

# 淀川水系でのペルフルオロカルボン酸類汚染における フッ素テロマーアルコール類分解産物の寄与に関する研究

京都大学 高部 祐剛

## 1. はじめに

撥水・撥油性を有する物性により、多様な用途に用いられてきたペルフルオロカルボン酸類(PFCAs)による水環境汚染問題に対する関心が高まっており、特に近年は、PFCAsの代表物質であったペルフルオロオクタン酸(PFOA)の代替品への転換にともない、ペルフルオロヘキサ酸(PFHxA)といったより短鎖のPFCAs汚染が顕存化している(村上ら, 2010)。これらのPFCAs汚染には、PFCAs自体による汚染経路と、フッ素テロマーアルコール類(FTOHs)に代表される前駆体の分解による汚染経路が知られている(Liu et al., 2010; Martin et al., 2005)。また、下水処理施設において、流入水に比して、流出水中PFCAs濃度が増加するとの報告がなされており、この原因として、FTOHsによる寄与が示唆される等(Suwanna, et al., 2008)、前駆体分解によるPFCAs生成に関する研究が近年盛んに行われてきている。さらに、これまでFTOHsの好気条件下での生物分解が広く知られてきたが(Liu et al., 2010; Martin et al., 2005)、近年では、嫌気条件下での生物分解も報告されている(Zhang et al., 2013)。

この処理場を含めた環境中でのFTOHs分解にともなうPFCAs生成メカニズム解明のため、ラットの体内での動態把握(Martin et al., 2005)、活性汚泥を対象とした生物分解実験が試みられてきたが(Wang et al., 2005)、現時点では定性分析に基づくFTOHsの分解経路に関する提案はなされているものの、特にPFCAs生成速度が緩やかであるため、FTOHsの分解にともなうPFCAs生成について、物質収支を踏まえての速度論的解析は未だなされておらず、課題となっている。しかし、下水処理場を含めた環境中でのFTOHs分解にともなうPFCAs生成による汚染実態の把握および生成の抑制を行うためには、この分解メカニズムの定量的な評価が必要不可欠となる。

一方、竹峰(2013)は、2011年に兵庫県内の排水処理場において、生物処理槽へFTOHsが高濃度に流入し、生物処理槽後にPFCAs濃度が急激に上昇していることを報告している。この生物処理槽での汚泥については、FTOHsの高負荷にともない、速やかかつ活発なFTOHs生物分解およびPFCAs生成が期待される。ある種特殊な環境ではあるが、FTOHs分解にともなうPFCAs生成メカニズムに関する知見を得るのに適した汚泥であると考えられる。また、PFCAs汚染の点源となり得る可能性も考えられ、分解特性を踏まえての、PFCAs汚染抑制のための処理場での操作・設計因子の提示も重要となる。

以上の背景から、FTOHsが高濃度に含有される排水処理場における汚泥を用いたFTOHs分解・PFCAs生成メカニズムの解明を目的とした本研究の着想に至った。

## 2. 研究目的

対象とした排水処理場は、窒素除去を目的とした間欠曝気(10時間曝気、2時間曝気なし)を採用している。上述したとおり、FTOHsの生分解については、好気分解に加え、2013年に嫌気条件下での分解も報告されている(Zhang et al., 2013)。

そこで、本研究では、排水処理場での汚泥を用いた回分実験を、好気、無酸素および嫌気条件で

実施し、それぞれでの FTOHs 分解特性および PFCAs 生成特性を把握することを目的とした。

### 3. 実験手法

#### 3-1. PFCAs および FTOHs の前処理方法の検討

本研究では、溶存態および懸濁態試料それぞれに対して、前処理を実施し、FTOHs および PFCAs の測定を行った。

PFCAs の前処理は、Takemine et al. (2013)の手法に準拠して行った。試料量は 10 mL とした。なお、4 鎖から 10 鎖の PFCAs を対象とした。

溶存態については、流速 10 mL/min で固相抽出 (Presep PFC-II: Wako, Japan)を行った。一方、懸濁態については、20 mL のメタノールで抽出後、メタノールを窒素噴きつけにより約 5 mL まで濃縮し、濃縮したメタノールを 100 mL の超純水に溶かした後、固相抽出を行った。固相抽出した PFCAs は、5 mL の 0.1%アンモニア-メタノールで溶出し、窒素噴きつけにより 1.5 mL まで濃縮し、LC/MS/MS (ACQUITY UPLC: Waters, U.S.: XEVO TQ MS: Waters, U.S.)を用いて測定を行った。なお、クリーンアップスパイクとして MPFAC-MXA (Wellington Laboratory, Canada)を、シリンジスパイクとして  $^{13}\text{C}_8$  PFOA (Wellington Laboratory, Canada)をそれぞれ用いた。また、検出下限および定量下限は、最終濃縮液に対して、それぞれ 0.1 ng/mL および 0.3 ng/mL である。

