

終了課題成果報告書

研究テーマ名	環状シロキサンの分析法開発と環境汚染実態解明
研究担当者(共同研究者含む)	○堀井勇一、茂木守、大塚宜寿、蓑毛康太郎、野尻喜好
実施期間	平成24年度～平成26年度(3か年)
研究区分	自主研究事業
環境基本計画上の位置付	(目標)1 環境負荷の少ない安心・安全な循環型社会づくり (施策)2 公共用水域・地下水及び土壌の汚染防止
背景と目的(目標設定)	<p>シリコン化合物は、耐熱・耐寒性、電気絶縁性、化学的安定性、撥水性をもつ化合物で、電気・電子機器、建築材料、日用品等の多くの産業分野で広く使用されている。なかでも揮発性メチルシロキサン(以後、シロキサン類とする)は、生産量が多く、最近の調査・研究により、環境残留性や生物蓄積性を有することが指摘されており、環境や生態系への悪影響が懸念される化合物である。現在、シロキサン類に係る国内法規制は整備されておらず、環境汚染レベルに関する知見は皆無に等しい。本研究では、埼玉県において、シロキサン類の環境調査を全国に先駆けて行い、その排出源、環境汚染レベル、環境動態等の知見を集約し、シロキサン類の環境影響評価に役立てることを目的とする。</p>
研究内容(緊急性・必要性、新規性・独創性)	<p>水環境中のシロキサン類濃度に関する知見は国際的にも乏しく、環境汚染実態・環境動態を理解するための基礎的情報の整備が必要とされている。そこで本研究では、国内環境データ取得のため分析法開発を行い、これを用いて排出源情報の整備や水環境モニタリングの包括的な研究に取り組んだ。</p> <p>まず、分析法開発においては、水質、底質、魚類を含む各媒体について分析法を検討した。カナダでは既に工場排水について排出目標値が制定されていることから、特に水試料について公定法の整備が急務といえる。本研究では、水中シロキサン類の分析法としてパージトラップ法を用いた高精度かつ汎用性の高い分析法を、公定法提案を視野に入れ開発を進めた。</p> <p>シロキサン類は多様なパーソナルケア製品に使用される高生産量化学物質である。そこで排出源情報の整備として、下水処理施設の詳細調査を実施した。具体的には、下水処理施設からのシロキサン類の排出実態調査、処理方式の異なる施設におけるマスバランス調査等である。これにより、シロキサン類の除去率や大気及び公共用水域への排出割合・排出量を推算した。また、代表施設において、シロキサン類の流入量及び排出量の日内及び週内変動の詳細調査を行い、生活サイクルとシロキサン類の流入・排出量の関係について考察した。</p> <p>環境中に排出されたシロキサン類の環境動態及び蓄積状況を解明するため、県内河川を中心に国内初となる水環境モニタリングを実施した。同水域において水質、底質、魚類を併せて採取・分析することで、シロキサン類の濃度分布や環境残留特性を把握した。さらに、シロキサン類の実濃度データを基にした魚類に対する生物蓄積性評価や毒性情報との比較による生態リスク評価を行った。</p>
成果の概要(目標達成度)	<p>本研究において、これまで分析が困難であった水中シロキサン類の分析法開発に成功した。その検出感度はsub-ng/Lと従来法と比較して、10倍程度の高感度化を達成した。また、これまで底質や生物など固体試料の簡便なクリーンアップ法は確立されていなかったが、本研究で検討したパージトラップ法が固体試料のクリーンアップ法として、着色成分や脂質除去に応用できることを見出した。</p> <p>県下水道局及び下水道公社の協力を得て、県内流域下水道処理施設(全9箇所)の詳細調査を実施し、シロキサン類の排出実態を明らかにした。下水処理によるシロキサン類の除去率は約95%であり、その大部分は活性汚泥への吸着によるものと示された。また、公共用水域への排出割合だけでなく、曝気ガスや汚泥焼却ガスを介した大気への排出割合も明らかにすることができた。</p> <p>本研究により確立した分析法を用いて、水質、底質、生物の多媒体について環境モニタリングを実施することで、県内河川におけるシロキサン類の濃度レベルを把握した。下水や生活雑排水の影響の高</p>

