

【課題番号】5-2101 【体系的番号】JPMEERF20215001

【研究課題】

土壌・水系における有機フッ素化合物類に関する挙動予測手法と効率的除去技術の開発

【研究代表名】 田中周平

【研究代表機関名】 国立大学法人京都大学

【研究実施期間】 令和3(2021)年度 ～ 令和5(2023)年度

【研究実施体制】



研究開発要素	主要機関	関連調査および試験
土壌・公共用水域・地下水等の環境中における物質移動評価パラメータの取得	沖縄県企業局 小島健司 (サブテーマ1)	ボーリング調査 深度別PFASs含有量分析 PFASs溶出試験
	京都大学 勝見武 (サブテーマ2)	回分式吸着試験 カラム通水試験
得られたパラメータをもとに土壌・地下水・公共用水域等の環境中の物質移動予測を実施	産業技術総合研究所 保高徹生 (サブテーマ3)	物質移動予測 物質移動評価モデル リスク評価
PFOS, PFOA等の有機フッ素化合物類に関する調査方法や除去技術等の対策方法に関する基礎的な検討と技術開発の実施	京都大学 田中周平 (サブテーマ4)	回分式溶出試験 カラム通液試験 PFASs回収技術開発
	産業技術総合研究所 (サブテーマ3)	吸着材の開発 対策の費用対リスク削減効果の評価
	全体	リスク管理に資するガイドライン作成

1. はじめに



2

2010年まで PFOS含有
2010年以降 PFOS前駆体含有

2008年まで

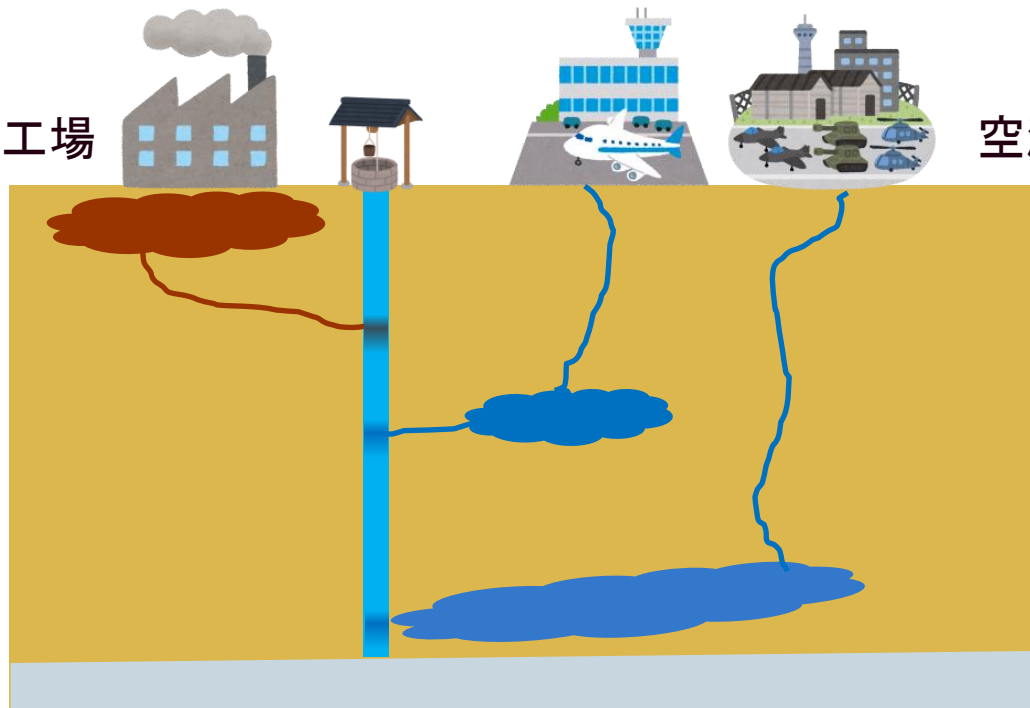
PFOA製造

フッ素化学工場

大阪
PFOA系汚染

沖縄
PFOS系汚染

空港、軍事施設



深さは?

鉛直分布は?

水平分布は?

土壤がPFASsに汚染されると、地下水汚染は
100年続く可能性がある。

2020年 PFOS検出

2020年 PFOA検出

Senevirathna, L. & Mahinroosta, R.(2020) Remediation of soil and groundwater contaminated with per- and poly-fluoroalkyl substances (PFASs). *Soil and Groundwater Remediation Technologies-A Practical Guide*.

中央環境審議会(2020年5月)

水質汚濁に係る人の健康の保護に関する環境基準等の見直しについて

PFOS, PFOA 要調査項目 ➡ 要監視項目 指針値 50 ng/L

水系だけでなく土壌系を含めた包括的なリスク評価

効果的かつ効率的な土壌汚染調査や分析, 対策に資する知見の蓄積

主目的 PFASsの包括的かつ体系的な土壌地下水汚染のリスク評価・管理方法の構築

1. 地下水汚染リスクを評価可能な溶出試験法の検討
2. 土壌・地下水中での挙動パラメータの取得
3. 物質移動予測に基づく環境動態評価およびリスク評価
4. 対策技術の基礎的検討

将来的な調査法

地下水汚染の到達距離の評価 対策方法のガイドライン作成

➡ 土壌・地下水中のPFOS、PFOAの総合的なリスク管理を立案

3. 研究目標および研究計画

④京都大学

環境調和型
産業論分野



①沖縄県

企業局

効率的除去技術の開発

酸化可能前駆体分析

総合的な
リスク管理方法の構築

土壌中の分布特性の把握

溶出試験法の確立

1. 基準値と比較するための**溶出試験法**を提案

2. **土壌汚染対策法**における地下水汚染の
到達距離に必要な知見を収集

3. **土壌汚染対策法の措置対策ガイドライン**へ掲載可能、
土壌・地下水汚染に適用可能な対策技術を開発

4. 実汚染サイトのボーリング等のデータに基づき、
具体的な調査方法および土壌浄化方法を提案

5. 汚染土壌の**効率的除去技術**を提案と
費用対リスク低減効果の評価

③産業技術 総合研究所



将来的な調査法、地下水汚染の到達距離の評価、
対策方法に関する**ガイドライン作成に寄与**

②京都大学

社会基盤親和技
術論分野

土壌・公共用水域・地下水等の
環境中における物質移動評価
のパラメータの取得



シミュレーションによるPFOS, PFOA等の
物質移動予測とリスク管理法の高度化

4.1. 土壌中の有機フッ素化合物類の分布特性の把握と 溶出試験法の確立

5



- ・実汚染サイトでの土壌中のPFASsの**深度方向プロファイルデータ**の取得
- ・汚染土壌中のPFOS, PFOA含有量と各種溶出試験法による溶出率を評価
- ・PFOS, PFOAの地下水汚染リスクの評価に資する溶出試験法の提案



沖縄

大阪

合計5本(37 m, 16 m, 49 m, 10 m, 10 m)

1. 沖縄嘉手納周辺, 大阪摂津市周辺の実汚染サイトのPFASsの鉛直濃度分布を把握

➡ **物質ごとの浸透特性**を把握(鉛直, 水平方向) 地下水との関係も解析

2. PFASs実汚染土壌からのバッチ溶出試験における**溶出特性**を把握

目標達成!!

全**98**試料からのPFASs溶出量を把握

目標達成!!

