

令和元年6月21日現在

機関番号：12701

研究種目：基盤研究(B) (一般)

研究期間：2016～2018

課題番号：16H02973

研究課題名(和文) ペルフルオロアルキル酸前駆体総量の定量的測定法の開発とその環境動態解析への応用

研究課題名(英文) Determination method of total perfluoroalkyl acid precursors and its application to the better understanding of their environmental behavior

研究代表者

益永 茂樹 (MASUNAGA, Shigeki)

横浜国立大学・大学院環境情報研究院・名誉教授

研究者番号：50282950

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 13,600,000円

研究成果の概要(和文)：操作が簡便な、アルカリ性下でペルオキシ二硫酸カリウムを用いる酸化分解法について検討した。ペルフルオロアルキル酸(PFAA)前駆体の分子構造と共存物質により最適分解時間は変化し、ペルフルオロアルキル基の短鎖化は常に起こった。よって、全酸化可能前駆物質定量法は、これらの問題があることを理解して結果を解釈する必要があることを指摘した。本法を3つの下水処理場のPFAA前駆体収支解析に適用し、曝気槽での前駆体の消失を確認した。消失量は余剰汚泥引き抜きでは説明できず、揮散が疑われた。このような挙動は本法の適用によりはじめて可視化できたことで、全酸化可能前駆体定量法の有用性が改めて示された。

研究成果の学術的意義や社会的意義

PFOAやPFOSによる汚染が世界的に問題視されており、これらは国際規制の対象となったが、環境で分解し、ペルフルオロアルキル酸類を生じる前駆物質に対する管理はこれからである。この問題に対する一つの取り組み方法として、全前駆物質分析法の開発と応用に取り組み、完全ではないものの、前駆体の一部を可視化できることを明らかにした。今後のペルフルオロアルキル酸前駆物質による環境汚染を理解し適切に管理する上で、本成果は、全酸化可能前駆体分析法(TOP Assay)の限界をわきまえた利用を促すガイドラインとなる。

研究成果の概要(英文)：Oxidation of PFAA precursors to PFAAs by persulfate proposed by Houtz & Sedlak (so called Total Oxidizable Precursor Assay: TOP Assay) was evaluated. Although the assay is simple, the completeness of oxidation depended on molecular structure of precursors and co-existing organics. In addition, PFAAs with shorter carbon chain were always formed. Therefore, its results should be evaluated carefully. We applied the assay to analyze the mass balance of precursors in 3 sewage treatment plants and found that significant amount of precursor was lost during aeration probably due to evaporation.

研究分野：環境化学

キーワード：ペルフルオロアルキル酸 前駆体 酸化分解 定量法 下水処理場 全酸化可能前駆体 Oxidizable Precursor TOP Assay

様式 C - 19、F - 19 - 1、Z - 19、CK - 19 (共通)

1. 研究開始当初の背景

ポリ -、およびペル - フルオロアルキル化合物 (**poly-, and per-fluoroalkyl substances: PFASs**) による地球規模の汚染が懸念されている。アルキル基の水素が全てフッ素に置換されたペルフルオロアルキル基は **PFASs** の基本構造で、化学的に安定、従って環境中で非常に難分解であり、**PFASs** が部分分解した時にも、ペルフルオロアルキル酸 (**perfluoroalkyl acids: PFAAs**) として残留する。分解して **PFAAs** を生成する化合物群はペルフルオロアルキル酸前駆体 (**PFAA precursor**) と呼ばれ、2011 年時点で 300 種近い **PFAA** 前駆体が報告されていた[1]。

フッ素と炭素の結合は強固で、ペルフルオロアルキル基は化学的に安定で、耐熱性、耐光性に優れている。しかも、撥水性と撥油性を合わせ持ち、その末端官能基として酸を持つ **PFAAs** は、界面活性剤としても優れている。中でも **C₈** の炭素鎖を持つペルフルオロオクタンスルホン酸 (**perfluorooctane sulfonic acid: PFOS**) とペルフルオロオクタノ酸 (**perfluorooctanoic acid: PFOA**) は広範に使用され、これらとその誘導体は、撥水剤、表面処理剤、防汚剤、消火剤、コーティング剤、潤滑剤、消泡剤の成分として、またフッ素樹脂の合成助剤として種々の工業生産工程や消費者製品として使用されてきた。

