

200501218A

厚生労働科学研究費補助金

健康科学総合研究事業

残留塩素に依存しない
水道の水質管理手法に関する研究

平成17年度 総括・分担研究報告書

平成18年3月

主任研究者 国包章一（国立保健医療科学院）

目次

研究班の構成	1
I. 総括研究報告書	
残留塩素に依存しない水道の水質管理手法に関する研究	5
国包 章一	
II. 分担研究報告書	
1. 残留塩素に依存しない水道の水質管理手法に関する文献調査	17
①諸外国の水道における消毒及び給配水水質管理の状況	19
国包 章一、島崎 大	
②病原性微生物による水道水源等の汚染および感染事例	34
西村 和之	
③消毒技術による微生物損傷性および塩素代替技術の管理手法	36
大瀧 雅寛	
2. 給配水過程における健康リスクに関する検討	43
船水 尚行	
3. 消毒副生成物によるリスクの総括的評価および塩素使用と 免疫毒性の関連に関する検討	69
伊藤 禎彦、大河内 由美子、高橋 恭介、小寺 恵介	
4. 給配水過程における健康リスクと消毒技術に関する検討	81
西村 和之	
5. 消毒技術に関する検討（消毒代替技術間の消毒機構の比較及び それら代替技術の管理手法の開発）	95
大瀧 雅寛	
6. 水道水における微量有機物および再増殖微生物の特性評価	103
国包 章一、島崎 大、春日 郁朗	
III. 研究成果の刊行に関する一覧表	111
IV. 研究成果の刊行物・別刷	115

研 究 班 の 構 成

主任研究者

国立保健医療科学院水道工学部長

国 包 章 一

分担研究者

北海道大学大学院工学研究科教授

船 水 尚 行

京都大学大学院工学研究科教授

伊 藤 禎 彦

県立広島大学生命環境学部教授

西 村 和 之

お茶の水女子大学大学院人間文化研究科助教授

大 瀧 雅 寛

国立保健医療科学院水道工学部主任研究官

島 崎 大

研究協力者

京都大学大学院工学研究科

大河内 由美子

京都大学大学院工学研究科

高 橋 恭 介

京都大学大学院工学研究科

小 寺 恵 介

国立保健医療科学院水道工学部

春 日 郁 朗

厚生労働科学研究費補助金

健康科学総合研究事業

残留塩素に依存しない
水道の水質管理手法に関する研究

平成17年度 総括研究報告書

平成18年3月

主任研究者 国包章一（国立保健医療科学院）

総括研究報告書

残留塩素に依存しない水道の水質管理手法に関する研究

主任研究者 国包 章一 国立保健医療科学院水道工学部長

研究要旨 わが国の水道では塩素消毒と残留塩素保持が義務づけられているが、これらは消毒副生成物の生成に伴う健康リスク増大やカルキ臭の発生に伴う快適性喪失の原因となっており、国民の水道水に対する不安や不信感の要因ともなっている。本研究は水道水の安全性及び快適性のさらなる向上を目的として、わが国の水道の現状と最新の知見に照らして残留塩素保持の意義を再検討し、残留塩素に依存しない水道水質管理のあり方を明らかにする。本年度の主な成果として、諸外国の水道における消毒及び給配水水質管理の状況、病原性微生物による水道水源等の汚染と感染事例、消毒技術による微生物損傷性や塩素代替技術の管理手法に関する文献調査を実施し取りまとめた。残留塩素に依存しない系での健康リスクを確率的に推算するシミュレーションモデルを構築するため、水や食品に関連する感染症の報告数または患者数を調査し、現在入手可能な DALY 値で重み付けをした。また水道原水から給水系にいたるリスクファクターの同定と要素モデルに関する文献調査を実施した。消毒副生成物によるリスクの総括的評価に関する検討として、クロロ酢酸類および Suwannee 川由来天然有機物 (SRNOM) 塩素処理水中の全有機ハロゲン化合物を対象とした染色体異常試験を実施し毒性推定を試みた。また大腸菌培養液、河川水、水道水を対象として総エンドトキシンおよび遊離エンドトキシンの定量を行い、塩素処理条件によるエンドトキシン不活性化量および遊離エンドトキシン増加量の制御可能性を提示した。水道原水が持つ病原性微生物による健康影響リスクの把握を行うために酪農地帯の水道原水と処理水を対象とした病原性微生物の調査を行い、牛糞尿由来のクリプトスポリジウムオーシスト負荷原単位を試算した。塩素消毒と紫外線消毒方法における処理対象細菌の不活化効果の比較を、複数の培地を用いた測定法および回復処理を施した場合の影響の両側面から捉える事を試み、前者では CT 値が高くなるほど重度な損傷となること、また後者では投入線量によらず一定の損傷レベルが得られることが分かった。紫外線消毒法を対象として原水に自生する細菌類を生物線量計として用いる方法の課題点を明らかにした。オゾン-活性炭処理を導入している浄水場を対象として、原水および活性炭表面に付着している真正細菌や真核生物の群集構造を比較し、活性炭表面上に類似した微生物群集構造が形成されていることを示した。