3. 土壌汚染対策法にPFOS, PFOAが導入された場合に必要となる**溶出試験法案**を提示

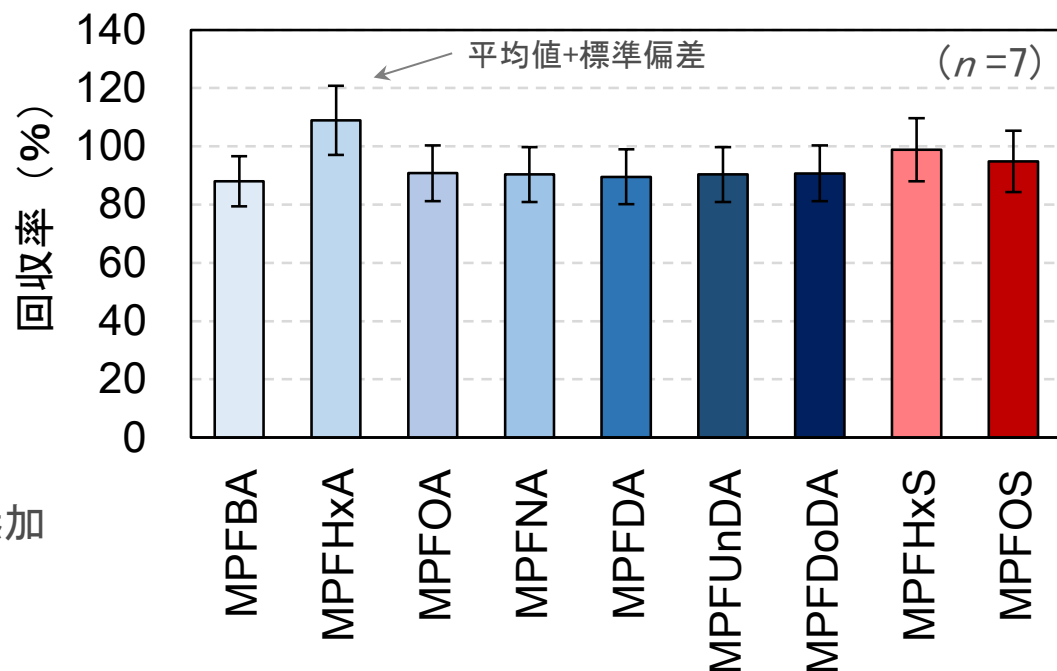
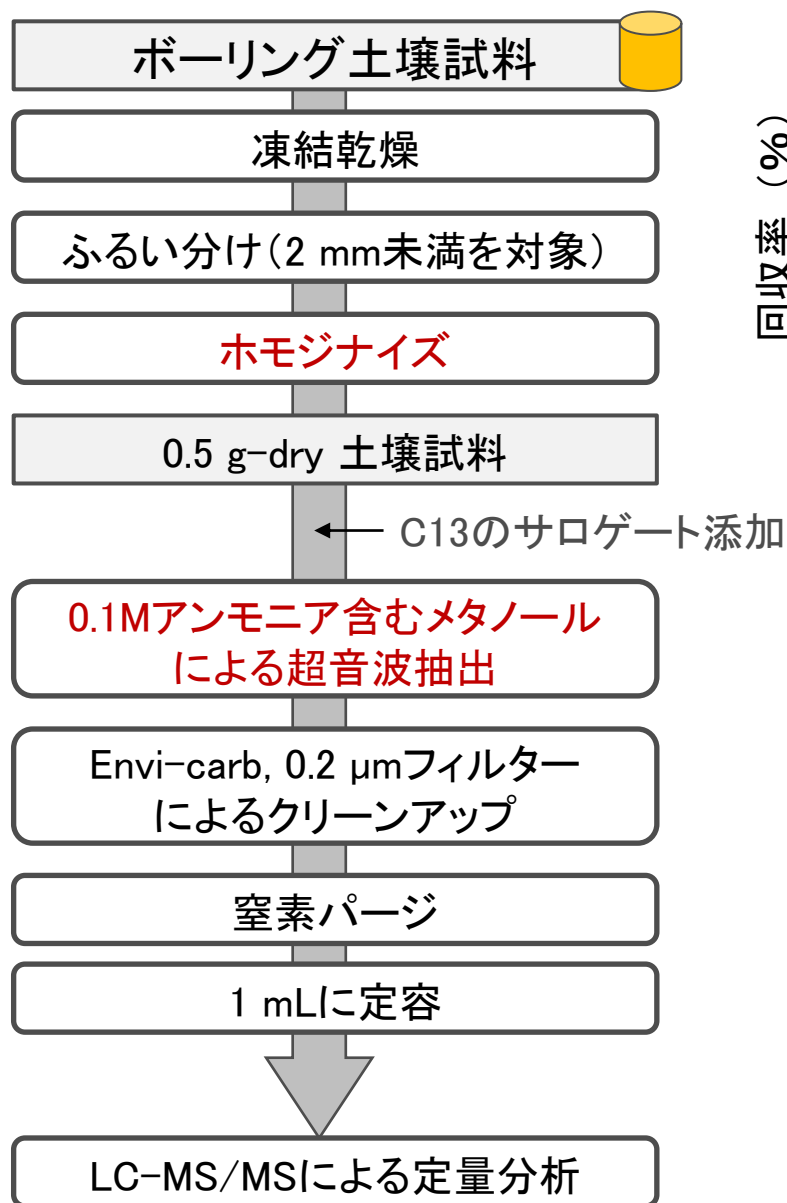
目標達成!!

	2021	2022	2023
ボーリング調査	沖縄嘉手納屋良地内	沖縄大工廻地内 大阪府摂津市内	沖縄市屋良地内 大阪府摂津市内
溶出試験法の検討	環境庁告示46号試験 含有量分析法*	環境庁告示46号試験 20段階の溶媒抽出法*	環境庁告示46号試験 80%アセトニトリル抽出*

* サブテーマ4と連携

5.1. 土壌中のPFASs含有量試験法の開発

6



回収率 88～109%

分析対象

13種類ペルフルオロアルキルカルボン酸類(PFCAs)

8種類ペルフルオロアルキルスルホン酸類(PFSA)

14種類消火剤系(AFFF系)の前駆体(FASAs, FTSsなど)