PFASs の利用開始から 60 年余を経たが、環境や生物体内での残留が知られたのは近年 (2001 年頃) で [2]、その汚染の広がりが明らかとなった [3]。さらに、有害性も指摘され [4]、主要生産企業は生産を自粛した。2009 年、**PFOS** とその塩、およびペルフルオロオクタンスルホンフルオリド (**perfluorooctane sulfonyl fluoride: PFOSF**) が残留性有機汚染物質に関するストックホルム条約によって国際的な規制対象となった。**PFOA** も多くの企業が自主的に生産を停止した。日本でも **PFOS** と **PFOSF** が化学物質審査規制法の第一種特定化学物質に指定された (2009 年)。また、**PFOA** のストックホルム条約での規制も議論が始まっていた。

PFOS や **PFOA** の代替として、短鎖ペルフルオロアルキル酸やペルフルオロアルキル基を分子構造に含む種々の化合物が生産されている。D'eon & Mabury [5] は **PFOSF** の生産量が 2001 年を境に急減したのに対し、フロロテロマーアルコール (**Fluorotelomer alcohol: FTOH**) の生産量は急増したと報告した。ペルフルオロアルキル基がエーテル結合でつながった新規化合物も登場し、一部地域の高濃度になっている [6, 7]。これら前駆体は最終的に **PFAAs** を生じる。

Benskins et al. [7] はペルフルオロアルキル基を持つスルホンアミド化合物群を個別測定し、それらの濃度の総和 (Σ **FOFOSAMs**) は **PFOS** 濃度の 1.4 ~ 24 倍だったと報告している。

前駆体の環境中存在を把握し、**PFAAs** 汚染の将来を予測すること、そして、未規制 **PFAA** 前駆体に対する規制の必要性を議論するためには、**PFAA** 前駆体の環境中存在を把握することが必要である。しかし、**PFAA** 前駆体は 2011 年時点でも 48 化合物群 268 種の個別化合物が知られ [1]、個別分析で対応するのは困難である。よって、前駆体を包括的に定量するための手法が必要となっている。

2. 研究の目的

PFAA 前駆体を包括的に把握する方法としては、**Houtz & Sedlak [9]** が、酸化剤を用いて **PFAAs** まで分解し、**PFAAs** として定量する方法を提案した。研究代表者らも、この方法で多摩川の河川調査を行ない、炭素鎖長 4 ~ 12 の **PFAAs** 総濃度が酸化分解により 28 ~ 69% 増加すること認め、前駆体の存在量が無視できないことを報告した [10]。しかし、検討の中で **Houtz & Sedlak** 法は分解率のばらつきが大きいことなど、課題があることを実感した。そこで、本研究では以下の項目について検討し、より確実な **PFAA** 前駆体総量の定量方法の提示を目指す。

- (1) 酸化分解反応を検討するため、分子構造の異なるスルホンアミド系、テロマーアルコール系などの **PFAA** 前駆物質について、個別の分析方法を確立する。
- (2) 検討対象 **PFAA** 前駆体について、**PFAA** への変換率が高く、また、前駆体のアルキル鎖長が保存されることを目標として、最適な酸化分解法を探索する。
- (3) 最も有望な酸化分解法において、共存する有機物等が反応に与える影響について検討し、安定性の高い分解条件を確立する。
- (4) 最適化した **PFAS** 前駆体の総量分析法を利用し、環境試料等を分析し、環境に残留している **PFAS** 前駆体の総量の見積もりや、将来の環境での **PFAAs** の生成量の予測を試みる。

3. 研究の方法

PFAA 前駆体としては、以前より使用されてきたスルホンアミド系やフロロテロマーアルコール系に加え、生産と使用が制限された **PFOS** や **PFOA** の代替物質として登場した物質など、多様な化学物質が存在する [1]。できるだけ多くの **PFAA** 前駆体を **PFAA** まで分解できる方法が望ましいので、代表的な構造の化合物を選択し、異なる酸化分解法を適用し、前駆体分解率が高く、また、ペルフルオロアルキル基を鎖長の変えずに **PFAA** に変換する分解方法と条件を探索する。さらに、共存物質による酸化分解反応への阻害についても検討する。最良の方法と条件を環境試料等に応用し、前駆体総量の存在実態について調査する。具体的には以下の方法による。