クリーンアップスパイクの回収率が平均値で 89.6%から 125%と良好な値が得られた。

次に、図-1 に FTOHs の前処理方法を示す。溶存態の前処理は、Mahmoud et al. (2009)の手法を参考に行った。対象とした物質は、4:2 FTOH、6:2 FTOH、8:2 FTOH および 10:2 FTOH である。

溶存態試料については、液/液抽出後、カートリッジ (Envi-carb II PSA: Sigma-Aldrich, U.S.)を用いてクリーンアップを行い、溶出後、窒素噴きつけを行った。懸濁態については、メタノールで抽出を行った後、液/液抽出、カートリッジによるクリーンアップおよび窒素噴きつけを順次行った。1.5 mL まで濃縮した試料を、GC/MS (GC6890N: Agilent, U.S./JMS-Q1000GC: JEOL, Japan)に供し、濃度測定を行った。なお、クリーンアップスパイクおよびシリンジスパイクとして、それぞれ MFBET、MFHET、MFOET および MFDET (Wellington, Canada)および 1H,1H-Perfluoro -1- nonanol (Tokyo Kasei, Japan)を用いた。また、検出下限および定量下限は、最終濃縮液に対して、それぞれ 10 ng/mL および 30 ng/mL である。

対象物質の回収率について、実処理場での汚泥サンプルを対象に、前処理前の溶存態および懸濁態試料 (図-1 の D-1 および S-1)に FTOHs 原体をそれぞれ 1000 ng 添加した場合、回収率がそれぞれ 32.9 から 38.4%および 39.5 から 51.6%とやや低い値となった。そこで、前処理フローのどの行程においてロスがあるのかを検証するため、図-1 に示される各行程 (溶存態: D-1 から D-4、懸濁態: S-1 から S-3)において、FTOHs 原体を 1000 ng 添加し、前処理後、濃度測定を行った。なお、脱水以降の作業は、溶存態および懸濁態で同様であるので、溶存態を用いて検討した。また、固相吸着および溶出操作によるロスがないことは別途確認している。

結果を表-1 に示す。固相抽出、溶出を行った試料に添加した場合 (D-4)、80.9 から 90.0%と高い回収率が得られた一方で、その他については、概ね 30~40%となった。このことから、本前処理手法におけるロス、窒素噴きつけによる濃縮操作において生じていると考えられる。なお、液/液抽出に用いる純粋な 1:9=酢酸エチル:tert-ブチルメチルエーテルを用いて、窒素噴きつけによる濃縮操作を行った場合、回収率は 109%であった。このことから、窒素噴きつけによるロスの原因として、溶媒で抽出された汚泥に含有される他の物質との共存が考えられた。

一方で、本手法は、MFBET、MFHET、MFOET および MFDET と、対象物質の  $^{13}\text{C}$  体をクリーンアップスパイクとして用いている。このクリーンアップによる回収率補正を行った場合、図-1 の

D-1 および S-1 での回収率については、6:2FTOH において、溶存態 (n=5) および懸濁態 (n=5) でそれぞれ  $113 \pm 3.2\%$  および  $120\% \pm 6.0\%$  であったことに代表されるように、回収率が 100% 近く、また安定した値が得られた。このことから、窒素噴きつけによるロスはあるものの、本前処理手法は妥当なものであると判断した。