検出下限: 0.02～0.20 ng/g-dry

定量下限: 0.06～0.60 ng/g-dry

→ 土壌中のPFASs含有量試験法を提案

「Higgins and Luthy, 2006」を改良

環境政策に貢献

5.1. PFASs鉛直分布溶出濃度と含有量との関係

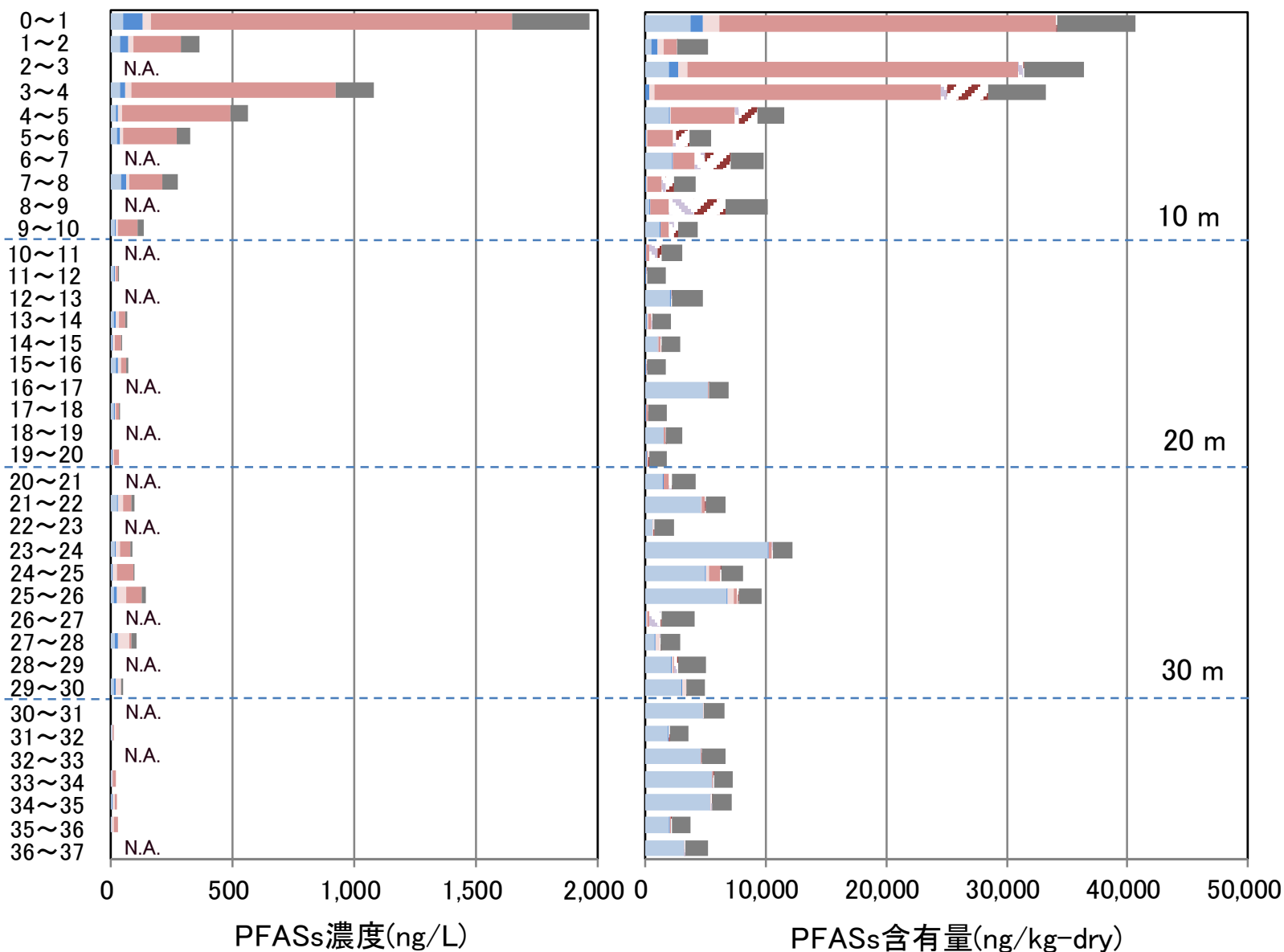
沖縄嘉手納

地表からの
深さ(m)