分担研究者	北海道大学大学院工学研究科教授	船水尚行
	京都大学大学院工学研究科教授	伊藤禎彦
	県立広島大学生命環境学部教授	西村和之
	お茶の水女子大学大学院人間文化研究科助教授	大瀧雅寛
	国立保健医療科学院水道工学部主任研究官	島崎 大

A. 研究目的

水道における塩素消毒と残留塩素の保持は、トリハロメタン等消毒副生成物の生成に伴う健康リスクの増大や、カルキ臭の発生に伴う快適性の喪失をもたらすことが重大な欠点であり、また、先に水道水の汚染に起因して集団感染事故をもたらした原虫クリプトスポリジウムは、通常の条件では塩素消毒による不活化が全く期待できないこともよく知られている。本研究では、今日の水道における残留塩素保持の意義と必要性を、わが国の水道の現状と最新の知見に照らして再検討し、残留塩素に依存しない新しい水道水質管理のあり方を明らかにすることにより、水道水の安全性及び快適性のより一層の向上を図ることを目的とする。

B. 研究方法

1. 残留塩素に依存しない水道の水質管理手法に関する文献調査

本研究の前提として、諸外国の水道における消毒及び給配水水質管理の状況、病原性微生物による水道水源等の汚染および感染事例、消毒技術による微生物損傷性および塩素代替技術の管理手法に関する文献調査を実施し、文献レビューとして取りまとめた。

2. 給配水過程における健康リスクに関する検討

残留塩素に依存しない系における健康リスクを確率的に推算するシミュレーションモデルを構築する上で、今年度は(1)検証対象病原微生物の選定および(2)水道原水から給水系にいたるリスクファクターの同定と要素モデルに関する文献調査を実施した。前者では、国立感染症研究所のデータをもとに、日本における感染症の事例、ならびに水系感染症の事例を調査し、年間の発生数を感染症による疾病の影響程度による重み付けを行った。また後者では原水水質+処理系+消毒系+配水池+配水管網+給水系検討のフレームを設定し、消毒系や管網系について文献調査により適切なモデルについて検討を行った。

3. 消毒副生成物によるリスクの総括的評価および塩素使用と免疫毒性の関連に関する検討

(1)消毒副生成物によるリスクの総括的評価に関する検討

クロロ酢酸類および Suwannee River Natural Organic Matters (SRNOM)塩素処理水中の全有機ハロゲン化合物を対象として、チャイニーズハムスター肺細胞を利用した染色体異常試験を実施した。また、クロロ酢酸類の動物実験データを文献より抜粋し、前述の染色体異常試験結果との相関性を利用して、SRNOM 塩素処理水の毒性推定を試みた。

(2)塩素使用と免疫毒性との関連性に関する検討

大腸菌培養液および琵琶湖淀川水系において採取した環境水・水道水を対象として、リムルスアッセイによる総エンドトキシン、遊離エンドトキシンの定量と、平板培養法と DAPI 蛍光染色法を用いた微生物量の測定を行った。また、大腸菌培養液および河川水を塩素処理することにより、各画分のエンドトキシン活性の変化を調べた。

4. 給配水過程における健康リスクと消毒技術に関する検討

水道原水が持つ病原性微生物による健康影響リスクの把握を行うために広島県有数の酪農地帯である備北地方を流れ庄原市の水道原水である西城川に着目し、水道原水と処理水を対象とした病原性微生物の調査を行った。ここでは塩素処理などでは不活化しにくく低濃度でも発症する感染確立の高い微生物であり、主たる汚染源である家畜糞尿中に存在する可能性が高い微生物として、クリプトスポリジウムオーシスト、レジオネラ菌属と *Ba. Cereus* や腸管系微生物を取上げた。

