解説

汚染物質のゆくえ

藤　森　　崇
Takashi FUJIMORI

先端理工学部環境生態工学課程　准教授
Associate Professor, Ecology and Environmental Engineering Course

1. はじめに

環境をめぐる研究分野を一言で括ることは難しい．環境媒体は大気，水，土壌などあらゆる場所が想定される．媒体それぞれに専門家がいる．手法をみても理文の垣根を超えている．なんでもあり，ともいえる方法論的多様性がある．さらには生物か非生物かの境界もあり，どちらか，または，どちらも扱うスタイルがある．本稿では汚染物質を切り口に話題を提供したい．

私は，学位取得まで進めてきたテーマから，その後ポスドクや教員として展開したテーマまで一見すると一貫性がない．しかし，私自身の中ではすべてが有機的につながっている．特定の研究分野のはなしをするときは，自分の中の引き出しのひとつを開けて見せているような気分になる．すべての引き出しを開ける時間はない．どの研究者もおそらく断片的な自己をその時のテーマを通じて表現しているのだと思う．

冒頭で触れた環境研究の多様性に身を委ねているのは，まさしく多様であるからであり，そこに自由を感じるからである．

2. 汚染物質いろいろ

さて，汚染物質といっても色々である．ここでは，残留性有機汚染物質（POPs : persistent organic pollutants）や重金属類を扱う．機器分析をする研究者において，有機物質と無機物質ではその性質上異なる分野に属するものといえる．測るだけでも専門性が異なり，実に深い世界ではあるが，本稿では置いておく．

POPs は，特にポリ塩化ビフェニル類（PCBs）や塩素化ダイオキシン類などによる問題で知られている方も多い，一連の有機物質群のことである．環境中に残留してしまう性質や生物に対する毒性から，POPs に関するストックホルム条約（通称 POPs 条約）によって国際的に規制されている．12 種類から始まった POPs は年々増加し，現在では附属書 A（廃絶）に 26 種類，附属書 B（制限）に 2 種類，附属書 C（非意図的生成物）に 7 種類が登録されている．表記上のマニアックな話に触れる．ダイオキシン類について，どのくらい詳しく知っているだろうか．ポリ塩素化ジベンゾパラダイオキシン類（PCDDs），ポリ塩素化ジベンゾフラン類（PCDFs），そして PCBs，これら 3 種類の物質群のなかで毒性のあるものを一言で「ダイオキシン類」と述べてい

ることが多い．物質名が長いので，PCDDs および PCDFs と書きたいときに PCDD/Fs とひとまとめにする記法もある．私にとっては慣れ親しんだ表現ではあるが，ひとに説明するときの煩わしさといったらない．本当は複数を意味する「類」を語尾につけたいが，口頭の場合は特に「ダイオキシンの研究をしています」といってお茶を濁している．

他に，近年登録され私の研究対象としてきた POPs も，名前と略語の対応だけでも紹介したい．短鎖塩素化パラフィン類（SCCPs），デカブロモジフェニルエーテル（DecaBDE または BDE-209），ペルフルオロオクタンスルホン酸（PFOS），ペルフルオロオクタン酸（PFOA），ペルフルオロヘキサンスルホン酸（PFHxS）などがそれらである．SCCPs は塩素系製剤，DecaBDE が臭素系難燃剤，PFOS, PFOA, PFHxS はすべてフッ素系界面活性剤として製造・使用されてきた POPs である．

重金属類は，なかでも鉛が挙げられる．鉛の毒性に関する情報をここでは述べないが，私の体験を書いておきたい．鉛汚染地域の調査でベトナム（ハノイ近郊）に行ったときのことである．曝露予防のためのマスクをしていたのだが，それ越しで感じる甘い香りが大気中に漂っていた．調査の途中で気分が悪くなり，車の中で休憩をしていると，鉛による急性症状（頭痛，嘔吐感など）であると言われた．甘い香りの正体は大気中の鉛であり，その匂いを感じるのは昔の鉱山労働者と同じ汚染レベルなのだと解説され，唖然とした．その地域は車のバッテリーから鉛インゴットを再生するリサイクルをする精錬場のあるところだった[1]．労働者の中には星形（☆）をどうしても描けず丸（○）のようになってしまう重篤な鉛汚染が生じていた．