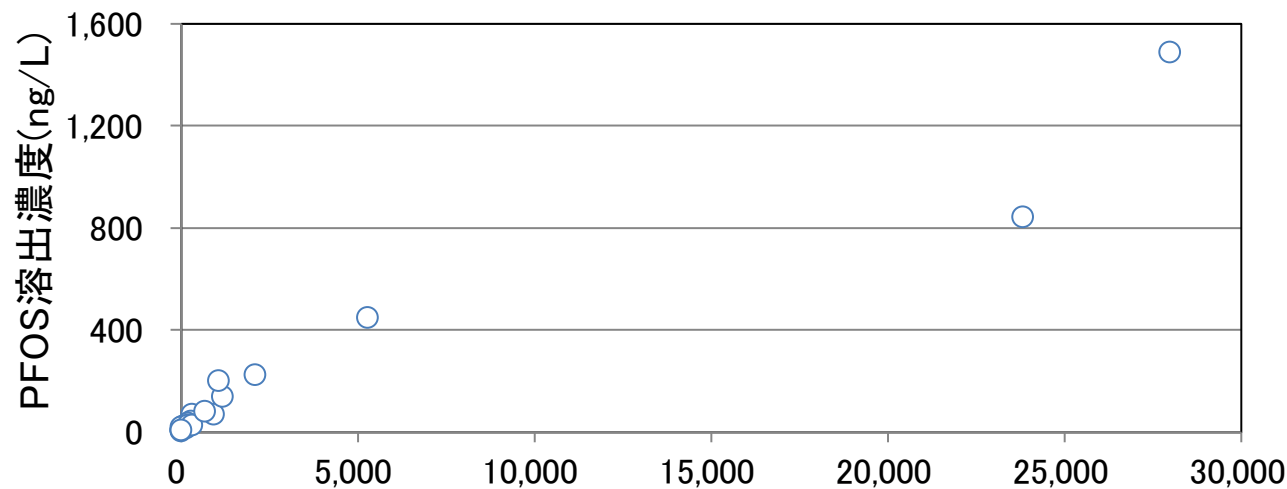
溶出濃度

PFPeA PFHxA PFHxS PFOS 6:2FTS 8:2FTS その他

含有量



5.1. PFASs含有量の鉛直分布と溶出濃度との関係

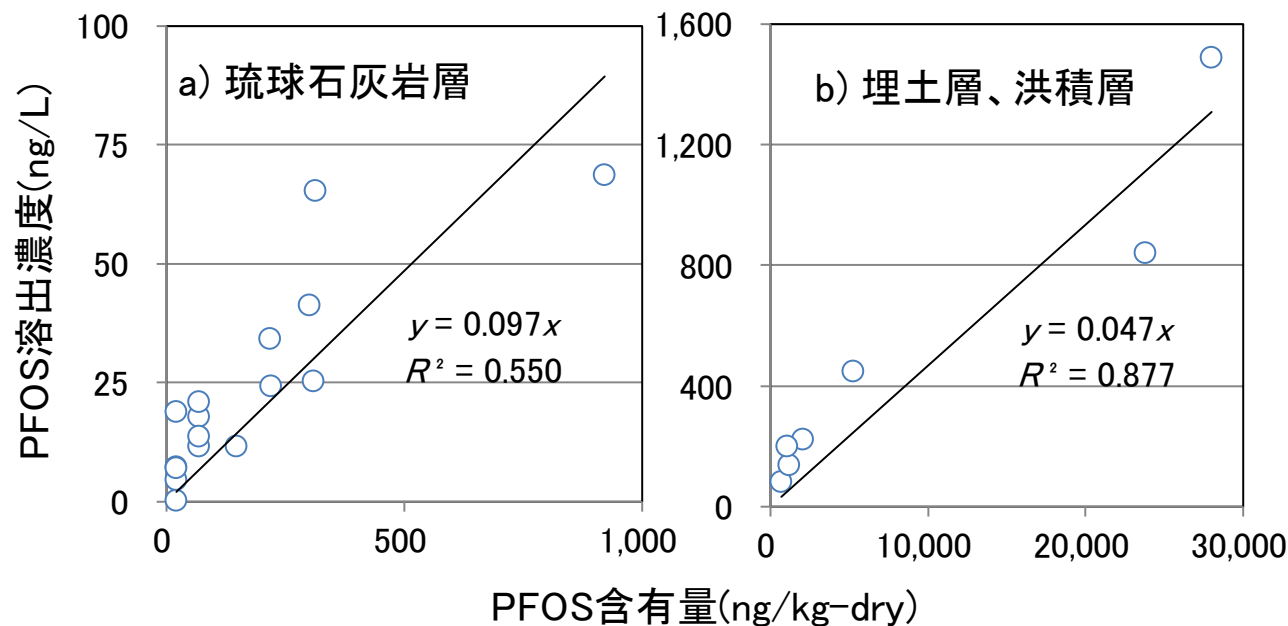


土壌からの
PFOS溶出割合

琉球
石灰
岩層

>

埋土層
洪積層



PFOS溶出濃度(ng/L) =

0.097 PFOS含有量(ng/kg-dry)

PFOS溶出濃度(ng/L) =

0.047 PFOS含有量(ng/kg-dry)

埋土層、洪積層
強熱減量は4~7%
有機成分の多い土壌



水による溶出では
不十分であることが
示唆された

5.1.土壤中PFASs含有量の鉛直分布特性による分類

9

0-3m 3-6m 6-9m 9-12m 12-15m 15-18m 18-21m 21-24m 24-27m 27-30m 30-33m 33-37m

a) 地表部蓄積型

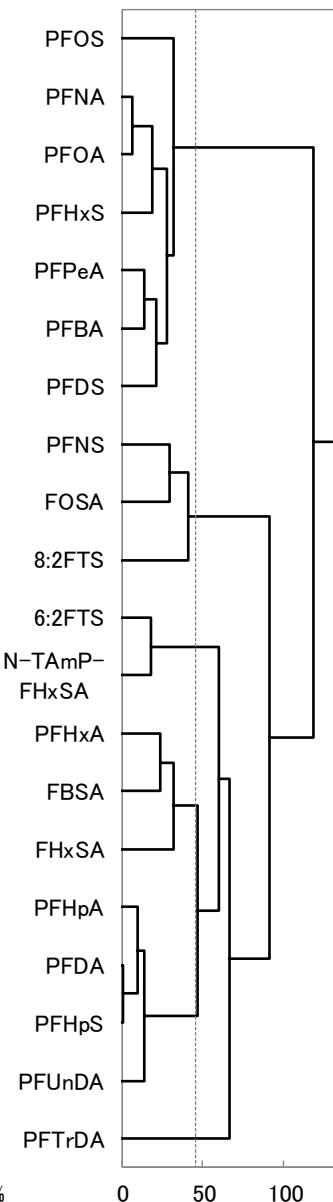
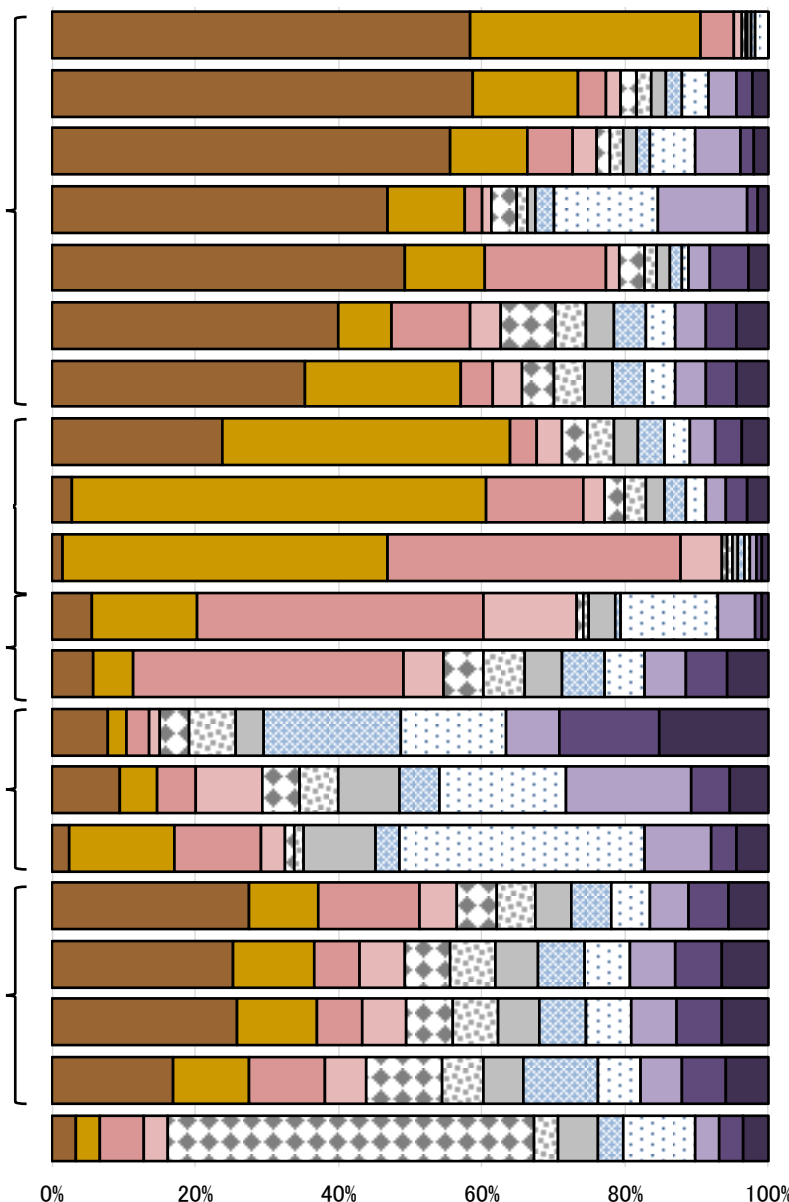
b) 準鉛直移動型

c) 鉛直移動型

d) 地下水型

e) その他1

f) その他2



ユークリッド距離

土壌鉛直分布

土質特性寄与

表層の有機質の
土壌(埋土層)

長鎖PFASs蓄積

琉球石灰岩層

鉛直方向

クロマト状

PFASs分布

地下水を通じて

水平方向移動

4.2. 土壌・公共用水域・地下水等の環境中における物質移動評価のパラメータの取得

10



ポイント

- ・PFASsを対象とした回分式吸着試験法の確立と分配係数の取得
- ・カラム式吸着試験による遅延係数と再溶出ポテンシャルの評価
- ・土質特性との相関に基づく各種物質移行パラメータの予測



1. 回分式とカラム式の吸着試験を組み合わせ、地盤内挙動の評価に必要なとなる

➡ 物質移行パラメータ(分配係数や遅延係数等)を取得

4種類の土ごとの係数 目標達成!!

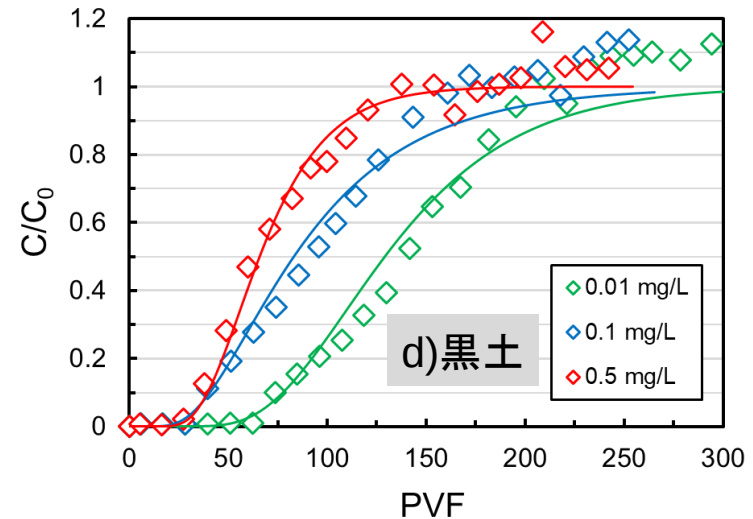
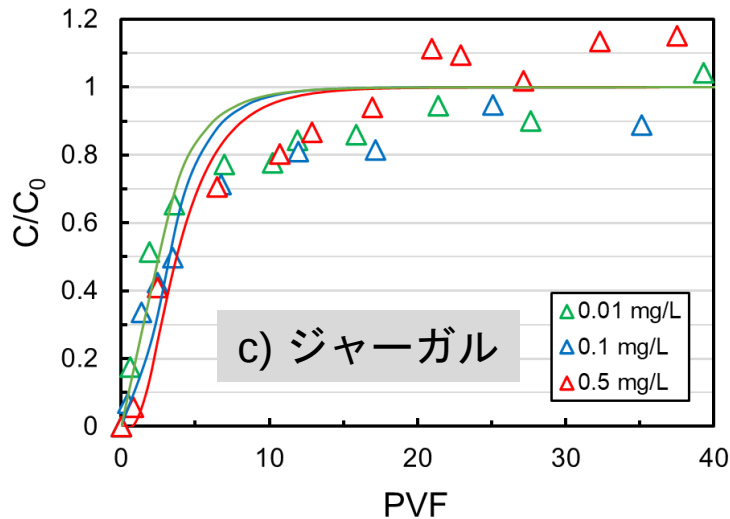
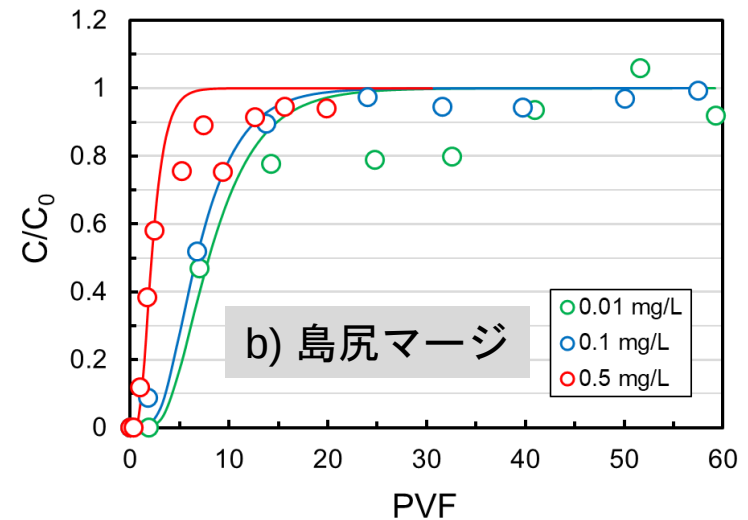
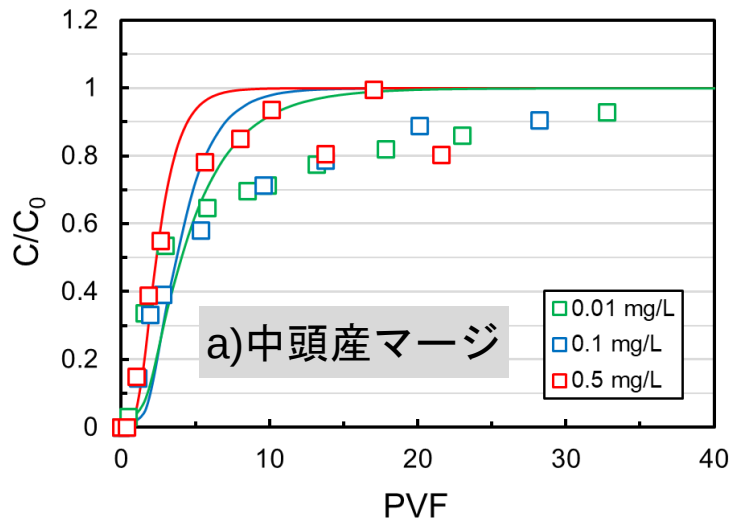
2. 複数種の土材料を用いて試験を行い、土質特性との相関から、

➡ 物質移行パラメータの予測手法を考案

強熱減量, TOCと相関 目標達成!!

