

表-62 各水道事業体の定量限界値 (1)

(単位: $\mu\text{g/L}$)

農薬名	農薬	測定法	八戸圏域水道企業団	神奈川圏内広域水道企業団	大宮市水道局	仙台市水道局	佐久水道企業団	奈良県水道局	埼玉県企業局	福岡県広域水道企業団
チウラム	基準H	SPE-HPLC	0.5	0.5	0.6	0.5	0.5	0.5	0.5	0.5
シマジン (CAT)	基準H	SPE-GC/MS	0.05	0.01	0.3	0.05	0.01	0.01	0.01	0.01
ベンゾカドリン (ベンゾカドリン)	基準H	SPE-GC/MS	0.05	0.01	2	0.05	0.01	0.01	0.01	0.01
1,3-ジクロロベンゼン(D-D)	基準P	PT-GC/MS	0.2	0.2	0.2	0.2	0.2	0.2	0.2	0.2
イソキサチオン	監視P	SPE-GC/MS	0.1	0.1	0.8	0.05	0.1	0.1	0.1	0.1
ダイアジノン	監視P	SPE-GC/MS	0.05	0.01	0.5	0.05	0.01	0.01	0.01	0.01
メトホルン(MEP)	監視P	SPE-GC/MS	0.05	0.02	0.3	0.05	0.02	0.02	0.02	0.02
イソプロチオラン	監視B	SPE-GC/MS	0.05	0.01	4	0.05	0.01	0.01	0.01	0.01
クロロタロニル(TPN)	監視B	SPE-GC/MS	0.05	0.01	5	0.05	0.01	0.01	0.01	0.01
プロピザミド	監視H	SPE-GC/MS	0.05	0.01	5	0.05	0.01	0.01	0.01	0.01
ジクロロメチル(DDVP)	監視P	SPE-GC/MS	0.05	0.01	0.8	0.05	0.01	0.01	0.01	0.01
ベンゾカドリン(BPMC)	監視P	SPE-GC/MS	0.05	0.01	3	0.05	0.01	0.01	0.01	0.01
クロロメチル(CNP)	監視H	SPE-GC/MS	0.01	0.01	0.5	0.01	0.01	0.01	0.01	0.01
イソプロチオラン(IPP)	監視B	SPE-GC/MS	0.05	0.01	0.8	0.05	0.01	0.01	0.01	0.01
E P N	監視P	SPE-GC/MS	0.05	0.05	0.6	0.05	0.05	0.05	0.05	0.05
ベンタゾン	監視H	SPE-GC/MS	0.01	0.01	20	0.01	0.01	0.01	0.01	0.01
カルボフラン	監視P	SPE-GC/MS	0.01	0.01						0.01
		SPE-HPLC			0.5	0.1		0.1	0.5	
2,4-ジクロロベンゼン(2,4-D)	監視H	SPE-GC/MS	0.02	0.02	3	0.02	0.02	0.02	0.02	0.02
トリクロビル	監視H	SPE-GC/MS	0.02	0.02	0.6	0.02	0.02	0.02	0.02	0.02
アセフェート	監視P	SPE-HPLC	2	0.2	8	1		0.2	1	
イソフェンホス	監視P	SPE-GC/MS	0.1	0.01	0.1	0.05	0.01	0.01	0.01	0.01
クロロピリホス	監視P	SPE-GC/MS	0.05	0.01	0.4	0.05	0.01	0.01	0.01	0.01
トリクロロホン(DEP)	監視P	SPE-GC/MS	2	2	3	1	2	2	2	
ピリダフェンチオン	監視P	SPE-GC/MS	0.1	0.02	0.2	0.05	0.02	0.02	0.02	0.02
イプロジオン	監視B	SPE-GC/MS	0.1	0.01	30		0.01	0.01	0.01	0.01
		SPE-HPLC				2				
イソプロチオラン(イソプロチオラン)	監視B	SPE-GC/MS	0.05	0.01	0.4	0.05	0.01	0.01	0.01	0.01
オキシシン	監視B	SPE-HPLC		0.5	4	0.5		0.5	0.5	0.5
キャブタン	監視B	SPE-GC/MS	0.05	0.02	30	0.05	0.02	0.02	0.02	0.02
クロロネブ	監視B	SPE-GC/MS	0.02	0.01	5	0.05	0.01	0.01	0.01	0.01
トルクロホスメチル	監視B	SPE-GC/MS	0.02	0.01	8	0.05	0.01	0.01	0.01	0.01
フルトラニル	監視B	SPE-GC/MS	0.02	0.01	20	0.05	0.01	0.01	0.01	0.01
ベンシクロン	監視B	SPE-GC/MS	0.05	0.02	4	0.05	0.02	0.02	0.02	0.02
メタラキシル	監視B	SPE-GC/MS	0.5	0.01	5	0.2		0.01	0.01	0.01
メプロニル	監視B	SPE-GC/MS	0.05	0.01	10	0.05	0.01	0.01	0.01	0.01
アシュラム	監視H	SPE-HPLC		0.5	20	0.5		0.5	0.5	0.5
ジチオビル	監視H	SPE-GC/MS	0.2	0.01	0.8	0.01		0.01	0.01	0.01
テルブカルブ(MBPMC)	監視H	SPE-GC/MS	0.02	0.01	2	0.05	0.01	0.01	0.01	0.01
ナプロバミド	監視H	SPE-GC/MS	0.1	0.01	3	0.05	0.01	0.01	0.01	0.01
ピリプチカルブ	監視H	SPE-GC/MS	0.05	0.01	2	0.01		0.01	0.01	0.01
ブタミドホス	監視H	SPE-GC/MS	0.1	0.02	0.4	0.05	0.02	0.02	0.02	0.02
ベンスリド(SAP)	監視H	SPE-GC/MS						0.2		0.2
		SPE-HPLC		2	10	2			2	2
ベンフルラリン	監視H	SPE-GC/MS	0.05	0.01	8	0.05	0.01	0.01	0.01	0.01
ベンディメタリン	監視H	SPE-GC/MS	0.05	0.01	5	0.05	0.01	0.01	0.01	0.01
メコプロップ(MCPP)	監視H	SPE-HPLC		0.5		0.5		0.5	0.5	0.5
		SPE-GC/MS	0.02		0.5				0.05	0.01
メチルダイムロン	監視H	SPE-GC/MS	0.05	0.01	3	0.05	0.01	0.01	0.01	0.01

表-62 各水道事業者の定量限界値 (2)

(単位: $\mu\text{g/L}$)