他の重金属類としては亜鉛，銅，鉄，クロムといったものも扱ってきた．中でも銅は，それ自体の毒性ではなく，ダイオキシン類の生成を触媒する役割に注目して研究をした（なんなら，この内容が学位論文の中核となった）経緯があるため思い入れが強い．通常，ダイオキシン類の研究者は有機分析のプロになっていくが，私は重金属との関連に取りつかれてしまい，結果，有機・無機の両分野にまたがり，かつ，最も重要な分析は放射光による分光学（XAFS 法：X 線吸収微細構造法）に基礎をおいたものだった．当時から専門性に拘らず研究を進めてきた経験が，現在の私まで地続きであることを痛感する．

3. 発生と仕組み

ここからは，実際にこれまでやってきた研究内容をかいつまんで紹介する．ところどころ出てくる専門用語や内容の詳細は各論文に譲るが，最初は都市ごみ焼却飛灰でのダイオキシン類生成のメカニズムを放射光分析によって解明したもの[2]，次は途上国の汚染サイトにおける研究[3]である．この 2 つの研究が不思議なめぐり合わせで重なり合う様子を感じ取ってもらえるのではないだろうか．

3.1 直接塩素化

実際の都市ごみ焼却飛灰における有機塩素化合物の生成に銅がどのように関与しているかを，*in situ* XAFS 法を用いたアプローチでその一端を解明した．$CuCl_2 \cdot 2H_2O$ を含有した模擬飛灰を酸素 10% 雰囲気下で昇温した際の，広域 XAFS（EXAFS）振動のフーリエ変換，その解析によって得られた銅－塩素結合（Cu-Cl）および銅－酸素結合（Cu-O）の配位数の変化を解析した結果，塩化第二銅として存在していた初期状態から 300℃ 前後および 380–400℃ にかけて二段階の「脱塩素化」が生じていること，二段階目に銅は酸化され最終的に酸化銅（CuO）として安定することが明らかとなった．

他方，塩素の XAFS の吸収端直前直後の近傍構造（XANES）の解析から，銅から脱塩素化した塩素が炭素に結合していることが明らかとなった．XANES スペクトルから，昇温前は塩化第二銅に由来するプレエッジ構造が昇温とともに小さくなり，最も吸収の大きいピーク（最大ピーク）位置が 300℃で一度低エネルギー側にシフトし，それ以上の温

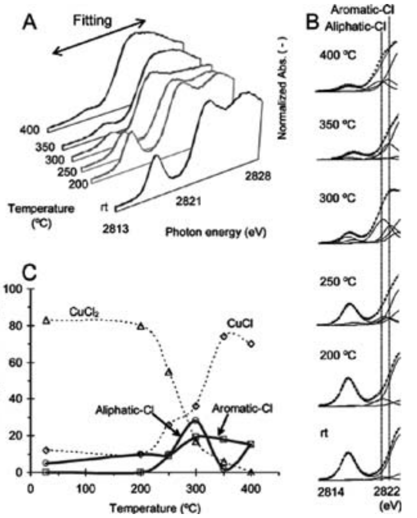

図 1　塩素の XANES スペクトル

度で再度高エネルギー側にシフトする様子がみられた（図 1 A）．塩素を含有する構造既知の試薬を測定して得られた標準 XANES スペクトルのライブラリを丁寧に解析した結果，最大ピーク位置によって塩素の結合元素が脂肪族炭素（2820.4 eV），芳香族炭素（2821.1 ± 0.1 eV），無機元素（約 2822-2824 eV）の別に分類できることが明らかとなった．構造的な特徴を加味すると，300℃ における低エネルギー側の最大ピークは塩素と芳香族炭素との結合（Aromatic-Cl）に由来することが判明した（図 1 B）．塩素の結合対象別に存在割合の温度変化を調べると，Aromatic-Cl が 300℃ で最大割合を示した（図 1 C）．