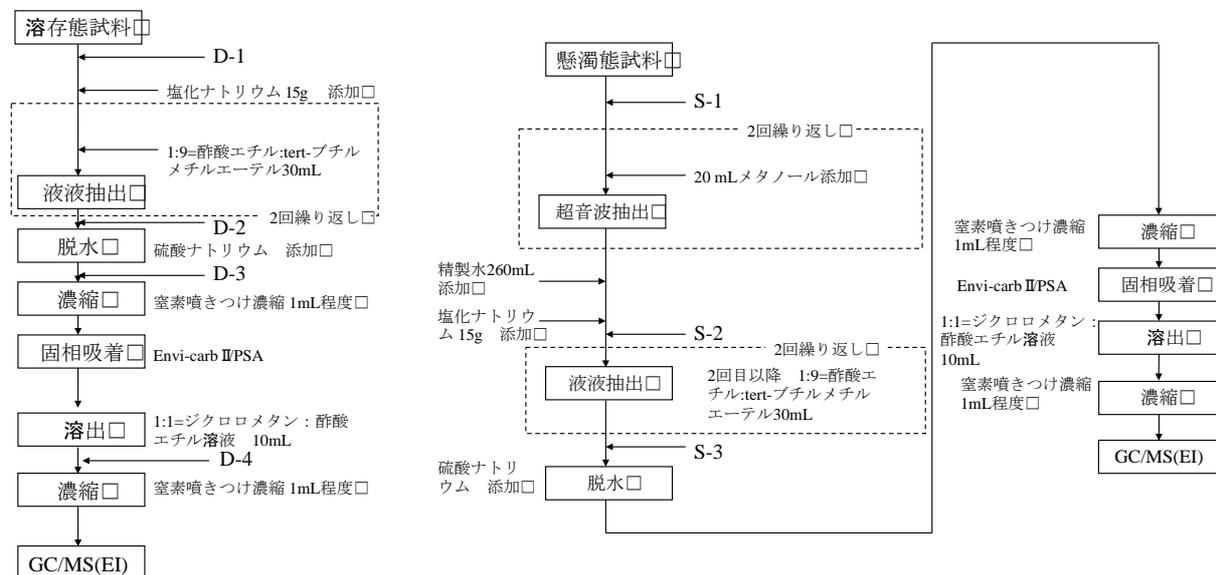


図-1 FTOHs についての前処理手法

表-1 FTOHs の前処理における各行程からの回収率

添加行程	回収率 (%)	添加行程	回収率 (%)
D-1	32.9-38.4	S-1	39.5-51.6
D-2	30.5-34.7	S-2	34.4-41.7
D-3	31.1-33.8	S-3	31.8-40.6
D-4	80.9-90.0		

### 3-2. 排水処理場汚泥を用いた回分実験

対象とした排水処理場は、窒素除去を目的とした間欠曝気 (10 時間曝気、2 時間曝気なし) を採用しており、排水処理フローは、原排水→スクリーン→調整槽→生物処理槽→沈殿槽→放流となっている。なお、竹峰 (2013) は、2011 年に同排水処理場において、生物処理槽前後の PFCAs および FTOHs 濃度を測定しており、生物処理槽前では、FTOHs が 10000 ng/L 程度で含有されていた一方で、生物処理槽後は不検出であった一方で、生物処理槽前後で、PFCAs 濃度の急激な増加が見られ、PFOA が 2000 ng/L 程度で検出されたことを報告している。

本研究では、2013 年 2 月 19 日、9 月 25 日、10 月 17 日および 12 月 4 日、ならびに 2014 年 1 月 10 日および 2 月 17 日に、排水処理場での生物処理槽流入水および生物処理槽汚泥を採取した。サンプルはステンレス管、またはプラスチック製の容器を用いて回収を行った。採取時の流入水および汚泥の温度および pH は、それぞれ  $27.2-30.5^{\circ}\text{C}$  および  $6.72-7.29$ 、ならびに  $24.9-25.8^{\circ}\text{C}$  および  $6.70-7.09$  であった。

回分実験には、図-2 に示すポリプロピレン製のリアクターを用いた。ガラス製の攪拌子を用いて、汚泥を攪拌した。側面に設置したサンプリング口よりポリプロピレン製のシリンジによりサンプル

を回収した。また、後述するように、好気条件下での実験では、上部の空気穴から、空気ポンプを用いて空気を送り込んだ。また、無酸素、嫌気条件下では、高純度窒素ガスを充填したガスパックを空気穴に取り付け、系を密閉した。回分実験は、20°Cの室温下で実施した。

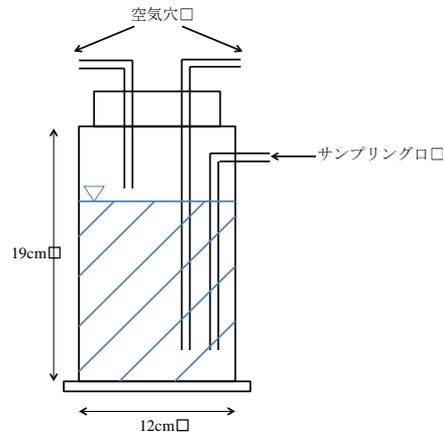


図-2 回分実験用リアクター

活性汚泥での生分解実験を実施するにあたり、以下の基礎的項目を検討した。なお、本研究での回分実験は、これまで多くの研究で対象とされてきた 8:2 FTOH を対象とした。

回分実験の際の溶存態と懸濁態との間での 8:2 FTOH の分配を調べるため、50 mL 容のプラスチック製バイアルに 120°C、20 分の条件下でオートクレーブした汚泥を 50 mL 入れ、8:2 FTOH を 100 µg 添加し、1 時間攪拌後、溶存態および汚泥に分離し、それぞれの濃度を測定した。