農薬名	農薬	測定法	八戸圏域水道企業団	神奈川圏内広域水道企業団	大坂市水道局	仙台市水道局	佐久水道企業団	奈良県水道局	埼玉県企業局	福岡県広域水道企業団
α -ベンゾエピノ(エンドスルフィン)	薬水P	SPE-GC/MS		0.01	0.1	0.01			0.01	0.01
β -ベンゾエピノ(エンドスルフィン)	薬水P	SPE-GC/MS		0.01	0.1	0.01			0.01	0.01
ベンゾエピンスルフェート	薬水P	SPE-GC/MS		0.01	0.1	0.01				0.01
マラチオン	薬水P	SPE-GC/MS		0.01	0.5	0.01		0.01	0.01	0.01
メソミル	薬水P	SPE-HPLC		0.2		0.2				
ベノミル(MBCとして)	薬水B	SPE-HPLC				0.5			0.5	
カルバリル(NAC)	薬水P	SPE-HPLC				0.5				
		SPE-GC/MS		0.01				0.01	0.01	0.01
アラクロール	薬水H	SPE-GC/MS		0.01	0.1	0.01			0.01	0.01
トリフルラリン	薬水H	SPE-GC/MS		0.01	0.1	0.01			0.01	0.01
ニトロフェン(NIP)	薬水H	SPE-GC/MS						0.05		
フェンチオン(MPP)	その他P	SPE-GC/MS			1			0.02		
ベンフラカルブ	その他P	SPE-GC/MS						0.2		
ピロキロン	その他B	SPE-GC/MS						0.1		
シメトリン	その他H	SPE-GC/MS		0.01	1			0.05		
プロメトリン	その他H	SPE-GC/MS						0.05		
プレチラクロール	その他H	SPE-GC/MS		0.01	1			0.05		
ジメビレート	その他H	SPE-GC/MS						0.02		
イソプロカルブ(MIPC)	その他P	SPE-GC/MS						0.02		
プロボキシル(PHC)	その他P	SPE-GC/MS						0.01		
フェントエート(PAP)	その他P	SPE-GC/MS						0.05		
メチダチオン(DATP)	その他P	SPE-GC/MS						0.2		
プロバホス(DPMP)	その他P	SPE-GC/MS						0.1		
ブプロフェジン	その他P	SPE-GC/MS						0.1		
エチルチオメトン	その他P	SPE-GC/MS						0.02		
ジメチルピンプオス	その他P	SPE-GC/MS						0.05		
フサライド	その他P	SPE-GC/MS						0.02		
キントゼン(PCNB)	その他P	SPE-GC/MS			0.1			0.02		
エディフェンホス(EDDP)	その他P	SPE-GC/MS		0.02				0.05		
メトルカルブ(MTMC)	その他P	SPE-GC/MS			1					
ブタクロール	その他H	SPE-GC/MS		0.01	1			0.03		
スウェップ(MCC)	その他H	SPE-GC/MS		0.01				0.02		
プロバニル(DCPA)	その他H	SPE-GC/MS						0.2		
プロベナゾール	その他H	SPE-GC/MS						0.1		
クロルタルジメチル(TCTP)	その他H	SPE-GC/MS						0.02		
ニトロフェン(NIP)	その他H	SPE-GC/MS						0.05		
クロメキシニル(X-52)	その他H	SPE-GC/MS		0.05	0.05			0.1		
オキサジアゾン	その他H	SPE-GC/MS		0.01	1			0.01		
メフェナセツ	その他H	SPE-GC/MS		0.02	1			0.4		
エスプロカルブ	その他H	SPE-GC/MS						0.02		
ダイムロン	その他H	SPE-GC/MS						0.2		
アメトリン	その他H	SPE-GC/MS						0.1		
シアナジン	その他H	SPE-GC/MS						0.4		
グリホサート	その他H	SPE-HPLC						0.5		
モリネート	その他H	SPE-GC/MS			1					
アトラジン	その他H	SPE-GC/MS			1					
プロモチド	その他H	SPE-GC/MS		0.01	1					
ピフェノックス	その他H	SPE-GC/MS		0.02	1					
ペンシルフロメチル	その他H	SPE-GC/MS		0.1						

4 本研究のまとめ

平成 11 年度においては、基準項目（4 項目）、監視項目（15 項目）、ゴルフ場使用農薬（26 項目）、ならびに調査対象地域において未規制ではあるが使用量の多い農薬、さらに今年度から新たに内分泌攪乱化学物質としてリストアップされた農薬の中から使用量が多い、ベンゾエピン、マラソン、メソミル、カルバリル、アラクロール、トリフルラリンの 7 項目を調査対象とした。

内分泌攪乱化学物質関連農薬についてはこれまで関連する情報が整理されていなかったことから、農薬の物性、毒性などプロフィールとして文献調査結果を掲載した。

さらに、実態調査にあたっては内分泌攪乱化学物質関連農薬の分析法が確立していないことから、有機化合物一斉測定方法分科会の協力を得て、ベンゾエピン、マラソン、マラソンオキソン、カルバリル、アラクロール、トリフルラリンは固相抽出ーガスクロマトグラフ質量分析計を用いた一斉分析法を、ベノミル、メソミル、カルバリル(NAC)は高速液体クロマトグラフ法を用いた一斉分析法を検討、確立し実態調査に用いた。

農薬調査は 8 水道事業体において行い、農薬使用量調査は「農薬要覧」（日本植物防疫協会編）を用いて最近の 3 年間（平成 8 年～10 年）、調査対象都道府県の農薬出荷量を殺虫剤、殺菌剤、除草剤別に各出荷量上位 50 物質をリストアップした。また、実態調査で検出された農薬が上位 50 位までに入っていない場合は、その農薬の順位と使用量を調べ、追加することとした。また、調査地域の農薬使用量について、より詳細な情報が農協の販売量等から入手できた場合は、それらの情報も追加した。農薬検出実態調査は水道水源、水道原水、処理過程、浄水について、なるべく農薬の使用時期を考慮して行った。

水道事業体における農薬の検出状況結果については、水源の状況、浄水場の処理工程などの情報を踏まえて整理した。

さらに、全国農薬使用量調査については「農薬要覧」を用いて殺虫剤、殺菌剤、除草剤別に各出荷量上位 50 物質を抽出した。平成 11 年度の全国農薬検出実態調査結果は今年度厚生省の「水道水源における有害化学物質等監視ネットワーク整備事業」で全国 45 浄水場で行われた 2 回／年の調査結果と 8 水道事業体の農薬実態調査結果を合わせて集計した。

今年度の各水道事業体の調査結果を要約すると以下ようになる。

1) 八戸圏域水道企業団

青森県内で農薬販売量が多いものは、グリホサート、ジクワット、ピリブチカルブ、アセフェート、ペンタゾンであり、シアナジン、ジチオピルはほとんど使用されておらず、トリクロピル、2,4-D も使用量は少なかった。

農薬検出実態調査では昨年度調査と同様にペンタゾンが調査期間を通じて原水、浄水から検出された。その他には 2,4-D、ピリブチカルブ原水から検出されたが、浄水ではいずれも不検出であった。

浄水場では水道水の安全性を高めるため、農薬除去を目的とした活性炭処理を、奥入瀬浄水場では平成 6 年から、白山浄水場では平成 7 年から、根城浄水場では平成 10 年から実施しており、検出された農薬数は大幅に減少した。

2) 仙台市水道局

今年度の調査結果からは、監視項目のイソプロチオランとベンタゾン以外はほとんど問題は見られなかった。

イソプロチオランは、県内における殺菌剤使用量では第 3～4 位にあり、また、ベンタゾンについても県内における除草剤使用量で 20 位付近にあった。

イソプロチオランは、6 月から 8 月にかけて、ベンタゾンについては 6 月から 7 月にかけて最大検出値を示し、散布時期と符合した。

3) 埼玉県水道局

農薬使用量調査の結果、殺虫剤は 10 位以内に D-D、MEP、ダイズリン、DDVP、ミシル等が、殺菌剤としては IBP、トルコホスチル、キプロタシ、チラム、イプロチオラン、TPN 等が、除草剤にはペンタメリン、ベンチカルブ、トリフルリン等が入っていた。また、内分泌かく乱化学物質関係 7 農薬すべてが、用途別使用量の 50 位以内に入っていた。