銅および塩素の XAFS スペクトルの解析により，分子レベルでの熱化学的な変化を理解することができ，その結果以下の直接塩素化反応（R1）が有機塩素化合物の生成に寄与していることが明らかとなった：

$$2\,CuCl_2 + R-H \rightarrow 2\,CuCl + R-Cl + HCl \quad \text{(R1)}$$

ここで，R は有機炭素を意味する．この直接塩素化反応（R1）は主に 300℃ 前後で生じるが，380-400℃ でも銅からの脱塩素化は進行している．この二段階目では酸化銅が生じ始め，これにより炭素の CO_2 や CO へのガス化が促進され，有機塩素化合物自体が分解される効果もあることが分かった．炭素の塩素化とガス化の正味のバランスとして，300℃ で有機塩素化合物の生成が最大となると考えられ，この傾向は実際の都市ごみ焼却飛灰からの再合成生成量の温度プロファイルと一致した．

3.2　廃電気・電子製品の野焼き

ガーナの Agbogbloshie 市場から採取した e-waste 野焼き土壌に対して種々の機器分析による定量を実施した結果，高濃度の重金属（銅，鉛，亜鉛など）および PCDD/Fs および PBDD/Fs などの DRCs で汚染されていることが明らかとなった（図 2）．有機ハロゲン化合物では，特にフラン類である PCDFs および PBDFs が突出して高い濃度レベルを示し，それぞれ最大で 360 ng/g dw（Cl_4-Cl_8 の総和）および 3800 ng/g dw（Br_4-Br_8 の総和）であった．

10 地点の重金属を含む元素および DRCs の濃度分布パターンのデータを標準化し，階層的クラスター分析によるグループ化の結果を加味した主成分分析の結果，主成分 1（PC1）および主成分 2（PC 2）で全データの 80.3% を表現しており，PC1 は「e-waste 野焼きの影響」を，PC2 は「特異的な汚染質の排出」を意味するものと解釈された．DRCs と銅（Cu）および鉛（Pb）は PC1 が高い正の値かつ PC2 がゼロ付近の非常に近い位置に集中していることから，e-waste 野焼きの影響を顕著に受けている成分であり，それぞれに密接な関連性のあることが

図 2　ガーナでの野焼き風景

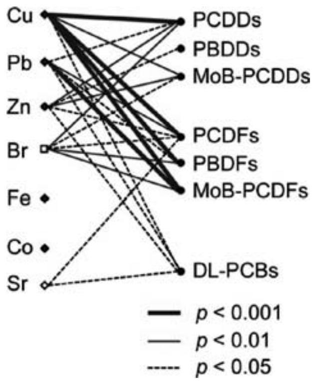

図 3　重金属と DRCs の相関

明らかとなった．他方，重金属を含む元素と DRCs の相関関係を分析した結果，Cu および Pb に非常に強い有意な正の相関関係があることが示された（図 3）．Cu は PCDDs, PCDFs, PBDFs, MoB-PCDFs と有意な強相関（p＜0.001），MoB-PCDDs や DL-PCBs とも有意な相関関係が示された．特に Cu は，e-waste 野焼きでの発生が顕著なフラン類（PCDFs, PBDFs, MoB-PCDFs）と強い関連性があるといえる．Pb も Cu 同様にフラン類や PCDDs との有意な相関関係が示された．亜鉛（Zn）や臭素（Br），ストロンチウム（Sr）にも DRCs の一部との有意な相関がみられたが，鉄（Fe）とコバルト（Co）は有意な相関はみられなかった．以上の統計解析を統合すると，e-waste 野焼きでは DRCs の生成に銅が特に強い影響を持っている可能性があると考えられた．

そこで，同じ e-waste 野焼き土壌の銅の K 端 XANES スペクトルを測定し，銅の化学形態を解析した．分析に供した 6 試料中 5 つにおいて，銅の塩化物である CuCl, $CuCl_2$，および $Cu_2(OH)_3Cl$ が主要成分として同定された．e-waste 野焼きの目的のひとつに，ケーブル・ワイヤー類に含まれる金属銅の回収がある．被覆材を焼くことで銅だけを回収する，非常にシンプルな方法である．また，被覆材として使用されるポリマーのひとつにポリ塩化ビニル（PVC）が使用されている．したがって，PVC の熱分解生成物と金属銅が反応することで銅の塩化物が生じ，最終的に野焼き土壌中に存在している可能性がある．現在，金属銅と PVC との熱化学反応について，銅だけでなく塩素に関しても *in situ* XAFS 法を適用した機構研究を展開しており，上述の反応が生じていることを確認している．

e-waste 野焼き土壌で見られた銅と有機塩素化合物の関係性と銅の化学形態から，既述の塩化第二銅による直接塩素化反応（R1）が生じている可能性が考えられる．e-waste の野焼きと都市ごみ焼却飛灰の加熱とでは，対象となる媒体，組成，燃焼状態などが大きく異なるにも関わらず，有機塩素化合物の生成機構には銅を介在した共通性を見出すことができた．