次に、FTOHs は比較的気散しやすい物質であるため (Schenker et al., 2008)、特に好気状態を維持するための曝気による気散が懸念される。そこで、実験開始時に 8:2 FTOH を添加する際は、曝気をとめ、スターラーでの攪拌により、添加した 8:2 FTOH を汚泥に吸着させた。そして、10 分後に曝気を再開した。この手法の効果を検討するため、オートクレーブした汚泥を用いて、1 時間の回分実験を実施し、30 分および 1 時間後にサンプルを回収し、8:2 FTOH 濃度を測定した。

さらに、長時間の回分実験実施により、対象物質のリアクター壁面への吸着等によるロスが無いことを確認するため、オートクレーブした汚泥を用いて、回分実験を行い、開始直後と、終了時の 8:2 FTOHs および PFCAs 濃度の比較を行った。

汚泥による 8:2 FTOH 生分解実験を始めるにあたり、生物活性維持のために必要となる基質を作成した。2014 年 1 月 10 日に採取し、GF/B (Whatman)ろ過後の生物処理槽流入水 (54.9 mgC/L)を、60°Cの条件下でロータリーエバポレーターを用いて、約 15 L の流入水を 1.5 L まで濃縮した。炭素の回収率は 42%程度であった。そして、硫酸アンモニウムおよびリン酸カリウムを添加し、栄養塩を調整した (濃縮液)。調整後の炭素、窒素、リン濃度は、それぞれ、231 mgC/L、62.5 mgN-NH<sub>4</sub><sup>+</sup>/L および 13 mgP/L である。また、無酸素条件下のリアクターに投入する濃縮液には、430 mgN-NO<sub>3</sub><sup>-</sup>/L となるように、硝酸ナトリウムを添加した。さらに、0.1 M の塩酸を用いて、pH7 に調整した本濃縮液を、生分解実験のリアクターでの実験開始時に添加した。

生分解実験は、2014 年 2 月 26 日に採取した汚泥を用いて行った。リアクターを 3 系列用意し、好気条件、無酸素条件および嫌気条件下で実験を行った。実験開始 6 時間前に、汚泥 1.425 L および 2014 年 1 月 10 日に採取し、GF/B でろ過した生物処理槽への流入水 0.1 L を加え、各処理条件に馴染ませた。なお、無酸素条件を模したリアクターについては、20 mgN-NO<sub>3</sub><sup>-</sup>/L となるよう、硝酸ナトリウムを添加した。実験開始直前に各リアクターから 100 mL の汚泥を引きぬき、0 時間のサン

プルとした。

実験開始と同時に、それぞれのリアクターに、8:2 FTOH をメタノールに溶かした 1 g/L の溶液を 50 µg (50 µg-8:2 FTOH)、ならびに基質を含む濃縮液 75 mL を添加した。好気条件のリアクターでは、10 分曝気を停止した後、再開し、無酸素および嫌気条件のリアクターでは、8:2 FTOH を添加した 10 分後に高純度窒素を吹き込み、リアクターのヘッドスペース中に含まれる空気を追い出した。

サンプリングについては、1、3、6、12、24 時間後にそれぞれ 100 mL ずつ引き抜いた。40 mL を FTOHs 測定に、10 mL を PFCAs 測定に、残りの 50 mL を SS、VSS、DOC および窒素類の測定に用いた。また、0.1 M の塩酸または水酸化ナトリウムを用いて、12 時間おきに各リアクターの pH を 7 に調整した。

FTOHs および PFCAs 測定用試料は、3000 rpm で 10 分間遠心分離を行い、残渣を懸濁態試料、上澄みを GF/B でろ過したものを溶存態試料とした。

SS および VSS は、Standard method に従い、それぞれ 105°C、2 時間および 550°C、30 分で測定を行った (Standard method, 2005)。DOC は、TOC-L (Shimadzu, Japan) を用いて測定した。また、NH<sub>4</sub><sup>+</sup> ならびに NO<sub>2</sub> および NO<sub>3</sub> は、それぞれ AA-II auto-analyzer (Bran+Luebbe, Germany) および AA-III auto-analyzer (Bran+Luebbe, Germany) で測定した。さらに、pH は、D-52 (Horiba, Japan) で、DO および ORP は D-55 (Horiba, Japan) で測定した。

## 4. 結果および考察

### 4-1. 回分実験での基礎的実験結果

溶存態と懸濁態との間での 8:2 FTOH の分配把握のための実験結果を図-3 に示す。本実験での SS および VSS はそれぞれ 11.4 および 9.6 g/L であり、pH は 7.48 であった。

溶存態中濃度が 35000 ng/L であったのに対して、懸濁態中濃度が 1900000 ng/L と 54 倍高くなった。このことから、汚泥においては、8:2 FTOH は、ほぼ懸濁態に存在することが明らかとなり、以降の実験では、懸濁態のみを対象に議論を行うこととする。