農薬検出調査で検出頻度の多かった農薬は、殺虫剤ではダイズリン、カバリン、殺菌剤ではイプロチオラン、IBP、除草剤ではベンタゾン、2,4-D、アラコールであった。

今回の測定で麦類、野菜、花卉等の栽培の除草剤として使用されているトリフルリン（除草剤）が浄水場の原水、沈殿水、浄水ではじめて検出された。検出濃度は $1\mu\text{g/L}$ を超えたものはなく、又、ほとんどが指針値等の 1/10 以下で定量下限値を僅かに超えた程度であった。

4) 神奈川県内広域水道企業団

出荷量の増加傾向が著しい農薬は、除草剤の MCPB、DCMU、アシュラム、DPA、2,4-D 等であり、殺虫剤と殺菌剤には著しく増加した農薬はなかった。

原水及び浄水から検出した農薬は 9 項目（フェノブカルブ、イプロベンホス、ベンタゾン、2,4-ジクロロフェノキシ酢酸、フルトラニル、テルブカルブ等）で、そのうち指針値等の基準が設けられている農薬は 6 項目であったが、何れの項目も基準値等の 10% 以内であった。

検出頻度の高い農薬は監視項目のベンタゾンが 3 回測定中何れも検出し、ゴルフ場使用農薬のテルブカルブは出荷量が 50 位以下であるが、7 回測定中、6 回検出しており、両項目とも原水及び浄水にも検出していた。

5) 佐久水道企業団

佐久平における農薬の販売量調査と長野県内の販売量を調査し比較した。県内では、殺菌剤・殺虫剤・除草剤ともに販売量上位 10 品目ほどは年変動が少なく下位になるほど入替わりが激しい傾向にあった。また、上位 10 品目の占有率は殺菌剤・殺虫剤が 8 割と特に伸びを示し、除草剤は 82～83% を維持していた。

また、殺虫剤の特徴としては、細菌製剤である B T や天敵類を増殖させる薬剤などの生物由来のものが急増した。一方、佐久平においても長野県内と同様の傾向がみられるものの、使用品目に地域の特徴が見られた。

検出農薬調査については、昨年度地下水から検出されたベンタゾンは、今年は販売

実績が無く、不検出であった。

6) 大阪市水道局

大阪市水道局の水道水源は琵琶湖淀川水系から取水しているため、農薬出荷量上位 50 品目の値は、滋賀県、京都府、大阪府及び奈良県の数値を合計したものをを用いた。したがって、実際に農薬を使用する田畑の分布を考慮すると、琵琶湖淀川水系に直接流入しない分も相当数あると思われるためやや過大な値になると推定される。

浄水場の高度浄水処理系、通常処理系の測定結果からは、原水、浄水共に基準値（又は指針値、目標値等）の 10 分の 1 を超えて検出された農薬はまったくなかった。

平成 11 年度に淀川本川で検出された農薬は、10 月に桂川宮前橋で 2,4-ジクロロフェノキシ酢酸が、淀川流入支川では中流部の穂谷川でダイズノ殺虫剤が検出されたのみであった。

7) 農薬使用量としては、従来から水稻用として使用量の多い MEP、BPMC（殺虫剤）、IBP、フルトラニル（殺菌剤）、ベンチオカーブ、メフェナセット（除草剤）が減少していた。使用量が増加した農薬はベンフラカルブ（殺虫剤）、ピロキロン、プロベナゾール、フラメトピル（殺菌剤）、ダイムロン、ピリブチカルブ、ジメピペレート（除草剤）等であった。除草剤はボトル剤、パック剤等の作業性に優れる薬剤が増加しており、今後これらの成分農薬の増加が予想される。

室生ダム流域での水稻農薬使用量が 100 kg を超過する農薬のダム流入地点での検出濃度は、BPMC、MPP 以外は、数 $\mu\text{g/L}$ 程度と高い結果となった。

検出状況は、ダム流入地点で 22 種、原水で 17 種、浄水で 6 種の農薬が検出されたが、平成 10 年度よりも検出農薬数は減少していた。原水での検出濃度が高いのは、ベンフラカルブ、イソプロチオラン、IBP、フルトラニル、ピロキロン、プロメトリンであり、浄水ではピロキロンであった。

基準値等を超過して検出される農薬はないが、原水での総検出農薬濃度は 10~15 $\mu\text{g/L}$ に達する時期があり、検査対象以外の農薬を考慮すれば、さらに高くなることが危惧される。このため、原水の総農薬濃度による浄水処理対策指針が必要と考える。また、ベンタゾンは農閑期にも係わらず年間を通じて原水で検出され、河川調査でも水田の影響をうける場所で検出された。また、基準値等が設定されていないが、流域で検出濃度が高い農薬は、殺菌剤はピロキロン、殺虫剤はベンフラカルブ、除草剤はメフェナセット、ジメピペレート、プレチラクロール、シメトリンであった。さらに、基準値等の設定はないが、使用量が多いか、または増加しておりモニタリングが必要と判断された農薬は、殺菌剤がチオフアネートメチル、フェリムゾン、オキシリニック酸、フラメトピル、殺虫剤がカルタップ、モノクロトフォス、エトフェンブロックス、除草剤はダイムロン、ベンゾフェナップ、ACN、カフェンストロールテニルクロール、イマザスルフロン、ベンスルフロンメチルであった。

8) 福岡県南広域水道企業団

福岡県内では 3 ヶ年を通じて 100 トン以上出荷されたものは、殺虫剤では臭化メチル、D-D、マシン油及びクロルピクリンの 4 農薬であり、殺菌剤では、マンネブ、硫酸銅、除

草剤ではグリホサートであった。内分泌かく乱化学物質関連農薬のメソミル、マラソンは3ヶ年で13～19トン出荷され、トリフルラリンは10～17トン、カルバリルは約4トン、ベノミルは約4～7トン、ベンゾエピンは0.8～2.2トン、アラクロールは2トン程度と比較的出荷量は多かった。また、水稲用として使用されるカルタップは14～24トン程度と多く出荷され、その水溶解度は200g/Lと親水性が高いため公共用水域への流出が懸念される農薬であるが、現在の一斉分析法では分析できないため、今後の分析法の確立が望まれる。

平成11年度4月～10月末までの期間で各処理工程において、測定対象農薬70種類の中で検出された農薬は、原水では殺菌剤がイソプロチオラン、IBP、フルトラニル、ペンシクロン、ピロキロン、除草剤ではブロモブチド、ベンチオカーブ、プレチラクロール、メフェナセット、エスプロカルブ、テニルクロール、殺虫剤ではBPMC、ダイアジノン、ブプロフェジンなどが比較的高頻度・高濃度で検出された。

当企業団では原水中の農薬総量に基づく活性炭注入指針を定め、浄水における農薬総量が $0.4\mu\text{g/L}$ 以下となるように農薬を制御している。

活性炭処理においては、殺菌剤のフルトラニル、イソプロチオラン、ペンシクロン、IBP、除草剤のブロモブチド、プレチラクロール、殺虫剤のBPMC、ブプロフェジン等が活性炭吸着性の低い農薬として挙げられた。浄水では、さらに塩素により一部の農薬が分解するが、殺菌剤のフルトラニル、フサライド、除草剤のブロモブチド、プレチラクロール、殺虫剤のBPMCが検出された。