5. 消毒技術に関する検討（消毒代替技術間の消毒機構の比較及び、それら代替技術の管理手法の開発）

(1) 消毒機構が異なることによる消毒効果についての基礎的知見の蓄積

塩素消毒と紫外線消毒方法における処理対象細菌の不活化効果の比較を、複数の培地を用いた測定法および回復処理を施した場合の影響の両側面から捉えることとした。供試細菌として *E.coli* K 12(NBRC3301)を使用し、紫外線照射（濁質有り、無し）と塩素消毒後の試料を選択培地および非選択培地にて測定し、その差より損傷程度を推定した。また消毒後の試料に回復処理を施し、その回復量からも損傷程度を推定した。

(2) 代替技術の導入の際の管理手法の確立

紫外線消毒法を対象とし、原水に自生する細菌類を生物線量計として用いる方法の検討を行った。対象試料は地下水とし、回分試験および流通装置試験を行って、既存の生物線量計であるファージ Q β の結果と比較した。

6. 水道水における微量有機物および再増殖微生物の特性評価

高度浄水処理の 1 つであるオゾン-活性炭処理では、特に、易分解性有機物を生物学的作用によって除去することが可能であるため、配水管路における微生物再増殖を抑制する効果が期待されている。ここではどのような微生物群集構造が活性炭表面に構築されているのか遺伝子レベルから明らかにし、各地の浄水場間の特徴や原水中の微生物群集構造との差異の評価を試みた。オゾン-活性炭処理を浄水処理に導入している全国 7 箇所の浄水場（A~G）を対象とし、原水、活性炭を採取した。また微生物群集構造の解析には、真正細菌の 16S ribosomal RNA 遺伝子（16S rDNA）、および真核生物の 18S ribosomal RNA 遺伝子（18S rDNA）を対象とした PCR-クローニング法及び Terminal-Restriction Fragment Length Polymorphism 法（末端制限酵素断片長多型：TRFLP 法）を採用した。活性炭に付着した細菌数（全菌数）の計数は、蛍光顕微鏡を用いて行った。

（倫理面への配慮）

人体試料を用いた実験や動物実験等倫理上問題となるような実験や調査は行っていない。

C. 研究結果と考察

1. 残留塩素に依存しない水道の水質管理手法に関する文献調査

諸外国の水道における消毒及び給配水水質管理の状況では、国内外の消毒剤および微生物制御に関する基準値、また残留消毒剤や消毒副生成物に関する水質管理の状況につき概観および比較を行った。対照的であるアメリカとオランダを比較したところ、共に消毒副生成物については重要な問題と位置づけられているが、オランダは消毒副生成物対策として消毒剤の残留をやめ、配水管内の微生物再増殖防止を制御することで飲料水の安全性を確保するアプローチを行っている。一方アメリカは、配水システム老朽化の現状から消毒剤の残留をやめることはリスクが大きいと考え、遊離塩素より副生成物の心配の少ないクロロミンを採用する方向にある。

病原性微生物による水道水源等の汚染および感染事例では、水道水、飲料水、汚染事故、感染症、食中毒あるいは、*waterborne disease, outbreaks, infections disease* 等のキーワードにより病原性微生物による水道水汚染に関する文献を整理した。飲料水を原因とする感染性微生物による発症事例は、現在でも発生しつづけており、クリプトスポリジウム等の塩素耐性微生物の場合を除き、維持管理上の不備等といった人為的なミスと最終バリアーである消毒操作の不備が重なることにより引き起こされる場合が多い事を示した。従って、残留消毒剤に依存しない水道を実現する為には、維持管理ミスを極力無くすと同時に「管理ミスによる汚染事故は必ず起こる」事を前提にした最終バリアーとしての代替消毒手法についての検討が必須であると考えられる。

また消毒技術による微生物損傷性および塩素代替技術の管理手法では、各消毒技術間の微生物損傷程度の比較や紫外線消毒のモニタリング手法、また最新の科学的知見から各種ウイルスの紫外線処理における感受性を取りまとめた。

2. 給配水過程における健康リスクに関する検討

水や食品に関連する14の感染症（クリプトスポリジウム症、ジアルジア症、腸管出血性大腸菌、レジオレラ、ノロウイルス、ロタウイルス、細菌性赤痢、腸チフス・パラチフス、コレラ、サルモネラ、腸炎ビブリオ、黄色ブドウ球菌、ウェルシュ菌、セレウス菌）について感染の報告数、または患者数を調査し、現在入手可能な DALY 値で重み付けをした結果、腸管出血性大腸菌の報告数×DALY 値が他の疾病に比べて、非常に大きくなった。これは、腸管性大腸菌による疾病の重篤さを反映して DALY 値が他と比べて非常に大きいことによっている。しかし、サルモネラやノロウイルスなどの DALY がまだ把握できていないことから、どの感染症に注目するかについてはもう少し議論を必要とすると思われる。