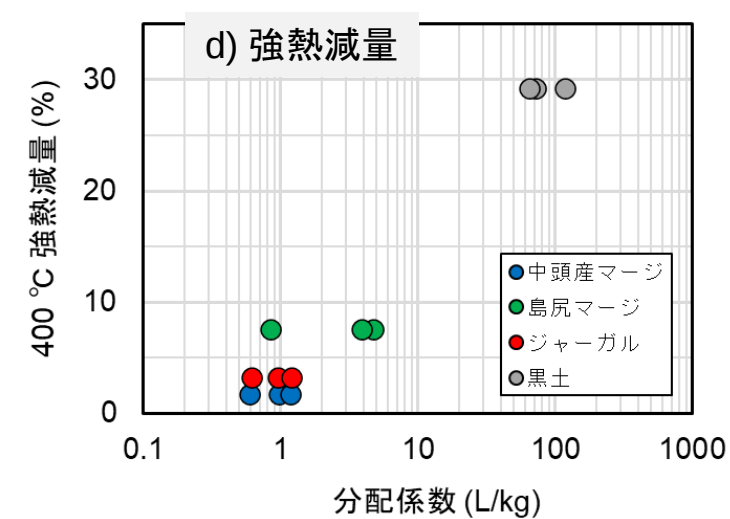
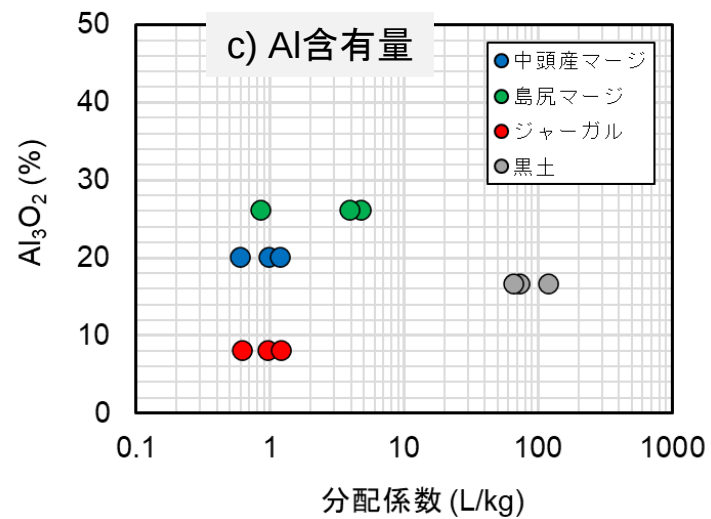
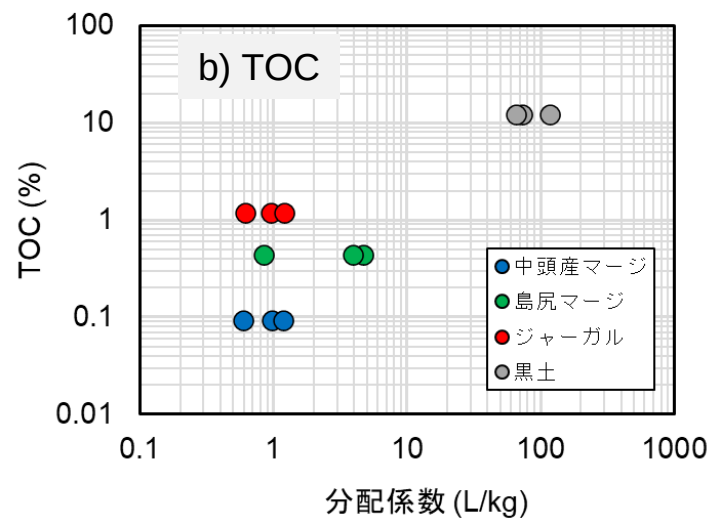
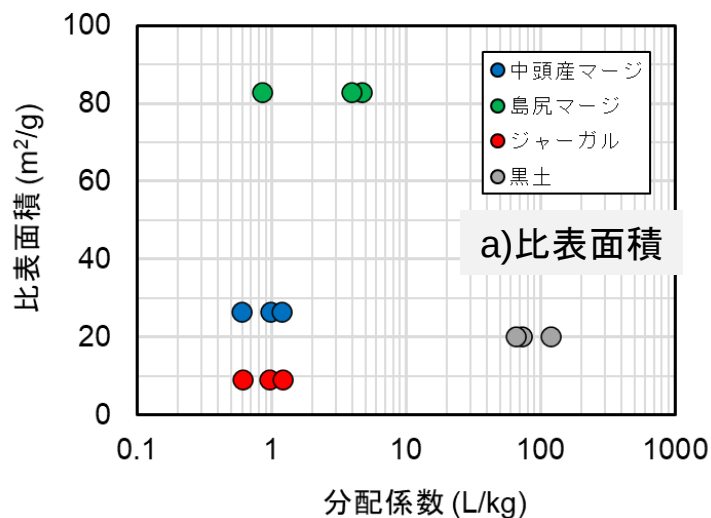
	2021	2022	2023
物質移行 パラメータ 取得	PFASs対象回分式吸着試験法の確立と分配係数の取得	カラム式吸着試験 清浄水の通水による ⇒再溶出ポテンシャル評価	各種吸着試験 物質移行パラメータ の一般化
土質特性 との 相関評価	コンシステンシー特性, 透水性, TOC, DOC, 強熱減量の評価	異なる試料のコンシステンシー特性, 透水性, TOC, DOC, 強熱減量の評価	土質特性と物質移行 パラメータの相関

5.2. カラム式吸着試験でのPFOSの破過曲線



沖縄の3種類の土では $K_d = 0.6 \sim 5 \text{ L/kg}$ 程度，黒土では $K_d = 60 \sim 120 \text{ L/kg}$ 程度

K_d : 分配係数



TOCや強熱減量が大きい場合に、大きな値の K_d が得られた

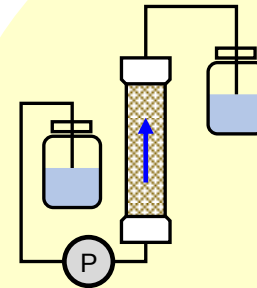
回分式(バッチ式)吸着試験



異なるPFOS、PFOA濃度で作製した複数種の溶媒を用い土と所定の液固比で混合、振とう後に液相の平衡濃度を分析

- ・試験方法の確立
- ・分配係数の取得
- ・異なる土質材料*を用いた評価

カラム式吸着試験



溶液を土壌試料中に連続通水
排出水の対象物質濃度を分析

- ・遅延係数の取得
- ・吸着後試料への清浄水の通水による再溶出ポテンシャルの評価
- ・異なる土質材料*を用いた評価



テーマ3: 物質移動予測
テーマ4: 除去技術の開発

物質移行パラメータの簡易予測

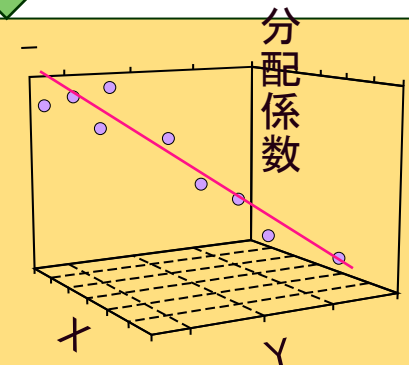
物質移行パラメータ

- ・分配係数
- ・遅延係数
- ・再溶出ポテンシャル

正の相関

土質特性

- ・コンシステンシー限界
- ・透水性
- ・強熱減量, TOC, DOCなど



分配係数

4.3. シミュレーションによるPFOS, PFOA等の物質移動予測とリスク管理法の高度化



- ・PFOS汚染に対する物質移動モデルの適用および妥当性評価
- ・新規吸着材開発および当該技術を含めた対策の費用対リスク削減効果の算定



ポイント

1. 1次元, 2次元シミュレーションに基づき地下水中の物質移動予測の評価方法を確立

➡ 実測データ(サブテーマ1, 4)で**妥当性を確認**

目標達成!!