除草剤のベンタゾンは、原水中で調査期間を通じて毎回必ず検出され、8月初旬に最高値を示した。2,4-Dは8月～9月に、ピリブチカルブは6月下旬～7月中旬にかけて検出された。これらの農薬の中で、ピリブチカルブにおいては浄水中で消失したが、ベンタゾンおよび2,4-Dについては、低減化されているものの、活性炭処理と塩素処理にもかかわらず浄水中に検出された。

9) 全国調査のまとめ

各水道事業体独自で調査した農薬と平成11年度「水道水源における有害化学物質等監視ネットワーク整備事業」で実施した全国45浄水場の監視項目、ゴルフ場使用農薬及び内分泌かく乱化学物質関連21項目についても合わせて解析の対象とした。平成11年度の調査結果をまとめると次のようになる。

(1) 調査データについて

今年度の実態調査については、基準等があるものを除き、分析方法が統一されていないため、定量下限値は各水道事業体で異なるものとなった。したがって、検出率等正確な集計にはならなかったが、傾向はつかめとも考える。

(2) 検出農薬について

調査した105農薬のうち、原水で検出されたのは45農薬で、使用区分内訳は殺虫剤14農薬、殺菌剤13農薬、除草剤18農薬であった。検出率が10%を超えた農薬は、殺虫剤：MEP(12.0%)、BPMC(19.1%)；殺菌剤：イソプロチオラン(39.0%)、IBP(15.1%)、フルトラニル

(21.0%)、ピロキロン(37.9%)；除草剤：チオベンカルブ(23.3%)、ベンタゾン(60.6%)、2,4-D(10.2%)、シメトリン(13.3%)、プロメトリン(27.6%)、ジメピペレート(13.8%)の12農薬であった。

浄水では、22農薬が検出され、使用区分内訳は殺虫剤6農薬、殺菌剤7農薬、除草剤9農薬であった。検出率が10%を超えた農薬は、殺虫剤BPMC(17.0%)、殺菌剤ピロキロン(20.7%)、除草剤ベンタゾン(28.4%)であった。

(2-1) 検出濃度について

原水で検出値が $1\mu\text{g/L}$ を超えた農薬は、TPN($2.2\mu\text{g/L}$)、IBP($1.3\mu\text{g/L}$)、DEP($3\mu\text{g/L}$)、ベンタゾン($7.0\mu\text{g/L}$)、ベンフラカルブ($6.4\mu\text{g/L}$)、ピロキロン($3.9\mu\text{g/L}$)の6農薬で、検出平均値が $1\mu\text{g/L}$ を超えた農薬は、TPN($2.2\mu\text{g/L}$)、DEP($3\mu\text{g/L}$)、ベンフラカルブ($4.6\mu\text{g/L}$)、ピロキロン($3.9\mu\text{g/L}$)の4農薬であった。浄水では、ピロキロン($3.1\mu\text{g/L}$)のみで、検出平均値も $1.6\mu\text{g/L}$ であった。

(2-2) 基準値等との関係

基準値等がある農薬で基準値等の10%を超えて検出された農薬は、原水でシマジン(CAT)、ダイジリン、MEP、IBP、DEP及びピリダフェンチオンの6農薬、浄水はMEPのみであった。

(2-3) 使用量と検出状況について

調査した105農薬のうち、61農薬が使用区分別使用量上位50位以内に入っていた。上位20以内で検出されなかった農薬は、殺虫剤：D-D、アセフェート、エチルオメトン、PAP；殺菌剤：キノ銅、チラム；除草剤：ペンデメタリン、グリホサート、モネート、アシュラム、タイムロンの11農薬であった。検出されなかった理由として散布時期、散布地域、環境中での分解性等の物性、分析の定量下限値等によるものと思われる。