原水水質＋処理系＋消毒系＋配水池＋配水管網＋給水系原水から給水系にいたる検討のフレームについて、健康リスク解析における DALY 値の有用性について、米国、オランダの事例を検証した。消毒系については塩素の消費と副生成物、オゾン処理における臭素酸塩生成に関するモデルを調査した。また、バイオフィーム制御のために次亜塩素酸塩イオン (ClO_2^-) と二酸化塩素 (ClO_2) の相対的な効率に関する議論を検討した。管網における

生物膜生成と制御に関連するモデルについて、生物膜生成と滞留時間、BDOCまたはAOC、消毒剤濃度等の関係を表現するモデルを調査した。また、AOCの水処理工程における処理効率についての検討も調査した。

3. 消毒副生成物によるリスクの総括的評価および塩素使用と免疫毒性の関連に関する検討

(1) 消毒副生成物によるリスクの総括的評価に関する検討

SRNOM 塩素処理水の染色体異常誘発性試験から求めた D20 値に対して、クロロ酢酸類で得られた両試験の相関関係を適用した結果、SRNOM 塩素処理水中の全有機ハロゲン化合物の毒性は、平均的にトリクロロ酢酸程度であると評価されたが、今後は発がんプロモーション活性の指標である形質転換試験の結果や発がん性に関しても併せて評価する必要がある

(2) 塩素使用と免疫毒性との関連性に関する検討

代表的な免疫毒性物質であるエンドトキシンは環境水・水道水中濃度を調べた結果、下水処理水放流口周辺ではその他の地点の約 10 倍濃度で検出されること、また水道水中では環境水の 1/10～1/100 に低減していることを示した。環境水中の微生物一細胞当たりのエンドトキシン活性は、大腸菌一細胞当たりの約 1/5 程度と試算された。一方、塩素処理により総エンドトキシン活性は低下する反面、遊離エンドトキシンは増大することを示すとともに、塩素注入条件によるエンドトキシン不活性化量および遊離エンドトキシン増加量の制御可能性を提示した。今後はヒトの培養細胞などを用いたアッセイにより、リムルスアッセイで定量された環境水由来のエンドトキシンが示す生体毒性を別途評価していく必要がある。

4. 給配水過程における健康リスクと消毒技術に関する検討

研究対象地域の概要は、集水域面積約 268km²、人口は約 7800 人であり、乳牛 350 頭、肉牛 700 頭、豚 1900 頭 (H16 年度) が飼育されていると推計され、経年的に BOD (75% 値) が 1 mg/L 以下で推移する A 類型河川であった。平成 17 年度冬季に 2 回実施した調査により、ドットプロットハイブリダイゼーション法による DNA 検出法と NASBA 法による RNA 検出法の何れの PCR 法を利用した方法であっても、西城川原水からクリプトスポリジウム・オーシストが 1 度 1 個 C.p./100L 検出された。レジオネラ菌属は、培養法であっても PCR 法であっても、原水、処理水ともに 2 回の調査で検出されなかった。*Ba. Cereus* は、培養法でも RT-PCR 法でも何れの試料からも検出されていないが、PCR-RT 法による簡易スクリーニングでは、2 回の何れの調査でも西城川水は調査腸内細菌群やビブリオ菌群の陽性判定となり、一般的な水質項目で清浄な河川であっても、糞便由来による微生物汚染が検出範囲内にあると判断された。本検討で得られた結果と文献値から、我が国における牛糞尿由来のクリプトスポリジウムオーシスト負荷原単位は、 1.0×10^9 個 C.p./頭程度であると算定された。クリプトスポリジウムオーシストの実測値と文献値から、排出源を

牛糞尿のみと仮定した場合、対象地域内で排出されたオーシストは、取水点までに 7.1×10^5 ~ 2.7×10^5 程度希釈されると試算された。今後も、定期的にクリプトスポリジウムオーシストなどの病原性微生物の動向を調査することは必須であると同時に、これら病原性微生物の水道水源への流達リスクの算定が塩素なし水道の実現の為には必要であると考えられる。