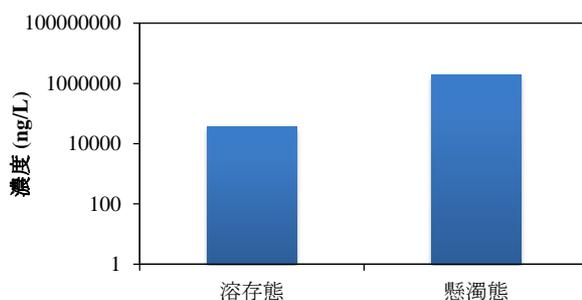


図-3 分配実験における溶存態および懸濁態中 8:2 FTOH 濃度

また、過去の研究において、8:2 FTOH の logK<sub>oc</sub> が 13000 であることが報告されている (Stock et al., 2010)。本研究では、単位 VSS 中 8:2 FTOH 濃度 (ng/kg-VSS) は、溶存態中 8:2 FTOH 濃度 (ng/L) に比して、5600 倍となり、同程度の値が得られた。

次に、曝気による 8:2 FTOH の揮散への影響について調べた実験結果を図-4 に示す。なお、0 時間での濃度は、添加量から算出した理論値である。図より、汚泥に吸着した 8:2 FTOH は曝気によって揮散しないことが明らかとなった。

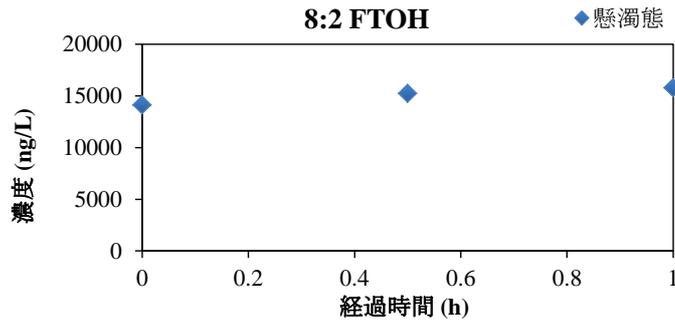


図-4 曝気による 8:2 FTOH 濃度変化

不活化汚泥を用いた実験において、実験開始直後と実験開始後 1 日の 8:2 FTOHs 濃度および 3 日後の PFCAs 濃度をそれぞれ図-5 および図-6 に示す。なお、それぞれの実験での SS、VSS および pH はそれぞれ 9.8、8.6 g/L および 7.73、ならびに 7.8、6.8 g/L および 6.98 であった。

図より、各対象物質について変化がなく、本実験系では、対象物質の揮散およびリアクター壁面への吸着はないことが明らかとなった。

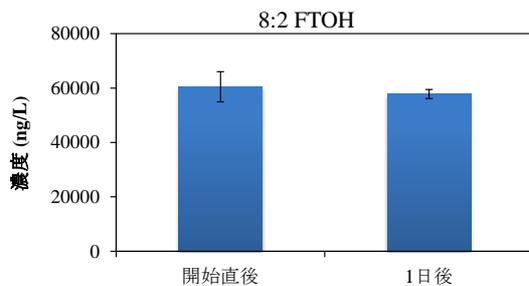


図-5 不活化汚泥を用いた実験系での実験開始時および終了時の 8:2 FTOH 濃度

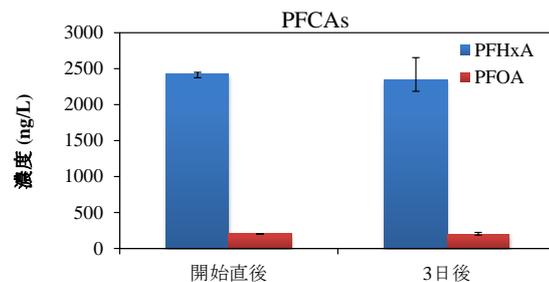


図-6 不活化汚泥を用いた実験系での実験開始時および終了時の PFCAs 濃度

#### 4-2. 生分解実験

各リアクターでの DO 濃度は、好気、嫌気および無酸素条件下でそれぞれ、5.6 から 11.3 mgO<sub>2</sub>/L、0 から 0.1 mgO<sub>2</sub>/L および 0 から 0.6 mgO<sub>2</sub>/L であった。また、ORP については、それぞれ 220 から 260 mV、-40 から -30 mV および -90 から 50 mV であった。