調査期間は、貯水池に *Anabaena* の発生が認められると予想される平成 11 年 7 月から 10 月とし、調査頻度は、原則として月 2 回とした。

(3)分析

a)分析項目

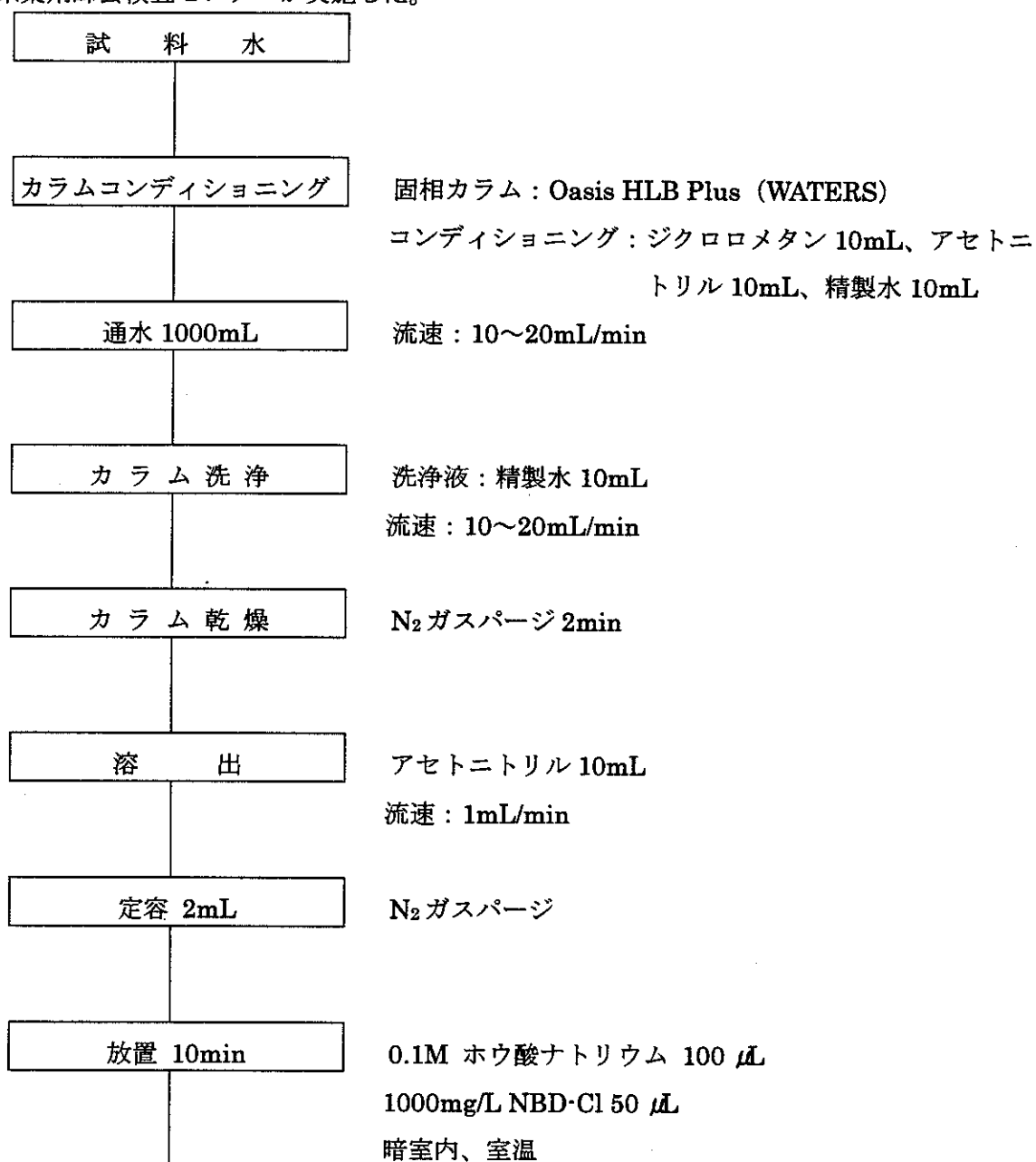
アナトキシン-a 及び *Anabaena* 群体、細胞数とした。

b)試料水の前処理及び分析方法

アナトキシン-a は、図-1 のフローに従い前処理（固相抽出）を行い、HPLC/蛍光分析法により定量（定量下限値 0.0001mg/L）を行った。

Anabaena 群体、細胞数は、*Microcystis* と同様に顕微鏡法により計測を行った。

なお、アナトキシン-a の分析及び *Anabaena* 群体、細胞数の計測については（財）千葉県薬剤師会検査センターが実施した。



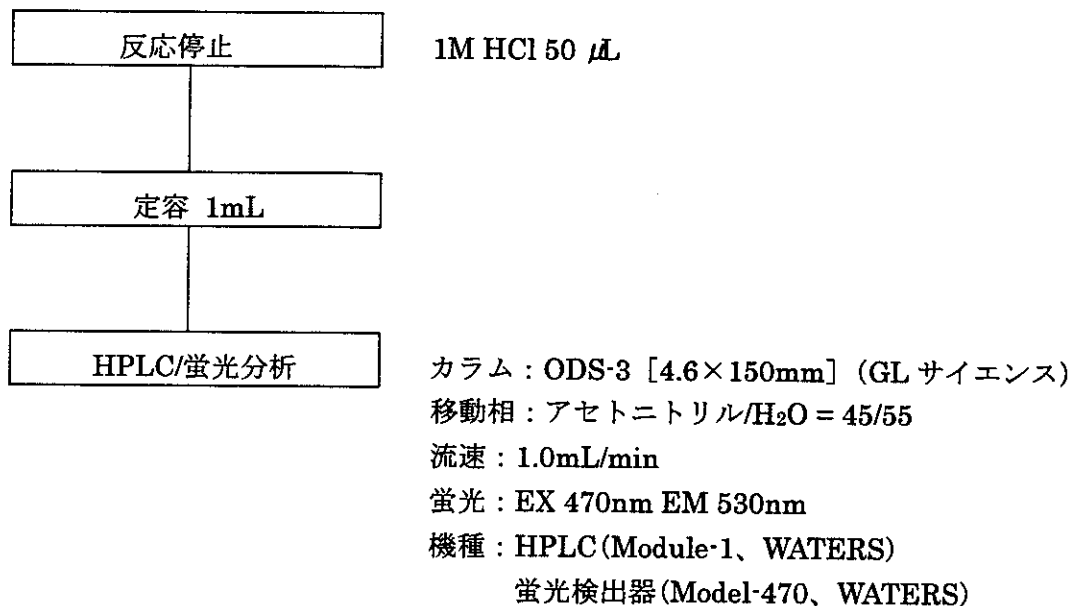


図-1 アナトキシン-a の分析フロー

1.4 調査結果

(1) ミクロキスティン-LR、RR、YR

水道原水・浄水中のミクロキスティン-LR、RR、YR の調査結果をそれぞれ表-1、表-2 に示した。原水中に *Microcystis* が認められた水源は、印旛沼、琵琶湖であり、印旛沼では、*Microcystis* 細胞数が7月12日、26日にそれぞれ12000個/mL、8000個/mLであった。

原水・浄水中のミクロキスティン-LR、RR、YRは、全試料水から検出されなかった。

(2) アナトキシン-a

水道原水・浄水中のアナトキシン-a の調査結果を表-3 に示した。原水中に *Anabaena* が認められた水源は、印旛沼、霞ヶ浦であり、印旛沼では *Anabaena* 細胞数が8月10日、10月12日、26日にそれぞれ17000個/mL、31000個/mL、43000個/mLであった。

水道原水・浄水中のアナトキシン-aは、全試料水から検出されなかった。

表-1 平成11年度 水道原水中のマイクロシスチン測定結果

水源	採水日	マイクロシスチン ($\mu\text{g/L}$)			Microcystis (個/mL)	
		LR	RR	YR	群体	細胞
霞ヶ浦 (茨城県)	7.13	<0.1	<0.1	<0.1		0
	7.27	<0.1	<0.1	<0.1		0
	8.9	<0.1	<0.1	<0.1		0
	8.24	<0.1	<0.1	<0.1		0
	9.13	<0.1	<0.1	<0.1		0
	9.27	<0.1	<0.1	<0.1		0
	10.12	<0.1	<0.1	<0.1		0
	10.25	<0.1	<0.1	<0.1		0
印旛沼 (千葉県)	7.12	<0.1	<0.1	<0.1		12485
	7.26	<0.1	<0.1	<0.1		8620
	8.9	<0.1	<0.1	<0.1		1688
	8.23	<0.1	<0.1	<0.1		1460
	9.13	<0.1	<0.1	<0.1		1688
	9.27	<0.1	<0.1	<0.1		2960
	10.12	<0.1	<0.1	<0.1		1720
	10.25	<0.1	<0.1	<0.1		1024
相模湖 (横浜市)	7.13	<0.1	<0.1	<0.1		0
	7.26	<0.1	<0.1	<0.1		0
	8.10	<0.1	<0.1	<0.1		0
	8.24	<0.1	<0.1	<0.1		0
	9.7	<0.1	<0.1	<0.1		0
	9.22	<0.1	<0.1	<0.1		0
	10.19	<0.1	<0.1	<0.1		0
	10.27	<0.1	<0.1	<0.1		0
烏原貯水池 (神戸市)	8.2	<0.1	<0.1	<0.1		0
	8.16	<0.1	<0.1	<0.1		0
琵琶湖 (京都市)	7.22	<0.1	<0.1	<0.1	1	
	8.5	<0.1	<0.1	<0.1	0	
	8.25	<0.1	<0.1	<0.1	10	
	9.9	<0.1	<0.1	<0.1	2	
	9.29	<0.1	<0.1	<0.1	17	
	10.22	<0.1	<0.1	<0.1	4	
	10.27	<0.1	<0.1	<0.1	11	
琵琶湖 (滋賀県)	7.7	<0.5	<0.5	<0.5	0	
	7.13	<0.5	<0.5	<0.5	0	
	8.2	<0.5	<0.5	<0.5	0	
	9.3	<0.5	<0.5	<0.5	0	
	9.13	<0.5	<0.5	<0.5	17	
	10.13	<0.5	<0.5	<0.5	0	
	10.28	<0.5	<0.5	<0.5	0	
琵琶湖 (大津市)	7.12	<0.1	<0.1	<0.1	0	
	8.12	<0.1	<0.1	<0.1	0	
	8.23	<0.1	<0.1	<0.1	0	
	8.17	<0.1	<0.1	<0.1	0	
	9.1	<0.1	<0.1	<0.1	0	
	9.21	<0.1	<0.1	<0.1	0	
	10.4	<0.1	<0.1	<0.1	0	
	10.18	<0.1	<0.1	<0.1	0	