検討対象とする **PFAA** 前駆体の選択と個別分析方法の確立

使用量が多いスルホンアミド系 [8]、および比較的分解が早く近年生産量の増加が知られるフロロテロマーアルコール系 [5] を試験対象物質にする。フロロテロマーアルコールは、LC-MS/MS 分析では感度が低いため、GC-MS(NCI)法について検討する。分解産物としてはペルフルオロアルキルカルボン酸 (**PFCA_s**) が想定されるが、こちらは既存法によることができる。

種々の酸化分解法によるペルフルオロアルキル酸前駆体 (PFAA 前駆体) の分解実験

PFAA 前駆体の酸化分解法としては、Houtz & Sedlak [9]が提案した塩基性下でペルオキシ二硫酸カリウムを用いる方法があるが、研究代表者らがその欠点(分解率の不安定性とペルフルオロアルキル基の途中での切断)を指摘した[11]。硫酸ラジカル、水酸ラジカル、オゾン、過酸化水素、次亜塩素酸の酸化還元ポテンシャルは、それぞれ 3.1、2.6、2.1、1.8、1.5 eV である。Houtz & Sedlak 法では、硫酸ラジカルを経由して水酸化ラジカルを生成させているので、直接水酸化ラジカルを生成する方法を、まず試行する。また、分解時間等の制御によって最適分解条件を探し出す。

共存物質が酸化分解に与える影響の検討

適切な酸化分解法が選択後、共存物質の影響を受けにくい分解条件を探し出すため、薬品濃度、処理時間、処理温度や圧力など、操作条件について検討する。すべての課題を解決する方法がない場合は、手法の限界や、別の方法の可能性について考察する。

最適化した酸化分解法による環境媒体や製品試料における前駆体量の測定

最適化した酸化分解法を利用して、環境水や下水処理場の調査を行い、環境における PFAA 前駆体の存在実態や排出量を把握し、考察する。

4. 研究成果

4-1 Houtz & Sedlak 法以外の酸化法の検討

Houtz & Sedlak 法は、分解率の不安定性と前駆体中のペルフルオロアルキル基より鎖長が短い PFAA が生成するという課題があった。後者の原因として、硫酸ラジカルを経由して水酸化ラジカルを発生させているため、硫酸ラジカルが直接前駆体の酸化に関与してしまっている可能性が考えられた。そこで、本研究では、直接水酸化ラジカルを生成する方法として、Fenton 法と O₃/Alkali 法、水酸化ラジカルより酸化力の劣る方法として O₃ 法を用い、前駆体の一種 N-メチルペルフルオロオクタンスルホン酸アミド酢酸 (N-MeFOSAA) の酸化分解を行った。分解産物の測定対象は C₅~C₈ のペルフルオロスルホン酸 (PFCAs) である。結果として、Fenton 法では PFOA への変換が 33% で、収支もとれたが、O₃/Alkali 法と O₃ 法では PFOA への変換率は低く、しかも収支がとれなかった (表 1)。この理由としてオゾンの吹き込みによる試験液のロスが一因とみられた。何れの方法でも短鎖の PFCAs の生成が確認され、酸化力が硫酸ラジカルより低い水酸化ラジカルやオゾンでも短鎖への変換が起こった。成績の良かった Fenton 法では、N-MeFOSAA の分解に必要な量より過剰な試薬を一度に添加していたが、多量に生成した水酸化ラジカル同士の反応が起こり、有効に活用されなかった可能性がある。そこで、Fenton 試薬を 3 回に分けて添加したところ、N-MeFOSAA 残存率は 22%、PFOA 生成率は 94% まで改善した。

Fenton 法では PFOA の生成率を高めることができたが、短鎖 PFCAs の生成は抑えられなかった。検討した 3 法は、短鎖 PFCAs の生成で改善がなく、操作が煩雑である。採用するメリットは少ないと判断し、この後は、Houtz & Sedlak 法について分解条件等を検討する。

表 1 三種の酸化分解法における N-MeFOSAA の残存率と PFCAs 生成率 (中央値)

	PFOA 生成率 (%)	短鎖 PFCAs 生成率 (%)	N-MeFOSAA 残存率 (%)	全体の回収率 (%)	繰り返し試験数 (n)
Fenton 法	33.1	4.4	62.6	100.3	6
O ₃ 法	0.0	1.7	13.0	14.6	3
O ₃ /Alkali 法	14.3	4.4	4.8	23.0	3