4. 分解

さて，有害物の発生や機構に続いて分解に関する研究についても紹介する．一般的には焼却等の熱分解，薬剤を用いる化学処理がある．ここでは新規 POPs として分解方法の検討が必要な SCCPs および DecaBDE に対する結果を示すことにしたい．化学処理の結果については，詳しい内容を論文化しているので興味のある方はご一読いただきたい[4]．

4.1　方法

DecaBDE は，純度 98% の粉末試薬を用いた．一方，SCCPs が含有されていると考えられる試薬 3 種類の中から，SCCPs の高濃度含有が認められた中国製のワックス試料を主に対象とすることとした．

熱処理実験は通常炉および制御炉の 2 種類を用いた．通常炉は処理する量をグラムオーダーで投入できるが滞留時間の精密な制御が難しく，制御炉は少量（100 mg オーダー）での実験となるが滞留時間を制御できるため，目的に応じて使い分けた．実験条件としては，主に温度，滞留時間に注目したが，酸素濃度や銅の共存についても検討した．

化学処理実験は金属 Na 分散体法を実施した．処理スケールに関しては，2 L および 20 L での試験

を行った．ワックス試料の初期添加割合（ワックス試料量と希釈溶媒の和に対するワックス試料量の割合）や，温度，Na 分散体量，また試験スケールを変化させて計 7 条件で試験を行った．20 L 試験では，スケールアップによる分解率への影響，2 回繰り返し試験による分解効果の再現性の確認，スケールアップすることにより捕集することが可能となった反応槽排気ガス中の SCCPs 量の定量，さらに，反応液中の主たる分解後生成物だけでなく，条約上非意図的生成物を含めた副生成物の定量評価を実施した．また，処理油および水相の廃アルカリを対象として総塩素，有機塩素，無機塩素を定量し，金属 Na 分散体法による塩素の量的挙動について調査した．

4.2　熱処理の効果

分解試験全体を簡単に表 1 にまとめて示す．SCCPs は分析に際して試料量が必要であること，機器分析前処理における課題があること等の理由で，試料量を多く使用できる通常炉での実験を主として行った．ただし，低濃度 PCB 廃棄物処理の熱処理要件を意識して 850℃，滞留時間 2 秒での試験については制御炉で実施した．SCCPs を熱処理する場合，850℃，2 秒以上の滞留時間であれば酸素濃度や銅の有無によらず高い分解率（＞99.999％）を得られることが分かった．副生成物については，ダイオキシン類（PCDD/Fs および DL-PCBs）や CBzs については高温（950℃），低酸素（10,0％）で発生が抑制できるものの，PAHs や Cl-PAHs が低酸素において未燃分の発生に伴い増加してしまう点を考慮する必要があった．また，銅が混在した状態での熱処理はダイオキシン類の発生を増加させてしまうため，処理時の混入を避ける必要があった．今回の研究課題における対象ではなかったが，SCCPs 含有ワックスには MCCPs も含有されていたため，試行的に MCCPs の分解率についても検討を行った．SCCPs と同様の考え方で定量下限値をワックス希釈液から求め，個別 MCCPs の定量下限値の最大値（1.2 ppm）を用いた．通常炉での試験について適用した結果，いずれの条件でも＞99.999％の分解率を示した．したがって，MCCPs に対しても熱処理は有効な分解方法であると考えられた．

DecaBDE の熱処理試験は，同一条件での試験を複数回（2-4 回）行い，分解効果の再現性も含めて評価した．低濃度 PCB 廃棄物処理の熱処理に必要な最低限の要件である 850℃，滞留時間 2 秒では，分解率が 99.393-99.9999％ という結果となり，4 回の試験中 2 回はバーゼル条約の技術ガイドライン（DE＞99.999％）を満たした．未達成であった 2 回は，熱処理後の未燃分や燃焼部上流側への付着物の