表-2 平成11年度 水道浄水中のマイクロキスティン測定結果

水源	採水日	マイクロキスティン ($\mu\text{g/L}$)		
		LR	RR	YR
霞ヶ浦 (茨城県)	7.13	<0.1	<0.1	<0.1
	7.27	<0.1	<0.1	<0.1
	8.9	<0.1	<0.1	<0.1
	8.24	<0.1	<0.1	<0.1
	9.13	<0.1	<0.1	<0.1
	9.27	<0.1	<0.1	<0.1
	10.12	<0.1	<0.1	<0.1
	10.25	<0.1	<0.1	<0.1
印旛沼 (千葉県)	7.12	<0.1	<0.1	<0.1
	7.26	<0.1	<0.1	<0.1
	8.9	<0.1	<0.1	<0.1
	8.23	<0.1	<0.1	<0.1
	9.13	<0.1	<0.1	<0.1
	9.27	<0.1	<0.1	<0.1
	10.12	<0.1	<0.1	<0.1
	10.25	<0.1	<0.1	<0.1
相模湖 (横浜市)	7.13	<0.1	<0.1	<0.1
	8.24	<0.1	<0.1	<0.1
	9.7	<0.1	<0.1	<0.1
	10.27	<0.1	<0.1	<0.1
烏原貯水池 (神戸市)	8.2	<0.1	<0.1	<0.1
	8.16	<0.1	<0.1	<0.1
琵琶湖 (京都市)	7.22	<0.1	<0.1	<0.1
	8.5	<0.1	<0.1	<0.1
	8.25	<0.1	<0.1	<0.1
	9.9	<0.1	<0.1	<0.1
	9.29	<0.1	<0.1	<0.1
	10.27	<0.1	<0.1	<0.1
琵琶湖 (滋賀県)	7.7	<0.5	<0.5	<0.5
	7.13	<0.5	<0.5	<0.5
	8.2	<0.5	<0.5	<0.5
	9.3	<0.5	<0.5	<0.5
	9.13	<0.5	<0.5	<0.5
	10.13	<0.5	<0.5	<0.5
	10.28	<0.5	<0.5	<0.5
琵琶湖 (大津市)	7.12	<0.1	<0.1	<0.1
	8.12	<0.1	<0.1	<0.1
	8.23	<0.1	<0.1	<0.1
	8.17	<0.1	<0.1	<0.1
	9.1	<0.1	<0.1	<0.1
	9.21	<0.1	<0.1	<0.1
	10.4	<0.1	<0.1	<0.1
	10.18	<0.1	<0.1	<0.1

表-3 平成11年度 水道原水・浄水中のアナトキシン測定結果

水源	採水日	アナトキシン-a ($\mu\text{g/L}$)		原水 <i>Anabaena</i> (個/mL)	
		原水	浄水	群体	細胞
霞ヶ浦 (茨城県)	7.13	<0.1	<0.1	660	6100
	7.27	<0.1	<0.1	670	6290
	8.9	<0.1	<0.1	390	4140
	8.24	<0.1	<0.1	140	1260
	9.13	<0.1	<0.1	50	610
	9.27	<0.1	<0.1	10	200
	10.12	<0.1	<0.1	10	120
	10.25	<0.1	<0.1	0	0
印旛沼 (千葉県)	7.13	<0.1	<0.1	0	0
	7.27	<0.1	<0.1	20	1040
	8.10	<0.1	<0.1	600	17800
	8.24	<0.1	<0.1	60	2430
	9.13	<0.1	<0.1	70	2100
	9.28	<0.1	<0.1	230	8800
	10.12	<0.1	<0.1	1630	31800
	10.26	<0.1	<0.1	4600	43600
相模湖 (横浜市)	7.13	<0.1	<0.1	0	0
	7.26	<0.1	<0.1	0	0
	8.10	<0.1	<0.1	0	0
	8.24	<0.1	<0.1	0	0
	9.7	<0.1	<0.1	0	0
	9.22	<0.1	<0.1	0	0
	10.19	<0.1	<0.1	0	0
	10.27	<0.1	<0.1	0	0

2. Microcystin、anatoxin-a の二酸化塩素処理による分解挙動及び microcystin の分解生成物の毒性に関する研究

2.1 研究目的

富栄養化の進行した湖沼、河川に発生するアオコは、魚類のへい死、カビ臭の発生、浄水工程におけるろ過障害など様々な問題を引き起こすとともに、アオコの一部が microcystin や anatoxin-a といった毒素を産生することが明らかとなっている¹⁾。有毒アオコの発生は日本を始め世界各地で見られ、海外ではそれを摂取した家畜や野生動物が死亡する事件が頻繁に起こっている²⁾。1996 年にはブラジルで、microcystin に汚染された水を腎透析に使用したことが原因で 50 人が死亡する事件が発生した³⁾。こうした状況の中、1998 年 3 月 WHO は、microcystin の飲料水中の暫定ガイドライン値（飲料水 1 L あたり microcystin-LR として 1 μ g）を設定した⁴⁾。

我々は昨年度の本研究において、microcystin がオゾン処理によって容易に酸化分解され、その急性毒性及びプロテインフォスファターゼ阻害活性が消滅するとともに、分解生成物が変異原性を示さないことを明らかにした⁵⁾。今回、二酸化塩素による microcystin-LR、-RR 及び anatoxin-a（図 1）の分解挙動と、microcystin の分解生成物の毒性について検討を行った。

2.2 研究方法

(1) 試薬

Microcystin-LR、microcystin-RR は和光純薬製、anatoxin-a は Calbiochem 製、二酸化塩素は TSI 社製二酸化塩素簡易発生ケミカル MagicKlor を使用した。その他については、和光純薬製の試薬特級を使用した。

二酸化塩素水は、MagicKlor 20 g を超純水 1 L に溶解して調製した二酸化塩素水の原液を、使用時に超純水で希釈して調製した。

(2) Microcystin 及び anatoxin-a の二酸化塩素処理による分解挙動

a) Microcystin

初期濃度 1.1–0.6 mg/L の二酸化塩素水 50 mL に、microcystin-LR あるいは microcystin-RR を濃度が 2.0、1.0、0.5、0.1 mg/L となるように添加し、25℃で最長 17 時間後までの分解挙動を調べた。

b) Anatoxin-a

初期濃度 0.2–8.2 mg/L の二酸化塩素水 50 mL に、anatoxin-a を濃度が 1.0 mg/L となるように添加し、25℃で 6 日後までの分解挙動を調べた。

(3) Microcystin の二酸化塩素処理による分解生成物の調製（毒性試験用）

初期濃度 0.8 mg/L の二酸化塩素水 1 L に microcystin-LR あるいは microcystin-RR を濃度が 3.0

mg/L となるように添加し、25℃で18時間反応させた。反応終了後、反応液中の二酸化塩素を除去するために窒素ガスで60分間バブリングし、最終的にアスコルビン酸ナトリウムを添加することにより反応を停止させた。反応液は凍結乾燥後、毒性試験用試料とした。なお、二酸化塩素処理後の反応液中の microcystin 濃度は、HPLC 分析により定量限界値以下 (0.1 mg/L) であることを確認した。また、microcystin を添加しないブランクについても、同様に操作を行った。

(4) 分析方法

a) 二酸化塩素濃度

二酸化塩素濃度は、上水試験法⁶⁾ (イオンクロマトグラフィー及びジエチル-p-フェニレンジアミン法) により測定を行なった。

イオンクロマトグラフィー法の分析条件は以下の通りである。

イオンクロマトグラフ ; DX-120、DIONEX

分離カラム ; Ion Pac AS12A (4 x 200 mm)

ガードカラム ; Ion Pac AG12A (4 x 50 mm)

溶離液 ; 2.7 mmol Na₂CO₃/0.3mmol

NaHCO₃, 流量 ; 1.5 mL/min

注入量 ; 25 μL

サプレッサー ; ASRS

b) Microcystin 濃度

Microcystin 濃度は、HPLC 法により測定を行った。HPLC 分析条件は、以下の通りである。

HPLC ポンプ ; 島津 LC-9A

検出器 ; 島津 SPD-M10A フォトダイオ

ードアレイ検出器

カラム ; Inertsil ODS 150 x 4.6 mm I.D.