4-2 Houtz & Sedlak 法による N-MeFOSAA の酸化分解における分解時間と共存物質の影響

前駆物質 N-MeFOSAA を純水、下水処理水、および流入下水に添加し、Houtz & Sedlak 法によって酸化分解処理を行った。3 つの媒体は、共存有機物濃度が異なる。また、前駆体を添加しないブランク試験を 3 つの媒体で行い、試験水が元々含有していた PFAA 前駆体も測定した。前駆体添加実験から対応するブランク試験の結果を差し引くことで、添加した前駆体の分解状況を把握できる。結果は以下の通りであった (図 2)。

- ・前駆体を PFCAs に分解するのにかかった時間は、流入下水 > 下水処理水 = 純水であった。このことから、共存物質が前駆体の酸化分解を阻害することが示された。
- ・残存前駆体と生成した PFAAs の総和モル濃度は、分解実験開始後にいったん減少してから、元の濃度に戻った。このことは分解中間産物の形成を示唆する。
- ・分解中間産物の存在時間は、流入下水 > 下水処理水 > 純水の順で長かった。
- ・分解反応時間を長くすると、短鎖の PFCAs が生成する。
- ・N-MeFOSAA に対しては、6 時間の反応時間が、PFOA への変換が完了し、しかも短鎖 PFCAs の生成は少ないため、最適と判断された。
- ・下水処理水には、ΣPFCAs が最初から約 25 pmol 存在し、酸化分解処理後は 160 pmol 程度に増加した。このことから、モル濃度で ΣPFCAs の約 5 倍の前駆体が存在したと考えられる。また、PFOA の生成が多かった。
- ・同様に、流入下水では当初 190 pmol の ΣPFCAs が存在し、分解後には 600 pmol 程度に増加した。生成 PFCAs としては PFHxA が多かった。

以上の結果から、Houtz & Sedlak 法による前駆体総量の定量は、手順として容易な方法であるが、前駆体 N-MeFOSAA を酸化分解する場合に必要な最適反応時間は、共存有機物濃度に依存し、適切な反応時間を選択する必要があることが分かった。また、反応時間が長くなると短鎖 PFCAs が生成した。



図2 純水(左列)、下水処理水(中列) および流入下水(右列)を試験媒体として、前駆体 N-MeFOSAA を無添加系(上段)と添加系(下段)における前駆体と生成物質濃度の分解時間による変化(TOC: 純水 = 0 mg/L、下水処理水 = 6.8 mg/L、流入下水 = 32.0 mg/L) (PFPeA = perfluoropentanoic acid; PFHxA = perfluorohexanoic acid; PFHpA = perfluoroheptanoic acid; PFOA = perfluorooctanoic acid)

4 - 3 Houtz & Sedlak 法によるフルオロテロマー系前駆体の酸化分解における分解時間の影響

もう一つの代表的 PFAA 前駆体として、フルオロテロマー酸の 3,4,4,5,5,6,6,7,7,8,8,9,9,10,10,10-hexadecafluorodec-2-enoate (8:2 FTUCA) とフルオロテロマーアルコールの 1H,1H,2H,2H-Perfluoro-1-decanol (8:2 FTOH) について検討した。8:2 FTOH は揮発性のため、反応ボトルは密閉する必要があることとヘッドスペースは少ないほどよいことを確認した。また、反応後にガラスボトルをメタノールでリンスして回収することで回収率が高まることも確認した。

フルオロテロマー酸とアルコールからは、種々の鎖長の短鎖 PFCAs が生成し、PFOA の生成はわずかであった。また、生成 PFCAs の総モル濃度は、添加前駆体のモル濃度より少なかった(図3)。Houtz & Sedlak 法ではフルオロテロマー系前駆体のアルキル鎖長は保たれなかった。前駆体の分子構造によっては、ペルフルオロアルキル鎖は対応する鎖長の PFCA とはならないことが分かった。前駆体がどのような分子構造であるかが、前もって分かっていることは、一般には想定されないもので、本法による前駆体総量推定は不正確にならざるを得ないことが明らかである。従って、本法を適用する場合は、このような欠点を持つことを理解した上で結果を解釈する必要がある。