い河川では水中シロキサン類の濃度が高く、また、下水放流口付近に生息する魚類には、高濃度でシロキサン類が蓄積している実態が明らかになった。ハザード比を用いる生態リスク評価では、水質についてD4が1に近い値を示し、また、底質についてD5の値が1を超える地点も検出されたことから、今後、シロキサン類について詳細な情報収集や追加調査の必要性が示された。

成果の公表(発表・投稿、講演会の開催、報道機関の活用、特許取得等)

【誌上発表】

- 1) Y. HORII, K. MINOMO, M. MOTEGI, N. OHTSUKA, K. NOJIRI: Organohalogen Compounds, 75, 1291-1294 (2013) “Concentration profiles of volatile methylsiloxanes in river water, sediment and fish samples from Tokyo Bay watershed”
- 2) Y. HORII, K. MINOMO, M. MOTEGI, K. NOJIRI: Organohalogen Compounds, 76, 752-755 (2014) “Mass Loading and Fate of Volatile Methylsiloxanes in Two Different Types of Sewage Treatment Plants from Japan”

【学会発表等】

- 1) Y. HORII, K. MINOMO, M. MOTEGI, N. OHTSUKA, K. NOJIRI: 33rd International Symposium on Halogenated POPs (2013) “Concentration profiles of volatile methylsiloxanes in river water, sediment and fish samples from Tokyo Bay watershed”【国際学会にて特別セッションを企画・開催】
- 2) Y. HORII, K. MINOMO: 33rd International Symposium on Halogenated Persistent Organic Pollutants (2013) “Method development of cyclic and linear volatile methylsiloxanes in sediment and fish samples”
- 3) 堀井勇一: 環境科学会2013年会(2013)「揮発性メチルシロキサンの環境排出実態と生態環境影響の評価」【企画シンポジウムを開催】
- 4) Y. HORII: The 5th Winter Symposium on POPs and Emerging Contaminants (2014) “Volatile methylsiloxanes in the environment; analysis, source, and environmental fate”【招待講演】
- 5) Y. HORII: Workshop on Advanced studies of chemical substance environmental assessment focusing on cVMS, Tokyo, Japan, 2014. “Volatile Methylsiloxane in the Water Environment: Method Development and Application to Environmental Monitoring in Tokyo Bay Watershed”【招待講演】
- 6) Y. HORII, K. MINOMO, M. MOTEGI, N. OHTSUKA, K. NOJIRI: 34th International Symposium on Halogenated Persistent Organic Pollutants (2014) “Occurrence and Distribution of Volatile Methylsiloxanes in River Waters from Saitama, Japan”
- 7) 堀井勇一、蓑毛康太郎、大塚宜寿、茂木守、野尻喜好: 第18回日本水環境学会シンポジウム(2015)「東京湾流域における揮発性メチルシロキサンの環境汚染実態」【招待講演】

他19件の発表

成果の発展性(埼玉県(行政・地域)への貢献、技術発展・実用化、課題等)

本研究で開発した分析法を基にして、現在、経済産業省の国際標準化加速事業の一環として、水中シロキサン類分析法の国際標準化を進めている。これまで国内でシロキサン類の分析例は、国外と比較して極限られたものであったが、本研究における分析法の整備により、今後、当該分野の活性化及び国内環境データの充実が期待される。

化学物質の環境への排出量把握は、そのリスク評価において必須であり、本研究で得られた下水処理施設調査の結果は、今後の環境動態解析や生態系への暴露濃度推定等のモデル計算に大いに活用できる。また、下水処理施設からのシロキサン類の排出濃度は浮遊物質量に依存することが判明し、高度処理等により浮遊物質量を低減することで、シロキサン類の排出量を削減できると示された。

米国では、2012年に一部のシロキサン類が有害物質規制法の優先化学物質に選定され、現在、米国環境保護庁と産業界が連携して環境モニタリングを進めている。一方で、本研究を開始した時点では、国内における水環境中シロキサン類の汚染実態はまったく不明であったが、本研究の推進により県内の濃度レベルを全国に先駆けて明らかにすることができた。海外ではシロキサン類の排水規制が検討されており、これら未規制物質の環境汚染情報をいち早く行政へフィードバックすることで、今後の環境施策立案に貢献できるものと考えられる。