移動相 ; メタノール : 0.05M リン酸緩衝

液 (pH 3.0) (57/43)

流速 ; 1 mL/min

検出波長 ; UV 210nm、238 nm

c) Anatoxin-a 濃度

Anatoxin-a 濃度は、LC/MS 法により測定を行った。LC/MS 分析条件は、以下の通りである。

HPLC

HPLC システム ; Waters Alliance 2690

カラム ; Inertsil ODS3 (150 x 2.1 mm)

移動相；メタノール：0.01M 酢酸アン

モニウム水溶液 (pH 5.0) (10/90)

流速；0.2 mL/min

カラム温度；40℃

試料注入量；10 μ L

MS

質量分析計；Quattro-LC

イオンモード；ポジティブ

コーン電圧；39V

SIR；M/Z 166

(5) Microcystin の二酸化塩素処理による分解生成物の急性毒性試験

a) 試験液の調製

3 で調製した分解生成物を、注射用蒸留水で 100、250、500 μ g/mL の濃度に希釈して試験液とした。なお、試験液の濃度調製は、二酸化塩素処理に使用した microcystin 量を基に行った。

Microcystin-LR は、生理食塩水で 3.75、7.5、15 μ g/mL の濃度に、また、microcystin-RR は、同様に 15、30、60 μ g/mL の濃度に希釈して試験液とした。

b) 投与試験

実験動物は ddY 系雄マウス (体重 23.0–30.0 g) を 36 匹用いた。投与量は、microcystin-LR 及び-RR の二酸化塩素処理分解物は 1.0、2.5、5.0 mg/kg、microcystin-LR は 37.5、75、150 μ g/kg、microcystin-RR は 150、300、600 μ g/kg とした。注射量は、1.0 mg/kg の場合、100 μ g/mL の試験液を次式に従い腹腔内に注射した。

注射量 (mL) = マウスの体重 (g) / 100

また、他の投与量についても同様に試験液を注射した。

個体数は各群 3 匹、観察期間は投与後 1 週間とした。

c) LD₅₀ の算出⁷⁾

LD₅₀ は、Van Der Waerden 法により算出した。

(倫理面への配慮)

急性毒性試験により LD₅₀ を推定する標準的な方法はプロビット法とするのが現在の大勢である。しかし、この方法では一群約 10 匹のマウスを使用する必要があり、その個体数の多さが、動物愛護の面から問題点として指摘されている。そこで今回、使用する個体数が少なくすむ Van Der Waerden 法により、LD₅₀ を算出した。

(6) Microcystin の二酸化塩素処理による分解生成物の変異原性試験

a) 試験液の調製

3で調製した分解生成物にメタノール1 mLを添加し、変異原性試験用溶液(600 μ g/mL)とした。

b) 変異原性試験

高感度Ames法⁶⁾に準じて以下の通り行なった。試験菌株は、*S. typhimurium* TA98菌及びTA100菌を使用し、S9mix無添加及び添加条件で行った。試験菌株を37°Cで約13時間振とう培養して得た菌懸濁液(100 mL)中の菌を遠心分離(9000 g、4°C、15分)により集めた後、0.015Mのリン酸緩衝液(pH7.4、10 mL)に再懸濁し、10倍濃度の菌懸濁液を調製した。次に、予めジメチルスルフォキシド2 μ Lを加えた小試験管に変異原性測定溶液50~200 μ Lをそれぞれ分注し、40°C以下で溶媒変換した。この小試験管に菌懸濁液50 μ L、S9mixまたは0.015Mリン酸緩衝液50 μ Lを加え、Kadoら⁸⁾の方法に準じてインキュベーション及びその後の操作を行った。

2.3 研究結果

(1) Microcystinの二酸化塩素処理による分解挙動

初期濃度0.8 mg/Lに調整した二酸化塩素水50 mLにmicrocystin-LRあるいはmicrocystin-RRを濃度が1.0 mg/Lとなるように添加し、25°Cで反応を行なった時の、microcystin-LR、-RRの分解挙動を図2に示した。Microcystin-LRの方がmicrocystin-RRよりも減少がより速やかであったが、16時間後にはmicrocystin-LR、-RRともに残存率が10%以下となった。

次に、二酸化塩素濃度の違いによるmicrocystin-LRの分解挙動について検討した結果を図3に示した。二酸化塩素濃度が0.6、0.8、1.0 mg/Lと上がるにつれて、microcystin-LRの分解がより速やかになる傾向を示したが、17時間後までにはいずれの二酸化塩素濃度でも、その残存率は10%以下となった。

また、二酸化塩素濃度を一定(0.8 mg/L)にして、microcystin-LR及び-RRの濃度を変化させて処理を行った時の結果を図4に示した。Microcystin-LR、-RRともに、その濃度が0.1 mg/Lの時には速やかに減少し、2時間後には残存率が10%以下となり、また、その濃度が0.5及び1.0 mg/Lの時は、16時間後に残存率が10%以下となった。

(2) Anatoxin-aの二酸化塩素処理による分解挙動

初期濃度を0.8あるいは0.2 mg/Lに調整した二酸化塩素水50 mLに、anatoxin-aを濃度が1.0 mg/Lとなるように添加し、25°Cで反応を行なった時の、anatoxin-aの分解挙動を図5に示した。二酸化塩素濃度が0.8 mg/Lの場合には6日後にanatoxin-aの残存率が10%以下となったのに対して、二酸化塩素濃度が0.2 mg/Lの場合には、6日後でもanatoxin-aの残存率が約65%であった。

二酸化塩素処理をより高濃度（1.4～8.2 mg/L）で行った場合の anatoxin-a の分解挙動を図 6 に示した。この範囲の二酸化塩素濃度で処理した場合には、90 分後でもすべての二酸化塩素濃度で 50%以上の anatoxin-a が残留していた。以上の結果より、二酸化塩素処理による anatoxin-a の分解速度は、microcystin に比べてはるかに遅いことが明らかとなった。

(3) Microcystin の二酸化塩素処理による分解生成物の毒性

a) 急性毒性

Microcystin-LR、-RR 及びそれらの二酸化塩素処理による分解生成物と、ブランク（microcystin を加えないで同様に二酸化塩素処理を行なったもの）について、マウスによるバイオアッセイを行なった。その結果、microcystin-LR が 110 μ g/kg、microcystin-RR が 300 μ g/kg という LD₅₀ 値を示したのに対して、それらの二酸化塩素処理分解生成物の LD₅₀ 値はいずれも 5.0 mg/kg 以上であり、microcystin-LR、-RR の急性毒性は消滅していることが明らかとなった。

b) 変異原性

Microcystin-LR、-RR の二酸化塩素処理分解生成物及びブランクについて、Ames 変異原性試験を行なった結果を図 7 に示した。用いた菌株は *S. typhimurium* TA98 菌株（図 7-1）と TA100 菌株（図 7-2）で、S9mix による代謝活性時及び非代謝活性時で試験した。その結果、microcystin-LR の二酸化塩素処理分解生成物はフレームシフト型の突然変異を引き起こす有機物に感受性を示す TA98 の非代謝活性時で、revertants が高い傾向を示した。その他の TA98 菌株の代謝活性時と TA100 菌株の代謝活性時及び非代謝活性時には変異原性を示さなかった。一方、microcystin-RR の分解生成物では、すべての測定条件で変異原性は認められなかった。