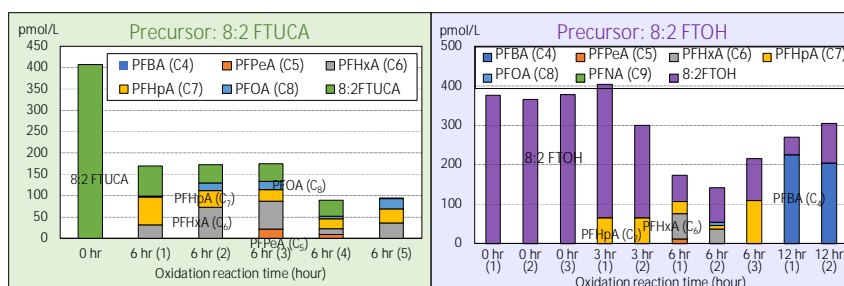


図3 酸化分解処理における 8:2 FTUCA (左) と 8:2 FTOH (右) の分解と PFCAs の生成(媒体: 純水)

4-5 PFAA 前駆物質の正確な定量に向けて

酸化剤を用いた PFAA 前駆物質定量法は、全酸化可前駆物質測定法 (Total Oxidizable Precursor Assay: TOP Assay) と称されることがある。一般的とまでは言えないが、必要性が認識されつつある証拠である。しかし、TOP Assay の具体的な方法は確立されておらず、課題が明らかになった。従って、その限界を理解して使う必要がある。

TOP Assay の代替法はないだろうか。質量スペクトル分析では、ペルフルオロアルキル鎖に対応したフラグメントの検出がある。タンデム型質量分析計であれば、対応するフラグメントの Neutral Loss を拾うことで、探索が可能である。もう一つの可能性としては、ペルフルオロアルキル鎖と特異的に結合する抗体の開発が挙げられる。これらの開発は将来の課題である。

4-6 Houtz & Sedlak 法による下水処理場における PFAA 前駆物質の挙動の解析

酸化分解時間を 6 時間として、Houtz & Sedlak 法を 3 カ所の下水処理場で採取した試料に適用し、前駆物質の挙動として何が明らかにできるかを検討する。調査対象としたのは、横浜市内の 3 箇所の下水処理場 (STP-T, S, K) である。流入下水と二次処理水 (以上、24 時間コンポジット) および余剰汚泥、汚泥濃縮槽の上澄水、三次処理水 (スポット試料) を採取した。

3 つの下水処理場における PFAAs と PFAA 前駆体の収支を図 4 に示す。PFAAs は重量濃度、PFAA 前駆体は酸化分解して生成した各 PFAA の重量濃度、すなわち PFAA 相当濃度で表記している。下水処理過程を通じて酸化分解処理前の PFAAs の濃度に大きな変化はなかった。このことは、PFAAs が生物処理や三次処理 (オゾンや塩素処理) によっては処理され難いことを示す。これに対し酸化処理後は、下水流入水中 PFAAs (カルボン酸、スルホン酸、リン酸の総和) 総濃度は数倍に増加し、PFAA 前駆体総濃度は PFAAs 総濃度よりもはるかに高いことが示された。すなわち、PFAAs だけでなく前駆体についても注目すべきことが明確となった。二次処理水では流入下水に比べて酸化分解後の PFAAs 総濃度は 70~80% 程度減少していた。しかし、余剰汚泥としての系外への排出は、流入負荷量の 10~20% 程度でしかなく、二次処理による減少の一部しか説明できなかった。このことは、揮発性の PFAA 前駆体が、曝気槽で気相に除去されたことを示唆する。この点は、さらなる検証が必要である。

今回用いた前駆体の酸化分解法では、有機物の共存により前駆体の分解が遅くなること、および分解が長時間になるとアルキル酸の鎖長が短くなることが前節までの検討から明らかになっており、共存有機物の多い汚泥抽出試料においては、前駆体を十分に PFAAs まで分解し得たかについては、さらなる検討が必要である。さらに、酸化分解により鎖長が短鎖になってしまう点から見れば、今回の結果は正確な収支図を描けているとはいえない。しかし、本法により明らかになった部分は多く、不正確さはあっても多くの情報を提供してくれたと評価できる。