2. 土壌汚染対策法の適用を視野に入れ、区域指定の判断の「汚染の到達範囲」を評価

80~810 m(沖縄嘉手納)

目標達成!!

3. 両親媒性分子からなる二重膜小胞によるPFOS, PFOAの吸着効率を求める
活性炭と比較して、PFOS**10倍**, PFOA同等

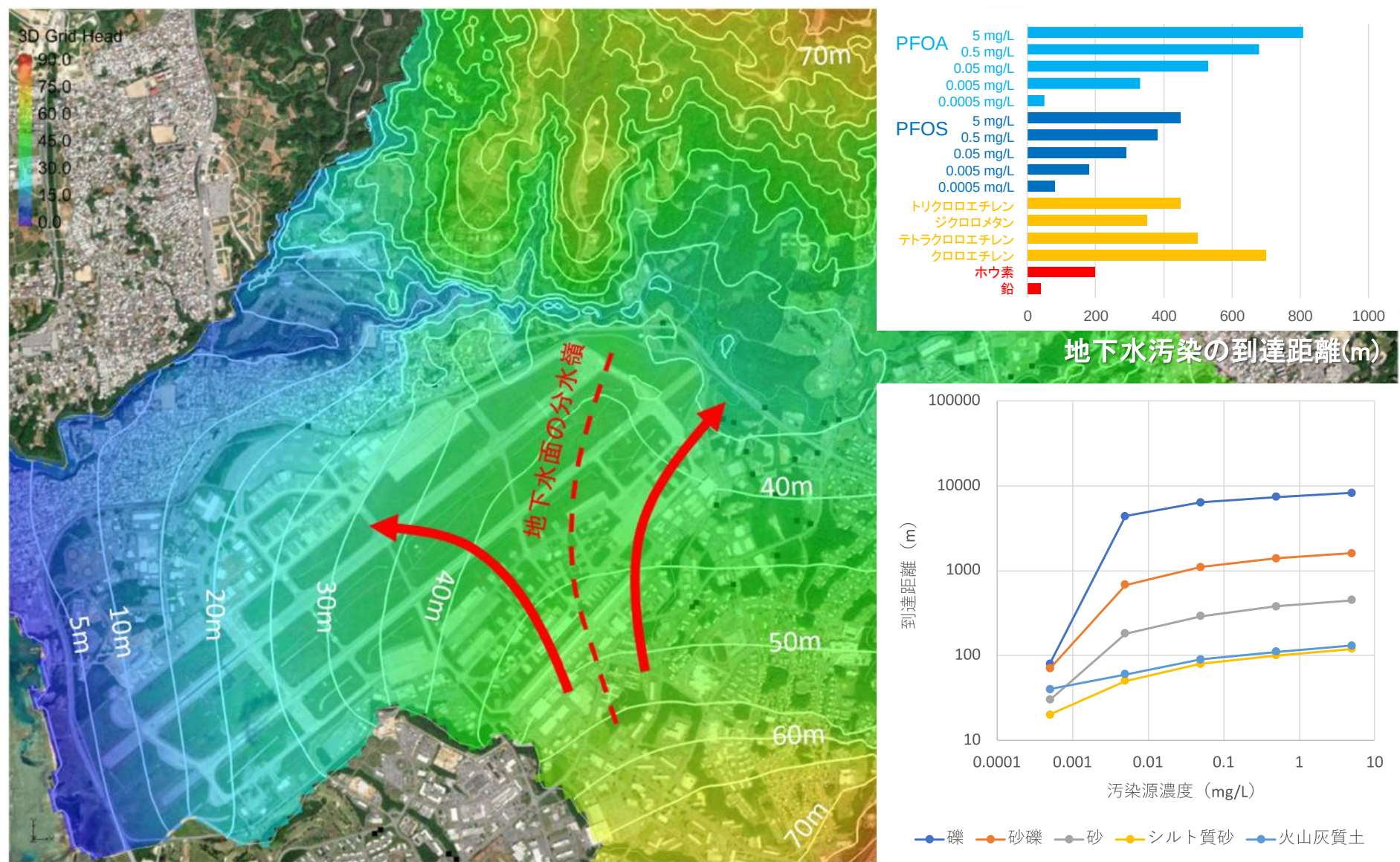
目標達成!!

4. 泡消火剤の漏えい等の土壌・地下水汚染をモデルサイトとし、

➡ 各種対策手法の**費用対リスク低減効果**を評価

目標達成!!

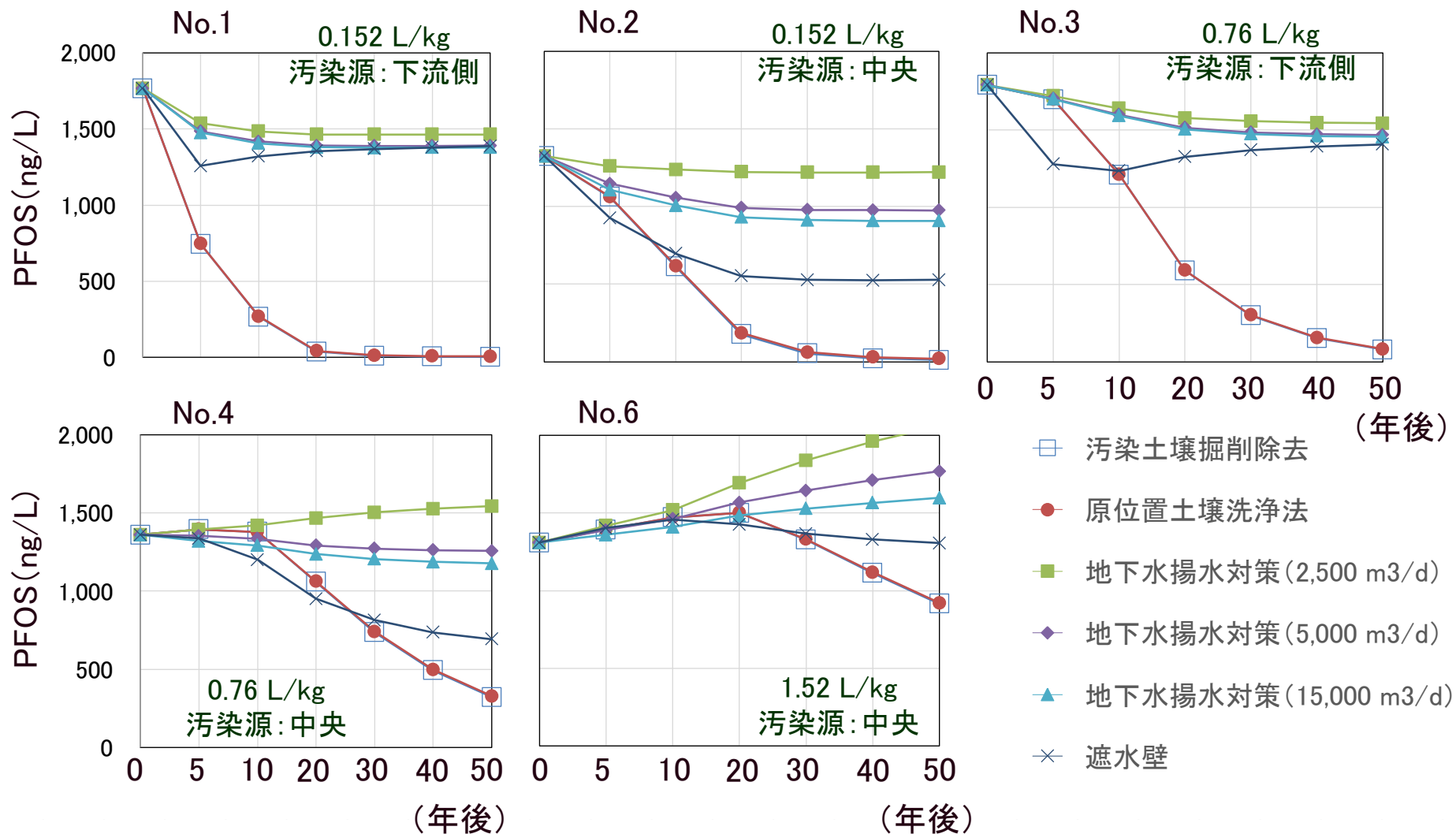
	2021	2022	2023
物質移動予測・リスク管理の高度化	地下水中物質移動予測モデルの検討	地下水汚染の到達距離試算	各種対策の費用対リスク低減効果
新規吸着材の検討	二重膜小胞によるPFASsの分配係数	二重膜小胞の凝集沈殿条件の検討	実汚染水を用いた試験