2.4 考察

二酸化塩素は、トリハロメタンを生成せず、塩素より広い pH 範囲で強い殺菌力を持ち、残留性もあることから、ヨーロッパでは数多くの浄水施設で用いられている。また、アメリカでもトリハロメタン低減化のために導入され始めている。一方、日本においては、二酸化塩素はその反応生成物である亜塩素酸イオンや塩素酸イオンの毒性が問題とされているため、今のところ使用は許可されていないが、現在実証プラントを用いてその有効性が検討されている。米国環境保護庁は二酸化塩素の最大残留消毒剤量(MRDL)を 0.8 mg/L、亜塩素酸イオンの最大許容濃度(MCL)を 1.0 mg/L としているため、本実験では二酸化塩素濃度 0.8 mg/L を中心に検討した。

二酸化塩素による microcystin の分解挙動に関する研究は、これまでにほとんど行われておらず、Hart and Stott (1993)⁹⁾ の報告があるのみである。それによると、二酸化塩素濃度を 6 mg/L にして処理を行なった場合、4.6 μ g/L の濃度の microcystin-LR を、1 μ g/L 以下に分解すること

ができるものの、通常の浄水処理濃度範囲（2 mg/L 以下）では効果がないとされている。しかし、今回我々が行なった実験では、Hart and Stott (1993)が行なった実験と比べて microcystin 濃度が 0.1 mg/L と約 20 倍高く、かつ二酸化塩素濃度が 0.8 mg/L と約 1/7.5 の場合においても、2 時間後までには microcystin の残存率が 10%以下となり、塩素処理¹⁰⁾と同様に二酸化塩素処理が microcystin の除去に有効であることが明らかとなった。

Anatoxin-a の二酸化塩素による処理に関しては過去に報告例は見あたらない。二酸化塩素による anatoxin-a の分解速度は、microcystin と比べて遅く、二酸化塩素濃度が 0.8 mg/L の場合、残存率が 10%以下になるのに要する時間は、anatoxin-a が 6 日（150 時間）と、microcystin の 15 時間よりも約 10 倍かかることが明らかとなった。また、Rositano and Nicholson (1994)¹¹⁾の報告によると、anatoxin-a を 15 mg/L の濃度の塩素で 30 分間接触させたところ、16%しか除去されず、塩素による除去効果は低いとされている。したがって、anatoxin-a を短時間に分解するには二酸化塩素濃度をかなり高くする必要があり、その際には、反応溶液が黄色に着色してしまうだけでなく、刺激臭も発生すると考えられる。

Microcystin-LR、-RR の二酸化塩素処理分解生成物の LD₅₀ 値は、いずれも 5.0 mg/kg 以上を示し、塩素¹²⁾及びオゾン処理⁵⁾と同様に、microcystin-LR、-RR の急性毒性が消滅することが明らかとなった。一方、変異原性については、microcystin-LR の二酸化塩素処理分解生成物がフレームシフト型の突然変異を引き起こす有機物に感受性を示す TA98 の非代謝活性時で、revertants が高くなる傾向を示した。しかし、これまでの我々の調査では、水道原水から検出された microcystin 濃度の最高値は 2.64 μg/L であり、人が 1 日に 2L の水を飲むと仮定すると、microcystin の分解生成物を 5.28 μg 摂取することになる。この量に対する復帰コロニー数は、自然復帰コロニー数の 2 倍以下となり（図 7-1）、変異原性の問題はないものと推察される。

なお、anatoxin-a の分解生成物の毒性については、実験に必要となる anatoxin-a を入手できず、検討を行なうことができなかった。今後、microcystin と同様に、分解生成物の毒性を明らかにする必要があると考えられた。

2.5 結論

- (1) 初期濃度 0.8 mg/L の二酸化塩素水で処理を行った場合、microcystin-LR、-RR とともにその濃度が 0.1 mg/L の時には速やかに減少し、2 時間後には残存率が 10%以下となり、また、その濃度が 0.5 及び 1.0 mg/L の時は、16 時間後に残存率が 10%以下となった。
- (2) Anatoxin-a (1 mg/L)を、初期濃度 0.8 mg/L の二酸化塩素水で処理したところ、6 日後に残存率が 10%以下となり、microcystin と比べて分解速度が遅いことが明らかとなった。
- (3) Microcystin-LR 及び-RR（いずれの濃度も 1 mg/L）を、初期濃度 0.8 mg/L の二酸化塩素水で 18 時間処理した反応液中からは、microcystin-LR、-RR とともに検出されず、また、それらが有する

急性毒性が消滅 (LD₅₀; 5.0 mg/kg 以上) するとともに、変異原性も認められなかった。

参考文献

- (1) 原田健一、楠見武徳 (1994) 毒素の化学と分析、アオコ—その出現と毒素 (渡辺ら編)、pp 117-164、東京大学出版会。
- (2) 渡辺真利代 (1994) 有毒藍藻の出現、アオコ—その出現と毒素 (渡辺ら編)、pp 55-73、東京大学出版会。
- (3) Jochimsen E. M. et al. (1998) Liver failure and death after exposure to microcystins at a hemodialysis center in Brazil. *New. Engl. J. Med.*, 338, 873-878.
- (4) Falconer, I. R. et al. (1999) Safe levels and safe practices. In: *Toxic cyanobacteria in water; a guide to their public health consequences, monitoring and management.* pp. 155-178 (Chorus, I., Bartram, J. Eds.). London: E & FN Spon.
- (5) ミクロキスティンの水系における挙動及び水道における存在状況調査—Microcystin のオゾン処理による分解と分解生成物の毒性—厚生科学研究補助金・生活安全総合研究事業「水道における化学物質の毒性、挙動及び低減化に関する研究」報告書、(平成 10 年度)
- (6) 上水試験方法 1993 年版、日本水道協会、1993
- (7) LD₅₀ などの推定 (1992) 毒性試験データの統計解析 (毒性試験講座 14)、pp. 135-145、地人書館。
- (8) Kado, N., Manson, C., Eisenstadt, E., and Heieh, D. P. H.: The kinetics of mutagen excretion in the urine of cigarette smokers. *Mut. Res.*, 157, 227-233(1985).
- (9) Hart, J. and Stott, P. (1993) Microcystin-LR removal from water. Report FR 0367, Foundation for water research, Marlow, UK.
- (10) Tsuji, K., et al. (1997) Stability of microcystins from cyanobacteria- IV. Effect of chlorination on decomposition. *Toxicon*, 35, 1033-1041.
- (11) Rositano, J. and Nicholson, B.C., (1994) Water treatment techniques for removal of cyanobacterial toxins from water. Australian Centre for Water Quality Research. Salisbury, South Australia, 55pp (1994)
- (12) Tsuji, K. et al. (1995) Stability of microcystins from cyanobacteria II. Effect of UV light on decomposition and isomerization. *Toxicon*, 33, 1619-1631.