図-7 に各リアクターでの各態窒素濃度を、図-8 に各リアクターでの DOC 濃度を、ならびに図-9 に SS および VSS 濃度を示す。

好気条件のリアクターでは、実験開始直後の濃縮液投入により、理論的に 3.9 mgN-NH<sub>4</sub><sup>+</sup>/L となったアンモニアが、1 時間後に 1.3 mgN-NH<sub>4</sub><sup>+</sup>/L、3 時間後に 0.49 mgN-NH<sub>4</sub><sup>+</sup>/L と減少した。また、亜硝酸はほぼ検出されなかったが、硝酸が時間経過とともに上昇した。このことから、好気条件下における硝化反応が見られた。一方、pH については、7.32 から 7.45 となった。また、SS および VSS 濃度は、平均でそれぞれ 7.8 および 7.0 g/L であった。

嫌気条件のリアクターでは、実験開始後から理論値 (5.2 mgN-NH<sub>4</sub><sup>+</sup>/L) に近いアンモニア濃度が各時間で検出され、亜硝酸、硝酸はほとんど検出されなかった。また、pH は、6.99 から 7.15 と中性付近で安定していた。また、SS および VSS 濃度は、平均でそれぞれ 8.2 および 7.4 g/L であった。

無酸素条件でのリアクターでは、実験開始直後の濃縮液投入により、理論的に 24 mgN-NO<sub>3</sub><sup>-</sup>/L となった硝酸が、1 時間後には 11 mgN-NO<sub>3</sub><sup>-</sup>/L、3 時間後には 8.4 mgN-NO<sub>3</sub><sup>-</sup>/L と減少しており、脱窒が

見られた。一方で、12 時間および 24 時間では、硝酸が検出されず、リアクター運転の後半では、嫌気条件になっていた可能性が考えられる。pH は 7.36 から 7.50 であったが、これは、脱窒にともなう pH 上昇によるものと考えられる。また、SS および VSS 濃度は、平均でそれぞれ 8.4 および 7.1 g/L であった。

次に、DOC 濃度については、好気条件のリアクターについて、濃縮液投入により、理論的に 18 mgC/L となった DOC が、1 時間後には 12.6 mgC/L、3 時間後には 6.67 mgC/L と顕著な現象が見られた。一方で、嫌気条件では、1 時間後で 27.0 mgC/L であったのに対して、24 時間後では 23.8 mgC/L と 12% 程度の減少が見られた。また、無酸素条件では、初期 DOC 濃度が他の実験系に比べ高かったが、時間経過とともに減少した。

以上の水質項目により、無酸素条件での一部で嫌気条件になった可能性が考えられたものの、それぞれ期待していた条件に設定できたと考えられる。

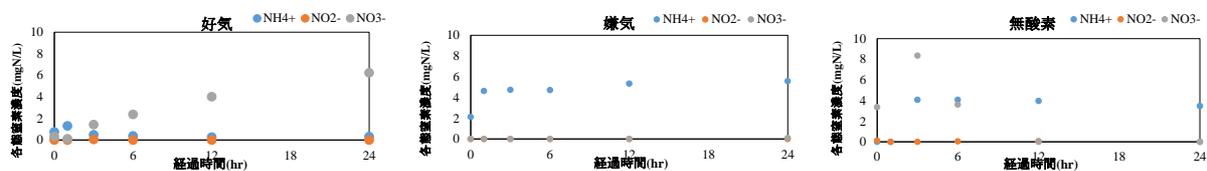


図-7 各リアクターにおける各態窒素濃度

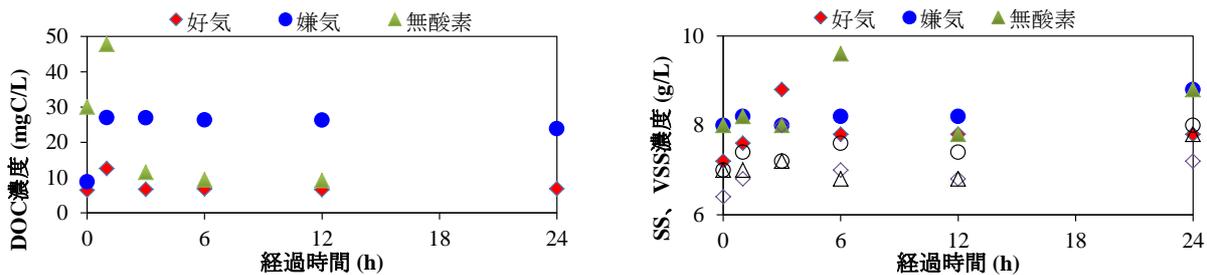


図-8 各リアクターでの DOC 濃度

図-9 各リアクターでの SS および VSS (白抜) 濃度

次に、各リアクターでの 8:2 FTOH 濃度変化を図-10 に示す。

図より、好気、無酸素、嫌気のそれぞれの条件において、8:2 FTOH が分解していることが理解できる。これまで、好気条件および嫌気条件での 8:2 FTOH は報告されているが (Liu et al., 2010; Wang et al., 2005; Zhang et al., 2013)、無酸素条件での 8:2 FTOH の分解を報告した例は少ないと考えられる。