汚染源の地下水濃度が暫定目標の10倍 (0.0005 mg/L) ~ 100,000倍の範囲 (5 mg/L) における到達距離は80 m ~ 810 m

地下水揚水対策、遮水壁設置、汚染源土壌汚染掘削除去、汚染源土壌洗浄の対策の効果を分配係数および汚染源位置を変更した5つのケースで評価

地下水流動方向下流側の高濃度地点WS1地点の50年後までのPFOS濃度の経時変化を示す。



4.4. PFOS, PFOA等の有機フッ素化合物類に関する 効率的除去技術の開発



ポイント

- ・PFASs酸化可能前駆体 (Top Assay) を新たな評価手法とする
 ➡ 未知の前駆体を包括的に制御することが可能
- ・新たなPFOS, PFOAの回収・対策技術の開発と資源化



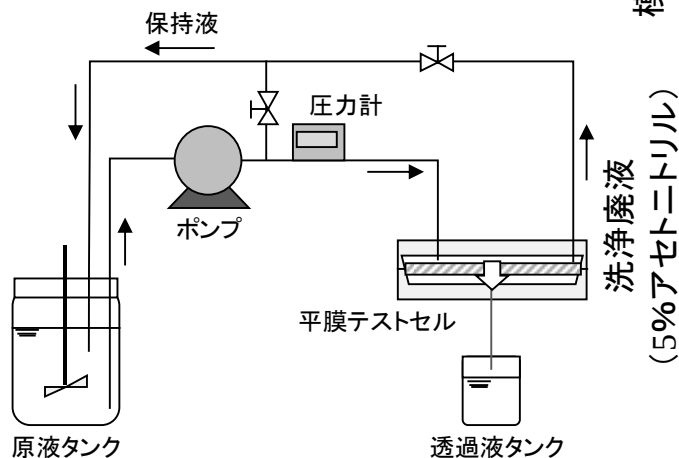
1. PFOS系, PFOA系の実汚染土壌に対する**最適な洗浄用溶媒**とその濃度 目標達成!!
 PFOS系 80%アセトニトリルまたは水, PFOA系 水
2. 土壌掘削, 土壌洗浄の場合に必要な溶媒量 目標達成!!
3. 原位置浄化を行う場合にPFOS, PFOAの洗浄にかかる時間 目標達成!!
4. 土壌洗浄により得られたPFASs廃液を濃縮するための**最適なイオン交換樹脂** 目標達成!!
 PFA400
5. 濃縮されたPFASs廃液に対してPFOS, PFOAを**選択的に分離する最適なNF膜** 目標達成!!
 NTR7450

	2021	2022	2023
効率的除去技術 の開発	PFOS系土壌 回分式振とう試験, 溶出量の把握 カラム通液試験, 土壌洗浄溶媒量の把握	PFOA系土壌	土壌洗浄廃液をイオン交換樹脂で濃縮, NF膜で, PFOS, PFOAを選択的分離
包括的制御方法	PFASs 酸化可能前駆体 (TOP Assay) を分析		

5.4. 土壌洗浄廃液を濃縮するためのイオン交換樹脂, NF膜

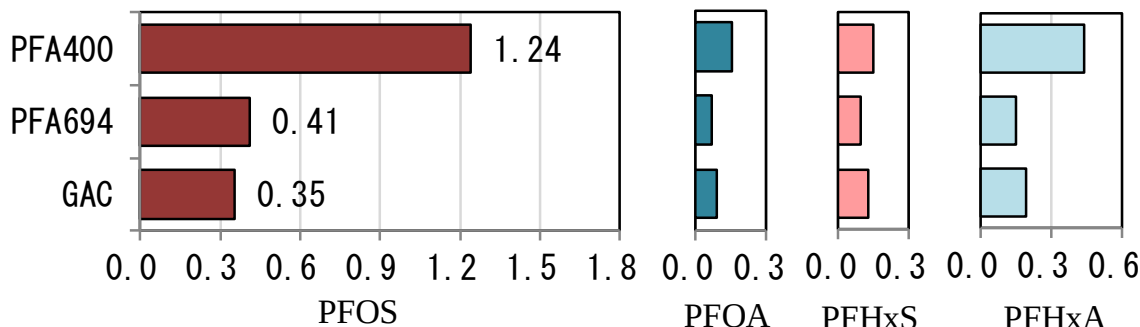
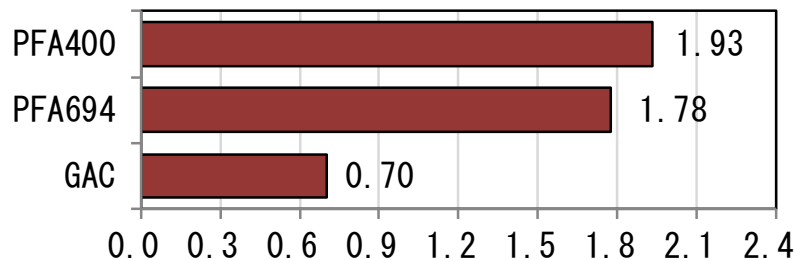
22

大阪摂津市実汚染土壌
(R4)を使用



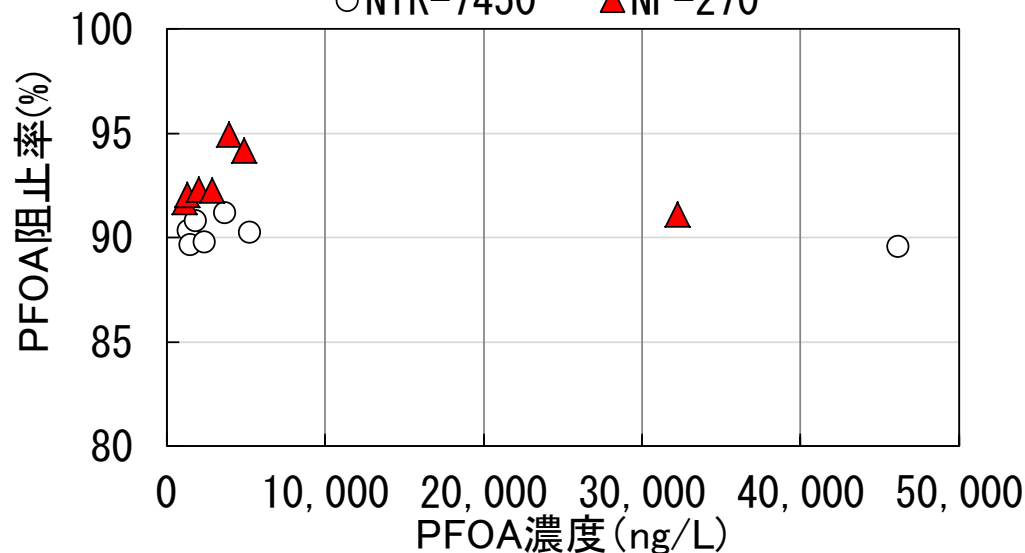
模擬洗浄廃液

洗淨廃液
(5%アセトニトリル)



