源としていないため地下水の影響を受ける可能性は低いと考えられ、浄水場から配水されて以降、何らかの環境の影響を受けていると考えられる。

今回の調査では、PFOS、PFOA合算濃度が暫定目標値を超える地点はなかったことから、飲用に供することによる健康への影響は小さいと考えられた。しかしながら、暫定目標値以下ではあるものの、中予地域の一部には他地点と比較して検出濃度が高い地点がみられており、それらの地点の周辺についてさらなる調査を行い、県内の実態把握を進めていくことが必要と考える。また、PFOS、PFOAの代替物質として使用されているペルフルオロヘキサンスルホン酸 (PFHxS) 等、他の有機フッ素化合物の測定についても必要に応じ検討していきたい。

## まとめ

愛媛県内のPFOS、PFOAの存在実態について調査したところ、次のことが明らかとなった。

- 1) 愛媛県内19市町、104地点を調査したところ、水道水62地点、地下水21地点、計83地点が暫定目標値の10分の1である5 ng/L以下であり、そのうち28地点(水道水18地点、地下水10地点)は定量下限値未満であった。
- 2) 全地点での検出濃度範囲は、PFOSが0.33～26.3 ng/L、PFOAが0.53～13.1 ng/Lであった。
- 3) 今回の調査では、PFOS及びPFOAの合算検出濃度が暫定目標値である50 ng/Lを超える地点はなく、飲用に供することによる健康への影響は小さいと考えられた。

## 文献

- 1) 環境省:POPs(Persistent Organic Pollutants:残留性有機汚染物質), <http://www.env.go.jp/chemi/pops/>
- 2) 環境省:化学物質の審査及び製造等の規制に関する法律, <http://www.env.go.jp/chemi/kagaku/kashinkaisei.html>
- 3) 厚生労働省:令和2年3月30日生食発0330第1号,水質基準の一部改正について(施行通知)
- 4) 厚生労働省:平成15年10月10日健水発第1010001号別添4「水質管理目標設定項目の検査方法」厚生労働省,水質管理目標設定項目の検査方法
- 5) 東京都健康安全研究センター:令和元年度東京都水道水質検査精度管理「講習会」,東京都における有機フッ素化合物(PFCs)の一斉分析法, [http://www.tokyo-eiken.go.jp/files/lb\\_kankyo/room/suisitu/PFCs-bunsekihou.pdf](http://www.tokyo-eiken.go.jp/files/lb_kankyo/room/suisitu/PFCs-bunsekihou.pdf)
- 6) 古川浩司ら,環境技術,49,(3),p.154-159(2020)
- 7) 環境省:令和元年度PFOS及びPFOA全国存在状況把握調査結果一覧 <https://www.env.go.jp/content/900515656.pdf>
- 8) 環境省:令和2年度PFOS及びPFOA全国存在状況把握調査結果一覧 <https://www.env.go.jp/content/900517680.pdf>
- 9) 宅間範雄ら,高知衛研報,55,31-34(2009)
- 10) 今井志保ら,水環境学会誌,35,(3),57-64(2012)

## Survey of perfluorooctanesulfonic acid and perfluorooctanoic acid concentrations in tap water and groundwater in Ehime Prefecture

Kazusa OUTI, Kentaro KOMODA, Tomomi IRINO, Yuka OOTSUKA, Naritoshi BANDO, Hiroto SHINOMIYA

Organo-fluorine compounds such as perfluorooctanesulfonic acid (PFOS) and perfluorooctanoic acid (PFOA) are soluble in both water and oil and are used in various applications such as surfactants, foam fire extinguishing agents, water repellents and fluorine coating agents. On April 1, 2020, the change from ‘Items for Further Study’ to ‘Complementary Items’ was applied as an item to be noted for water quality control in Japan, and a provisional target value of 0.00005 mg/L or less (50 ng/L or less) was set as the total of PFOS and PFOA. Since the presence of PFOS and PFOA in tap water in Ehime Prefecture is not well known, we surveyed 104 sites in 19 cities and towns in Ehime Prefecture. In this survey, none of the surveyed sites exceeded the provisional target values, suggesting that the health effects of drinking the water are small. Of the 104 sites surveyed, a total of 83 sites (62 tap water sites and 21 groundwater sites) were below 5 ng/L, one-tenth of the provisional target value.