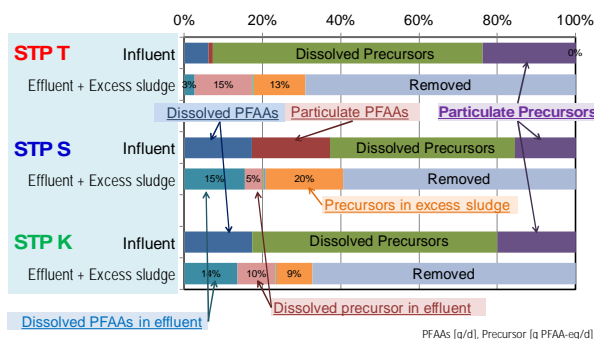


図 4 下水処理場 STP-T, S, K における PFAAs と PFAA 前駆体の収支

4-7 まとめ

酸化剤を用いた PFAA 前駆体総量の定量方法について検討した。一般にペルフルオロアルキル酸 (PFAA) 類を分解できないと、水処理分野では分類される酸化剤でも、ペルフルオロアルキル基の短鎖化が少し進むことが明らかになった。これは、水処理が扱う濃度より低濃度での反応を扱ったことが原因と考えられる。また、酸化分解は、1 試料ずつ個別に行う必要があるため、処理手順が簡単なことが求められる。Houtz & Sedlak 法の手順は簡単であるため、同法について分解条件を検討した。結果として、前駆物質の分子構造と共存有機物によって、分解に必要な最適時間が大きく異なることが明らかとなった。さらに、短鎖化反応が徐々に進行するため、分解時間は短めであるべきことも分かった。よって、種々の前駆体が共存する環境試料に対しては、すべての前駆体に対応する鎖長を持つ PFAA に変換する最適条件を見つけることが困難であった。よって、本測定法は、その欠点を承知した上で利用することが必要である。TOP Assay はすべての前駆体を対象とはできていないことと、炭素鎖長は保たれていない可能性があること、の 2 点を認識しておくべきである。その上で、採用した酸化条件で分解できた前駆体については、それを可視化することができる。そして、可視化できた部分については、多くの情報を提供してくれる。本研究で報告した 3 つの下水処理場における応用例においては、TOP Assay はそれを行わなければ見えなかった活性汚泥曝気槽での前駆体の消失と言う事実を提示してくれた。

<引用文献>

- [1] R. C. Buck et al.: *Integrated Environmental Assessment & Management* 7, 513-541 (2011). [2] J. P. Giesy, K. Kannan: *Environ. Sci. Technol.* 35, 1339-1342 (2001). [3] K. Kannan et al.: *Environ. Sci. Technol.* 35, 1593-1598 (2001). [4] G. L. Kennedy et al.: *Crit. Rev. Toxicol.* 34, 351-384 (2004). [5] J. C. Deon & S. A. Mabury: *Environ Health Perspectives* 119, 344-350 (2011). [6] T. Ruan et al.: *Environ. Sci. Technol.* 49, 6519-6527 (2015). [7] F. Heydebreck et al.: *Environ. Sci. Technol.* 49, 8386-8395 (2015). [8] J. P. Benskin, et al.: *Environ. Sci. Technol.* 46, 6505-6514 (2012). [9] E. F. Houtz & D. L. Sedlak: *Environ. Sci. Technol.* 46, 9342-9349 (2012). [10] F. Ye et al.: *Water Research* 67, 77-85 (2014). [11] 根岸, 徳村, 益永: 第 24 回環境化学討論会 p.115 (2015). [12] Taniyasu, S., et al.: *J. Chromatogr. A* 1093, 89-97 (2005).

5. 主な発表論文等

[雑誌論文] (計 3 件)

Md. Habibullah-Al-Mamun, Md. Kawser Ahmedc, Mohammad Raknuzzaman, Md. Saiful Islam, Mir Mohammad Ali, Masahiro Tokumura, Shigeki Masunaga: Occurrence and assessment of perfluoroalkyl acids (PFAAs) in commonly consumed seafood from the coastal area of Bangladesh, *Marine Pollution Bulletin*, 124[2] 775-785 (2017/11/30). 査読有 <https://doi.org/10.1016/j.marpolbul.2017.02.053>

Yasuyuki Zushi, Atsushi Yamamoto, Kiyotaka Tsunemi, Shigeki Masunaga: Revaluation of stockpile amount of PFOS containing aqueous film-forming foam in Japan: gaps and pitfalls in the stockpile survey, *Environmental Science and Pollution Research*, 24[7] 6736-6745 (2017/3) 査読有 <http://dx.doi.org/10.1007/s11356-017-8374-1>; doi:10.1007/s11356-017-8374-1

David K. Essumang, Albert Eshun, Jonathan N. Hogarh, John K. Bentum, Joseph K. Adjei, Junya Negishi, Shihori Nakamichi, Md Habibullah-Al-Mamun, Shigeki Masunaga: Perfluoroalkyl acids (PFAAs) in the Pra and Kakum River basins and associated tap water in Ghana, *Science of The Total Environment*, 576, 729-735 (2017/2/1). 査読有 <http://dx.doi.org/10.1016/j.scitotenv.2016.11.035>

[学会発表] (計 9 件)

Shigeki MASUNAGA, Sho KITAGUCHI: Effect of Head Space and Reaction Time on the Quantification of Total Perfluoroalkyl Acid Precursors by Potassium Persulfate - Fluorotelomer Alcohol, SETAC North America 39th Annual Meeting (2018.11.4-8, Sacramento, CA, USA).