表 1　新規 POPs の分解効果

新規POPs	処理法	温度	滞留時間	酸素濃度（窒素バランス）	装置条件	分解率	非意図的生成物/副生成物	分解率の達成条件	非意図的生成/副生成への影響
DecaBDE	熱処理	850, 900, 950, 1000 ˚C	2, 4, 8秒	0, 10, 21%	制御炉	99.383 - **>99.9999%**	定量: HBB, NonaBDE（BDE-206, 207），OctaBDE（BDE-196, 197） 定性: OctaBDF	850˚C以上, 2秒以上	減少: 高温, 高酸素濃度（通常の大気）, 長い滞留時間 増加: 低酸素濃度
SCCPs	熱処理	250, 850, 950˚C	2, 19秒	0, 10, 21%	通常炉, 制御炉	**>99.999%**	定量: PCDDs, PCDFs, DL-PCBs, CBzs, PAHs, Cl-PAHs	850˚C以上, 2秒以上	減少: 高温, 低酸素* 増加: 銅との焼却

*低酸素の場合, 増大傾向を示す物質もあるため要注意（PAHsおよびCl-PAHs）

新規POPs	処理法	温度	反応時間	初期添加量	装置条件	分解率	非意図的生成物	分解率の達成条件	非意図的生成への影響
SCCPs	化学処理（金属Na分散体法）	30 - 90˚C	10 - 180分	1, 5, 10, 20, 30%	2, 20L 装置	>99.9985 - **>99.9995%**	定量: PCDDs, PCDFs, DL-PCBs, HCB, PeCB	90˚C, 10分以上, 10 - 30%添加	なし

発生が確認され，そこに多量の DecaBDE が検出された．燃焼部への試料導入について，未燃分を残さないように試料ボートの導入法を修正し，また，燃焼部下流側での発生量を評価するために管内付着分を下流側から採取した改善法で実施した場合，改善法での試験 2 回ともに 99.9999％ と高い分解率を示した．よって，適切な条件であれば 850℃，滞留時間 2 秒で DecaBDE の高い分解率を実現可能であるといえる．他の条件を複数実験した結果，850℃，2 秒以上の滞留時間であれば酸素濃度によらず高い分解率（＞99.999％）を得られたが，いくつかの試験において熱処理による残渣分や排ガス成分（本研究の場合，ろ紙吸着剤）に DecaBDE が検出された．詳細な理由については不明だが，DecaBDE の熱処理においては試料導入時の吹抜けが発生しないようにすることと，残渣の確実な燃焼が重要であると思われる．生成物としては，NonaBDE（BDE-207 および BDE-206），OctaBDE（BDE-197 および BDE-196），および HBB は，高温（900, 950, 1000℃）で発生が抑制できた．しかし，HBB は酸素濃度 0% において多量に生成したため，注意が必要である．ちなみに，発生量を比較すると DecaBDE, NonaBDE, OctaBDE の順であったことから，10 臭素化物→9 臭素化物→8 臭素化物といった逐次的な脱臭素化反応が生じていると示唆された．

4.3　化学処理の効果

2 L スケールの場合，初期添加割合が 10～30％ の条件（試験 2～5）で，反応開始後 180 分および反応終了後の処理油について分解率は 99.999％ を超えることが分かった．ワックス試料の初期添加割合 20％ の条件について 20 L スケールでの試験を実施した．この系では，反応槽からの反応液を反応時間 10, 30, 60, 120, 180 分で採取して時系列的なデータを取得し，また，反応槽から発生する排ガスを捕集し分析した．結果として，反応開始 10 分以降すべての反応液および反応終了後の処理油において分解率は 99.999％ を上回る高値を示した．排ガスは反応終了までに捕集したガス発生量が少なく，ワックス中の ΣSCCPs 初期量に比して 1/109 程度の極微量であり無視し得る量であると考えられた．また，同一条件での繰り返し試験（試験 6 および 7）を行った結果，同等の分解率を得られたため，本法は再現性のある分解効果を示すものといえる．また塩素収支を調べた結果，初期塩素量の 87-91％ が反応後の水相に無機塩素に変換したことが分かった．ワックス，希釈溶媒，Na 分散体，イソプロピルアルコール（IPA），抽出に用いた水の量の総和に対して反応後の処理油と水相（廃アルカリ）の量は 94-96％ であり，回収できなかった塩素は反応槽および配管内への付着によるロス分と考えられた．