次に、生物分解を一次反応と見なし、単位 SS 当たりの 8:2 FTOH 分解速度定数を算出した。結果として、好気、無酸素、嫌気での分解速度定数は、それぞれ 0.113、0.0292 および 0.00497 L/g-SS/h となった。このことから、各条件下で 8:2 FTOH の分解が見られた一方で、好気条件での分解速度定数は、嫌気条件に比べ、25 倍大きい値となった。好気、無酸素、嫌気という各条件下での 8:2 FTOH の分解速度定数を比較したものは、筆者が知る限り本研究が初めてである。

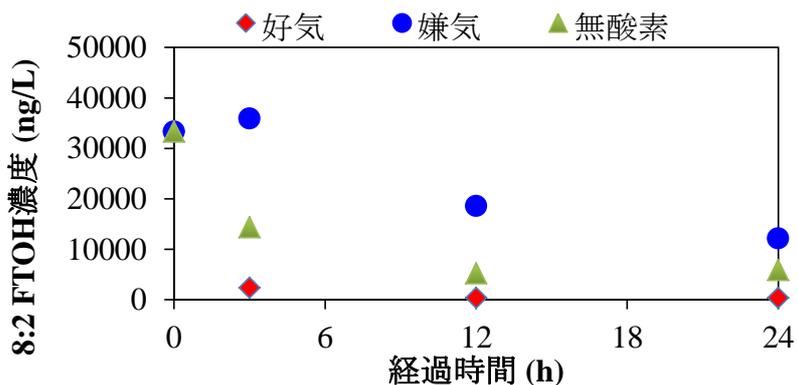


図-10 各リアクターでの8:2 FTOH 濃度変化

最後に、各リアクターでの PFCAs 濃度変化について、PFHxA および PFOA を例にとり図-11 に示す。

PFOA について、時間経過とともに、好気条件下での濃度が上昇しているのに対して、無酸素および嫌気条件では、顕著な変化が見られなかった。また、PFHpA および PFNA についても、好気条件下でのみ、濃度の上昇が確認された。なお、本実験で濃縮液として用いた 1 月 10 日に採取した生物処理槽流入水に対して、8:2 FTOH を添加せず汚泥と接触させた結果、PFCAs の上昇が見られなかったことを各条件について、確認している。

一方、その他の PFCAs については、PFHxA に示されるように、各リアクターにおいて、濃度に変化が見られなかった。

以上より、好気条件下において、8:2 FTOH が分解され、PFHpA、PFOA および PFNA が増加することが明らかとなった。Martin et al. (2010)は、8:2 FTOH の生物分解経路を提案しており、PFOA および PFNA が生成する可能性を提示している。本研究においては、これらの物質に加えて、PFHpA の増加も確認した。また、好気条件での 8:2 FTOH が速やかに分解され、サンプリングによって 8:2 FTOHs が系外に移動しなかったと考えれば、24 時間の生物反応によって、投入した 8:2 FTOH のモル数に比して、10.8%の PFCAs が生成した。

一方、無酸素および嫌気条件では、PFCAs の生成が見られなかったが、これは、好気条件に比して、8:2 FTOHs の分解速度が緩やかであったことが一因である可能性が考えられる。

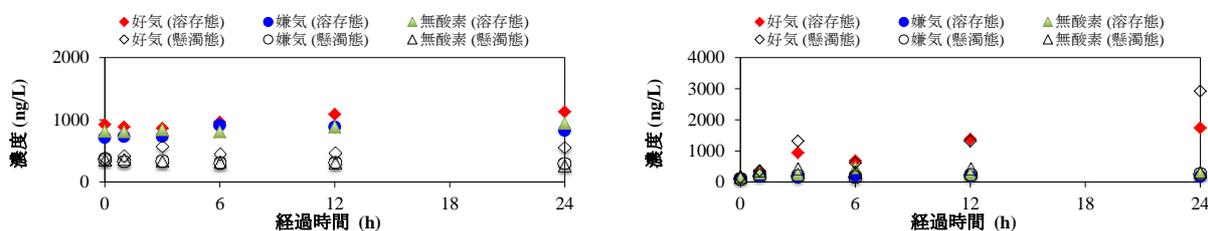


図-11 各リアクターでの PFHxA (左図) および PFOA (右図) の濃度変化

## 5. まとめ

本研究では、処理場における FTOHs の生分解および PFCA 生成メカニズムを解明するために、FTOHs が高濃度に流入していることが報告されている排水処理場での汚泥を用いた回分実験を、好気、無酸素および嫌気条件で実施し、それぞれでの FTOHs 分解特性および PFCAs 生成特性の把握を試みた。得られた結果を以下に示す。