5. 消毒技術に関する検討（消毒代替技術間の消毒機構の比較及び、それら代替技術の管理手法の開発）

(1) 消毒機構が異なることによる消毒効果についての基礎的知見の蓄積

塩素消毒は適用する CT 値によって、損傷レベルが異なることがわかった。また CT 値が低い場合には、軽度な損傷が多く見られ、CT 値が高くなるほど重度な損傷となることが示唆された。これは塩素消毒が複数のメカニズムからなっているためと考えられた。一方紫外線消毒では、単一の消毒機構のため、投入線量によらず一定の損傷レベルが得られることがわかった。また回復処理を施したところ、塩素消毒は紫外線消毒に比べて回復量が著しく多いことがわかった。これについては VBNC 細菌の測定法も参考にしながら多角的に検討を行う必要があり、来年度以降の課題である。

(2) 代替技術の導入の際の管理手法の確立

地下水を複数回サンプリングして行った回分式試験においては一定の紫外線用量－反応関係が得られ、原水に自生する一般細菌を生物線量計として使用することが可能であると考えられたが、流通式装置に適用した場合、ある一定以上の紫外線線量（約 20mJ/cm^2 ）以上を測定するのに不都合が生じることがわかり今後の課題が残った。さらに一般細菌以外の菌種や、他の原水への適用を検討する必要があると考えられる。

6. 水道水における微量有機物および再増殖微生物の特性評価

オゾン－活性炭処理を導入している全国 7 箇所の浄水場の活性炭試料の付着細菌数を評価したところ、浄水場によらずほぼ $10^8 \sim 10^9 \text{cells/g}$ （湿重量）の細菌が付着していた。また、浄水場 A、B では、逆洗工程によって全菌数はそれぞれ 36%、64%に減少した。逆洗工程は定期的に繰り返されていることを考えると、付着細菌数は逆洗サイクルに合わせて大きく変動していることが推察された。浄水場 B の原水、活性炭試料からクローンライブラリーを構築した。16S rDNA の解析の結果、原水では藍藻類に近縁なクローンが優占していたのに対して、活性炭では β -Proteobacteria、Acidobacteria、Planctomycetes などに近縁なクローンが優占していた。一方、18S rDNA の解析では、原水では真核藻類に近縁なクローンが優占していたのに対して、活性炭からは原生動物 *Cercomonas* や、後生動物 *Chaetonotus* に近縁なクローンが得られた。16S rDNA、18S rDNA を対象として、原水、活性炭、生物接触酸化装置担体の真正細菌群集、真核生物群集を T-RFLP 法によって解析した。その結果、16S rDNA、18S rDNA とともに、原水試料の微生物群集構造は地点間によるばらつきが大きいものの、活性炭試料では浄水場間の差異は比較的小さく、類似した微生物群集構造が構築さ

れている傾向が示された。また、18S rDNA の解析結果からは、流動床上向流による活性炭処理が、真核生物群集の定着や多様性に大きな影響を及ぼす可能性があることが示唆された。

D. 結論

本年度の研究では主として以下の項目につき明らかにした。

- (1) 本研究の前提となる文献調査として、国内外の残留消毒剤および微生物制御に関する基準値、また残留消毒剤や消毒副生成物等に関する水質管理の状況につき比較を行った。飲料水を原因とする感染性微生物による発症事例を整理し、その原因が維持管理上の不備等といった人為的なミスと最終バリアーである消毒操作の不備が重なることにより引き起こされる場合が多い事を示した。各消毒技術間の微生物損傷程度の比較や紫外線消毒のモニタリング手法、また最新の科学的知見から各種ウイルスの紫外線処理における感受性をまとめた。
- (2) 残留塩素に依存しない系における健康リスクを確率的に推算するシミュレーションモデル構築の一環として、水や食品に関連する感染症について感染の報告数、または患者数を調査し、現在入手可能な DALY 値で重み付けをした。原水水質+処理系+消毒系+配水池+配水管網+給水系原水から給水系にいたる検討のフレームに関して、健康リスク解析における DALY 値の有用性について米国、オランダの事例を検証した。消毒系については塩素の消費と副生成物、オゾン処理における臭素酸塩生成に関するモデルを調査した。また、バイオフィーム制御のために次亜塩素酸塩イオン (ClO_2^-) と二酸化塩素 (ClO_2) の相対的な効率に関する議論を検討した。管網における生物膜生成と制御に関連するモデルについて、生物膜生成と滞留時間、BDOC または AOC、消毒剤濃度等の関係を表現するモデルを調査した。また、AOC の水処理工程における処理効率についての検討も調査した。
- (3) 消毒副生成物によるリスクの総括的評価に関する検討として、SRNOM 塩素処理水の染色体異常誘発性試験から求めた D20 値に対して、クロロ酢酸類で得られた両試験の相関関係を適用した結果、SRNOM 塩素処理水中の全有機ハロゲン化合物の毒性は、平均的にトリクロロ酢酸程度であると評価された。
- (4) 塩素使用と免疫毒性との関連性に関する検討として、代表的な免疫毒性物質であるエンドトキシンの環境水・水道水中濃度を調べた結果、下水処理水放流口周辺ではその他の地点の約 10 倍濃度で検出されること、また水道水中では環境水の 1/10~1/100 に低減していることを示した。環境水中の微生物一細胞当たりのエンドトキシン活性は、大腸菌一細胞当たりの約 1/5 程度と試算された。一方、塩素処理により総エンドトキシン活性は低下する反面、遊離エンドトキシンは増大することを示すとともに、塩素注入条件によるエンドトキシン不活性化量および遊離エンドトキシン増加量の制御可能性を提示した。
- (5) 感染性微生物による水道水の健康影響リスク評価として、家畜糞尿や生活排水の持つ感染性微生物負荷量の把握を行ったところ、西城川原水からクリプトスポリジウムオーシ