20 L 試験において，条約上の非意図的生成物の生成有無について反応により生じる各媒体を定量分析した．結果として反応終了後の処理油，水相，排ガスのいずれでも PCDD/Fs, DL-PCBs はワックス中に不純物として含まれている濃度と同程度であり，生成は確認されなかった．また，HCB および PeCB に関してはワックス，処理油，排ガスのいずれにおいても定量下限値未満で検出されなかった．低 POPs 含有量（LPC）やダイオキシン類特措法で定められた基準値と比較しても十分低い値であったことから，非意図的生成物を考慮する必要はないといえる．SCCPs 含有ワックスについても，PCB 廃油に対する金属 Na 分散体法で発生する処理油の用途と同様に，燃料利用が可能であると考えられえる．

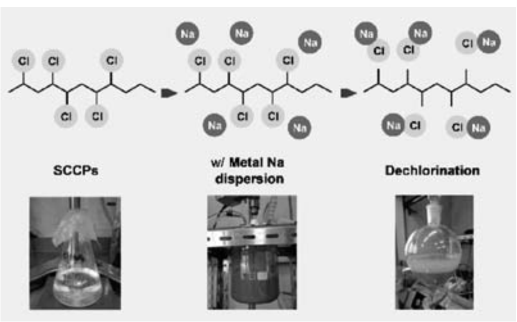

図 4　SCCPs の化学処理

金属 Na 分散体法による SCCPs の脱塩素化反応について考察した（図 4）．複数のデータに基づいて，反応槽に置ける置換反応（R－Cl＋2Na→R－Na＋NaCl）およびその後の水和反応（R－Na＋H_2O→R－H＋NaOH）で記述される可能性が示された．SCCPs の脱塩素反応により生じた有機物の構造について EI-scan モードを用いた分析により推定を試みた．類似度が高い物質として「塩素を含まない」脂肪族が検出された．これら脂肪族は水和反応が進行した結果生成した R-H であると考えられる．

5. おわりに

5.1 テーマいろいろ

本稿では，筆者の「環境」に関する汚染物質を中心とした話題を記述した．汚染物質のなかでもダイオキシン類をはじめとする「熱プロセスからの有機ハロゲン化合物の生成」研究は，現在も地道に続けている．都市ごみ焼却プロセスで発生する飛灰での有機塩素化合物の非意図的生成と微量な重金属類の関係について研究を進展させ，重金属間での生成影響評価や，個々の重金属による機構研究として銅，鉄，亜鉛，鉛，クロムについて探求すると共に，有機塩素化合物の抑制機構研究にも発展した．他方，有機塩素化合物の骨格元素である炭素，塩素に注目した研究を進め，包括的な生成機序の理解を目指している．現在は，プラスチックの種類別での焼却によるダイオキシン類生成影響評価の研究を進めている．

分解に関する研究は，いかんせん生成に関する研究に比べて，研究的にはインパクトの低い地道な内容である．焼却すれば分解するのはある意味当たり前であり，実績のある化学処理についても然りである．ただ，その当たり前をきちんと実験的に確認することに意味がある．実際は，一口に焼却試験といっても考慮すべき項目は山積しているため，現在も苦労話は尽きない．

個人的に最近興味をもっているのは「ハロゲンのマスバランス」と呼んでいる研究テーマである．非

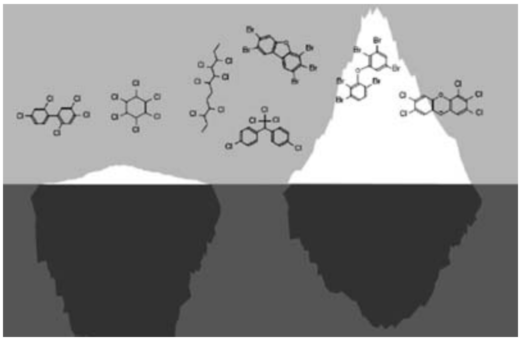

図 5　アイスバーグ研究

生物・生物を横断した有機ハロゲンの含有量を比較し，個別ハロゲン化物以外の未同定有機ハロゲン化合物の影響評価につながるテーマである．未同定の有機ハロゲン量というところが，隠されたハロゲンというニュアンスがあるため氷山の一角をもじってアイスバーグ研究とも呼ばれる（図 5）．複数の研究機関や大学と共同研究を進展させ，森林土壌，大気中の粒子，ハウスダスト，焼却灰，底質，ネコ，タヌキ，スジイルカなど広範な対象物を扱ってきた[5, 6]．今後は，塩素，臭素，フッ素の定量分析系の構築を目指している．