- (1) 好気、無酸素および嫌気条件を模した回分実験系それぞれで 8:2 FTOH の分解が確認された。
- (2) 好気、無酸素および嫌気条件での 8:2 FTOH 分解は、好気条件で最も速く、嫌気条件で最も遅かった。単位 SS 当たりの分解速度定数を算出した結果、それぞれ 0.113、0.0292 および 0.00497 L/g-SS/h となり、好気条件での分解速度定数は、嫌気条件での値の 25 倍となった。
- (3) 好気条件では、8:2 FTOH の分解にともない、PFHpA、PFOA および PFNA の増加が見られ、24 時間の生物反応によって、投入した 8:2 FTOH のモル数に比して、10.8%の PFCAs が生成した。
- (4) 無酸素および嫌気条件では、24 時間の生物反応では、PFCAs の増加が確認されなかった。

以上の結果から、排水処理場における FTOHs 分解に伴う PFCAs 生成が確認され、生物処理槽での FTOHs 分解および処理水放流にともなう、環境中への PFCAs 負荷における FTOHs 由来の PFCAs の寄与が示された。

## 謝辞

本研究を遂行するにあたりまして、京都大学の西村文武准教授、財団法人 ひょうご環境創造協会 兵庫県環境研究センターの竹峰秀祐様、山本勝也様および松村千里様、ならびに京都市上下水道局の方々に多大なるご協力を賜りました。ここに感謝の意を表します。

## 参考文献

- J. Liu, N. Wang, B. Szostek, R.C. Buck, P.K. Panciroli, P.W. Folsom, L.M. Sulecki, C.A. Bellin, 6-2 Fluorotelomer alcohol aerobic biodegradation in soil and mixed bacterial culture, *Chemosphere*, Vol.78, pp.437-444, 2010.
- J.W. Martin, K. Chan, S.A. Mubury, P.J. O'Brien: Bioactivation of fluorotelomer alcohols in isolated rat hepatocytes, *Chemico-Biological Interactions*, Vol.177, pp.196-203, 2005.
- M.A.M. Muhamoud, A. Karrman, S. Oono, K.H. Harada, A. Koizumi: Polyfluorinated telomers in precipitation and surface water in an urban area of Japan, *Chemosphere*, Vol.74, pp.467-472, 2009.
- U. Schenker, M. Scheringer, M. MacLeod, J.W. Martin, I.T. Cousins, K. Hungerbuhler: Contribution of volatile precursor substances to the flux of perfluorooctanoate to the arctic, *Environmental Science and Technology*, Vol.42 (10), pp.3710-3716, 2008.
- Standard methods for the examination of water and wastewater, APHA-AWWA-WPCF, 2005.
- S. Takemine, C. Matsumura, K. Yamamoto, M. Suzuki, M. Tsurukawa, H. Imaishi, T. Nakano, A. Kondo: Discharge of perfluorinated compounds from rivers and their influence on the coastal seas of Hyogo prefecture, Japan, *Environmental Pollution*, Vol.184, pp.397-404, 2014.
- N.L. Stock, D.C.G. Muir, S. Mabury: Perfluoroalkyl compounds, *Persistent organic pollutants*, 2010.

K.B. Suwanna, N. Boontanon, C. Kunacheva, C. Musirat, S. Fujii, B.R. Shivakoti, S. Tanaka: Perfluorinated compounds (PFCs) in industrial discharges and central wastewater treatment plants, Section 2. Environmental protection/treatment technology, EPT014, 28-29. 2008.

N. Wang, B. Szostek, R.C. Buck, P.W. Folsom, L.M. Sulecki, V. Capka, W.R. Berti, J.T. Gannon: Fluorotelomer alcohol biodegradation-direct evidence that perfluorinated carbon chains breakdown, Vol.39, pp.7516-7528, 2005.

S. Zhang, B. Szostek, P.K. McCausland, B.W. Wolstenholme, X.Lu, N. Wang, R.C. Buck, 6:2 and 8:2 Fluorotelomer alcohol anaerobic biotransformation in digester sludge from a WWTP under methanogenic conditions, Environmental Science and Technology, Vol.47, pp.4227-4235, 2013.

竹峰秀祐: 有機フッ素化合物の環境実態および排出源の解明と環境挙動シミュレーションを応用した将来濃度予測に関する研究、平成 24 年度水質保全研究助成 成果報告書、2013.

村上道夫、滝沢智: フッ素系界面活性剤の水環境汚染の現況と今後の展望、水環境学会誌、Vol.33 (8)、pp.103-114、2010.