吸着量 (mg-PFAS/g-adsorbent)

分画分子量10,000 分画分子量200
○NTR-7450 ▲NF-270

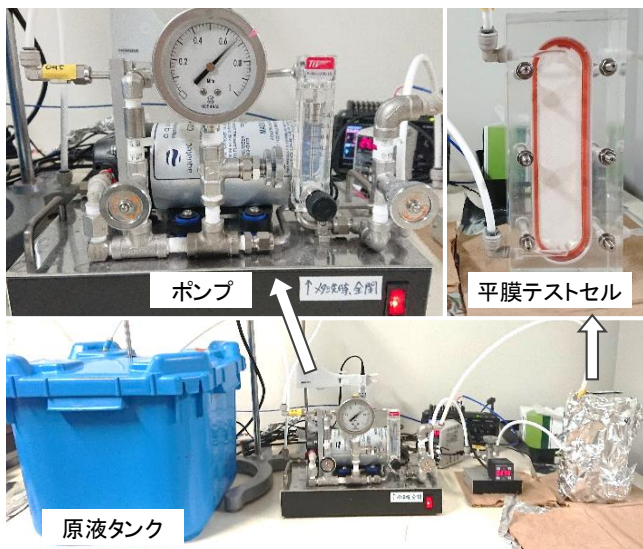


13 L



0.1 L

130倍
濃縮



PFASsの包括的かつ体系的な土壌地下水汚染のリスク評価・管理方法の構築

2. 目標を上回る成果をあげた

1. PFOS, PFOA等の実汚染サイトの土壌中でのPFASsの濃度分布を把握

沖縄嘉手納周辺, 大阪摂津市周辺で計5本(122 m)のボーリング調査を実施

目標達成!!

2. PFASs実汚染土壌からのバッチ溶出試験における溶出特性を把握

全98試料からのPFASs溶出量を把握

目標達成!!

3. 土壌汚染対策法にPFOS, PFOAが導入された場合に必要となる溶出試験法案を提示

土質, 対象物質別の溶出試験法を提示

目標達成!!

2. 目標を上回る成果をあげた(サブテーマ1)

1. PFOS, PFOA等の精度の良い回分式吸着試験とカラム通水試験の試験法を確立

目標達成!!

2. 回分式とカラム式の吸着試験を組み合わせ、地盤内挙動の評価に必要な

➡ 物質移行パラメータ(分配係数や遅延係数等)を取得

4種類の土ごとの係数

目標達成!!

3. 複数種の土材料を用いて試験を行い、土質特性との相関から、

➡ 物質移行パラメータの予測手法を考案

強熱減量, TOCと相関

目標達成!!

2. 目標を上回る成果をあげた(サブテーマ2)

1. 1次元, 2次元シミュレーションに基づき地下水中の物質移動予測の評価方法を確立

→ 実測データ(サブテーマ1, 4)で**妥当性を確認**

目標達成!!

2. 土壌汚染対策法の適用を視野に入れ、区域指定の判断の「汚染の到達範囲」を評価

80~810 m(沖縄嘉手納)

目標達成!!

3. 両親媒性分子からなる二重膜小胞によるPFOS, PFOAの吸着効率を求める

活性炭と比較して、PFOS**10倍**, PFOA同等

目標達成!!

4. 泡消火剤の漏えい等の土壌・地下水汚染をモデルサイトとし、

→ 各種対策手法の**費用対リスク低減効果**を評価

目標達成!!

2. 目標を上回る成果をあげた(サブテーマ3)

1. PFOS系, PFOA系の実汚染土壌に対する**最適な洗浄用溶媒**とその濃度

目標達成!!

2. 土壌掘削, 土壌洗浄の場合に必要な溶媒

PFOS系 80%アセトニトリルまたは水,
PFOA系 水

目標達成!!

3. 原位置浄化を行う場合にPFOS, PFOAの洗浄にかかる時間

目標達成!!

4. 土壌洗浄により得られたPFASs廃液を濃縮するための**最適なイオン交換樹脂**

PFA400

目標達成!!

5. 濃縮されたPFASs廃液に対してPFOS, PFOAを**選択的に分離する最適なNF膜**

NTR7450

目標達成!!

「土壌中のPFASs含有量を包括的に分析するための方法を開発」

1. 目標を上回る成果をあげた(サブテーマ4)

サブテーマ	行政等に既に貢献した成果
1, 4	環境省からの要請を受け、沖縄県内および大阪府内で採取した土壌コア試料（5試料、各1 kgwet）を提供した。これらの試料は、同省が2023年7月に公表した「土壌中のPFOS、PFOA及びPFHxSに係る暫定測定方法」の検討の過程で用いられ、具体的な行政の成果に反映された。
2, 3, 4	環境省および土壌環境センターから研究成果に対するヒアリングを受け（サブテーマ4は2023年2月、サブテーマ2, 3は2024年2月）、環境省におけるPFAS対策に関する技術的知見を供給した。
4	環境省から依頼を受け、環境省土壌環境基準等検討調査業務（第2回検討会）において「土壌・水系における有機フッ素化合物類に関する挙動予測手法と効率的除去技術の開発」について資料を提供し概要を説明した。
4	環境省から依頼を受け、D飛行場の担当に研究代表者のPFASs関連論文10編のデジタルファイルを送った。
4	A自治体環境管理課と共同でA自治体の地下水中のPFAS調査を実施し、調査結果を2024年4月10日に担当者に報告した。
4	B自治体環境管理課からB自治体北部におけるPFAS汚染について相談を受け現地の水、植物、土壌中のPFAS調査を実施し具体的な緊急対策案について提案した。
4	C自治体から地下水中のPFAS汚染について相談を受け、具体的な対策案を提案した。C自治体水質改善対策委員会の委員として、本研究成果の一部を現場に反映することに貢献する。

7.研究成果の発表状況と国際共同研究等の状況

26

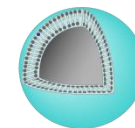
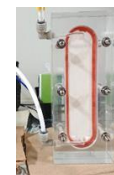
成果の種別	件数	備考
査読付き論文	2	現在 2 編査読中, 2 編投稿準備完了
その他誌上発表 (査読なし)	3	
口頭発表 (国際学会等・査読付き)	2	
口頭発表 (学会等・査読なし)	3 0	
知的財産権	2	特願2023-032968 特願2024—026444
「国民との科学・技術対話」の実施	3	
マスコミ等への公表・報道等	2	日本水道新聞, aperza TV
研究成果による受賞	4	
その他の成果発表	1	書籍

国際共同研究等の状況

PFASの土壌汚染の専門家であるオーストラリア国Charles Sturt UniversityのCSU EngineeringのLalantha Senevirathna博士と共同で「In situ soil flushing to remediate confined soil contaminated with PFOS- an innovative solution for emerging environmental issue」に関する共同研究を行い、特にPFAS汚染土壌のremediationに関する技術的交流を行った。新型コロナウイルス感染症の影響で直接の訪問は止まっていたが、2024年10月から約1か月、京都大学地球環境学堂の修士学生がオーストラリアのPFAS汚染土壌を対象に継続研究を進めることとなった。

- 新たなPFOS、PFOA回収・対策技術の開発と資源化に挑戦

➡ 土壌浄化によって生まれたPFASs廃水の処理にも貢献



- 土壌・地下水中のPFOS、PFOAの環境情報基盤データの整備と物質移動予測

土壌や地下水中の挙動に関する物理化学パラメータの知見は極めて限定的

➡ 我が国では実汚染サイトの土壌中の濃度分布を詳細に評価した事例はない。

本研究では、現場でのボーリング調査と室内試験研究(テーマ1, 2)を組合せることで、土壌中での物理化学的な挙動を表すパラメータが網羅的・体系的に得られた。

また、シミュレーションによる物質移動予測(テーマ3)でその妥当性を確認した。

- 土壌中の未知の前駆体を包括的に制御することが可能となった



個別の物質の規制では、環境中への新たな化学物質の放出を防ぐことができない。

➡ 前駆体および中間生成体の挙動を推測し、包括的な規制を設けることが重要
土壌試料に対して、PFASs酸化可能前駆体(TOP Assay)測定法を開発