S. Masunaga, R. Fujiwara, S. Nakamichi: Effect of oxidation time on the quantification of total perfluoroalkyl acid precursors by potassium persulfate - hydroxyl radical method, Society of Environmental Toxicology and Chemistry North America 38th Annual Meeting (SETAC 2017) (12-16 November 2017; Minneapolis, Minnesota, USA).

S. Masunaga, F. Ye, J. Negishi, M. Tokumura: Behaviors of perfluoroalkyl acids and their precursors in some sewage treatment plants, Society of Environmental Toxicology and Chemistry North America 38th Annual Meeting (SETAC 2017) (12-16 November 2017; Minneapolis, Minnesota, USA).

Shigeki Masunaga, Ye Feng, and Masahiro Tokumura: Mass balance of perfluoroalkyl acids and their precursors in sewage treatment plants, The 3rd International Conference on Environmental Pollution, Restoration, and Management, PDF Abstract, p. 49 (2017.3.6-10; Quy Nhon, Vietnam).

YE Feng, 徳村雅弘, 益永茂樹: 下水処理場におけるペルフルオロアルキル酸類とそれらの前駆体の挙動、第 26 回環境化学討論会 P-039 (2017/6/7-9; 静岡県「グランシップ」)。

M Habibullah-Al-Mamun and Shigeki Masunaga: Occurrence of perfluoroalkyl acids (PFAAs) in surface water of a tropical coastal area (Bay of Bengal coast, Bangladesh), Water and Environment Technology Conference 2016 (WET2016) p. 35 (2016.8.27-28; Chuo University, Tokyo).

藤原理沙、中道しほり、北口翔、益永茂樹: 過硫酸カリウム - 水酸化ラジカル法を用いたペルフルオロアルキル酸類前駆体総量定量法における酸化分解時間の検討、第 51 回日本水環境学会年会 講演要旨集 p. 687 (2017/3/15-17; 熊本大学 黒髪南キャンパス)。

中道しほり、藤原理沙、北口翔、益永茂樹: ペルフルオロアルキル酸類前駆体総量定量のための酸化分解法の検討、第 51 回日本水環境学会年会 講演要旨集 p. 241 (2017/3/15-17; 熊本大学 黒髪南キャンパス)。

中道しほり、根岸純也、北口翔、徳村雅弘、益永茂樹: ペルフルオロアルキル酸前駆体総量定量法の課題と改善策、第 25 回環境化学討論会 (2016.6.8-10、朱鷺メッセ)。

[図書] (計 2 件)

Bommanna G. Loganathan, Jong Seong Khim, Prasada Rao S. Kodavanti, Shigeki Masunaga: Persistent Organic Chemicals in the Environment: Status and Trends in the Pacific Basin Countries I Contamination Status, ACS Symposium Series Vol. 1243, Oxford University Press (2018)

Shigeki Masunaga and Yasuyuki Zushi: Status and Trends of Perfluoroalkyl Substances in Japan with Special Emphasis on the Tokyo Bay Basin, Chapter 7, pp 157-179, in Persistent Organic Chemicals in the Environment: Status and Trends in the Pacific Basin Countries II Temporal Trends, edited by B. G. Loganathan, J.-S. Khim, P. R. S. Kodavanti, S. Masunaga, ACS Symposium Series Vol. 1244; American Chemical Society: Washington, DC, (Online: 2016.12.7), Print by Oxford University Press (2018).

6 . 研究組織

(1)研究分担者

研究分担者氏名：中井里史

ローマ字氏名：(**NAKAI, Satoshi**)

所属研究機関名：横浜国立大学

部局名：大学院環境情報研究院

職名：教授

研究者番号 (8 桁) : **70217644**

科研費による研究は、研究者の自覚と責任において実施するものです。そのため、研究の実施や研究成果の公表等については、国の要請等に基づくものではなく、その研究成果に関する見解や責任は、研究者個人に帰属されます。