5.2 環境影響評価

筆者の研究室では環境影響評価（Environmental Impact Assessment）という用語を掲げている（https : //sites.google.com/view/fjmogomjf-lab/）．これは，国内・国際的に定義される「環境影響を特定・予測・評価する手続き」そのものを意味しない．あるいは，環境影響評価法（環境アセスメント法）やそれに準ずる各自治体の法令に基づいた大規模な事業に対する「制度としての環境影響評価」とも異なる（筆者が担当する「環境アセスメント及び演習」の授業で扱っているが）．これらの意味の環境影響評価に基づいて考えた場合，廃棄物焼却施設の高度化によって発生するダイオキシン類の影響は極小化されている．しかし，ダイオキシン類の発生機構は未だ根本的な理解には至っていない．評価としては済んでおり影響はないとされている現象であって

も，まだまだ未知の問題は多いといえる．

環境中の汚染質を定量する学問分野である環境化学は，汚染実態を把握するとともに今後の解決に向けたスタート地点を与える．解決策を具体的な技術として検討することは環境工学が担ってきた．言葉としての汚染を定量化する方法論としてリスク評価も様々な曝露形態を想定して研究が進められている．リスク評価の根幹には物質の毒性（機構）が潜んでいる．

専門分野は，どうしても複数の領域にまたがってしまうため，単純化が困難といえる．「発生機構に立脚した環境化学工学リスク評価毒性学」のような混合した分野を意識しており，最適な言葉を見出せないまま「環境影響評価」が表現したい意味に近いため使用しているのが実情である．

冒頭で，龍谷大学の先端理工学部に着任した教員の通過儀礼として所信表明をしたほうがおさまりがよいとも思ったが，あくまでこれまでと地続きの研究をしていきたい．

参考文献

[1] Fujimori, T.; Eguchi, A.; Agusa, T.; Tue, N. M.; Suzuki, G.; Takahashi, S.; Viet, P. H.; Tanabe, S.; Takigami, H. Lead Contamination in Surface Soil on Roads from Used Lead-Acid Battery Recycling in Dong Mai, Northern Vietnam. *Journal of Material Cycles and Waste Management* 18(4), pp.599-607, 2016.

[2] Fujimori, T.; Takaoka, M. Direct Chlorination of Carbon by Copper Chloride in a Thermal Process. *Environmental Science & Technology* 43(7), pp.2241-2246, 2009.

[3] Fujimori, T.; Itai, T.; Goto, A.; Asante, K. A.; Otsuka, M.; Takahashi, S.; Tanabe, S. Interplay of Metals and Bromine with Dioxin-Related Compounds Concentrated in E-Waste Open Burning Soil from Agbogbloshie in Accra, Ghana. *Environmental Pollution* 209, pp.155-163, 2016.

[4] Fujimori, T.; Ogura, M.; Eguchi, A.; Takaoka, M. Dechlorination of Short-Chain Chlorinated Paraffins by the Metal Sodium Dispersion Method. *Chemosphere* 283, 131201, 2021.

[5] Mukai, K.; Fujimori, T.; Shiota, K.; Takaoka, M.; Funakawa, S.; Takeda, A.; Takahashi, S. Quantitative Speciation of Insoluble Chlorine in Environmental Solid Samples. *ACS Omega* 4(4), pp.6126-6137, 2019.

[6] Mukai, K.; Fujimori, T.; Anh, H. Q.; Fukutani, S.; Kunisue, T.; Nomiyama, K.; Takahashi, S. Extractable Organochlorine (EOCl) and Extractable Organobromine (EOBr) in GPC-fractionated Extracts from High-Trophic-Level Mammals: Species-Specific Profiles and Contributions of Legacy Organohalogen Contaminants. *Science of the Total Environment* 756, 143843, 2021.