ストが1度1個 C.p./100L 検出された。レジオネラ菌属は原水、処理水ともに2回の調査で検出されなかった。*Ba. Cereus* は、培養法でも RT-PCR 法でも何れの試料からも検出されていないが、PCR-RT 法による簡易スクリーニングでは、調査腸内細菌群やビブリオ菌群が陽性判定となった。当結果と文献値から、我が国における牛糞尿由来のクリプトスポリジウムオーシスト負荷原単位は、 1.0×10^9 個 C.p./頭程度であると算定された。また対象地域内で排出されたオーシストは、取水点までに $7.1 \times 10^{-5} \sim 2.7 \times 10^{-5}$ 程度希釈されると試算された。

- (6) 消毒代替技術間の消毒機構の比較として、塩素消毒は適用する CT 値によって、損傷レベルが異なることがわかった。また CT 値が低い場合には、軽度な損傷が多く見られ、CT 値が高くなるほど重度な損傷となることが示唆された。これは塩素消毒が複数のメカニズムからなっているためと考えられた。一方紫外線消毒では、単一の消毒機構のため、投入線量によらず一定の損傷レベルが得られることがわかった。また回復処理を施したところ、塩素消毒は紫外線消毒に比べて回復量が著しく多いことがわかった。
- (7) 紫外線処理における管理手法の検討として、地下水を複数回サンプリングして行った回分式試験においては一定の紫外線用量-反応関係が得られ、原水に自生する一般細菌を生物線量計として使用することが可能であると考えられたが、流通式装置に適用した場合、ある一定以上の紫外線線量 (約 20mJ/cm^2) 以上を測定するのに不都合が生じることがあった。
- (8) オゾン-活性炭処理を導入している7箇所の浄水場を対象として、原水、活性炭表面に付着している真正細菌、真核生物の群集構造を T-RFLP 法によって比較した。その結果、原水中の微生物群集構造は浄水場間のばらつきが見られたが、活性炭表面上の微生物群集構造は、一部に例外はあるものの浄水場間の差異は小さく、類似した群集構造が形成されていることが示唆された。

残留塩素に依存しない水道を実現する上では、病原性微生物や消毒副生成物に係る健康リスクの所在につき、継続して多面的な評価を行う必要がある。また、消毒理や給配水過程における水質管理上の要件および評価法をさらに明確にすることが必要である。

E. 健康危険情報

なし

F. 研究発表

別添のとおり

G. 知的所有権の取得状況

1. 特許取得

なし

2. 実用新案登録

なし

3. その他

なし

厚生労働科学研究費補助金

健康科学総合研究事業

残留塩素に依存しない
水道の水質管理手法に関する研究

平成17年度 分担研究報告書

平成18年3月

残留塩素に依存しない水道の水質管理手法に関する
文献調査

①諸外国の水道における消毒及び給配水水質管理の状況

主任研究者 国包 章一

分担研究者 島崎 大

②病原性微生物による水道水源等の汚染および感染事例

分担研究者 西村 和之

③消毒技術による微生物損傷性および塩素代替技術の
管理手法

分担研究者 大瀧 雅寛

①諸外国の水道における消毒及び給配水水質管理の状況

主任研究者 国立保健医療科学院水道工学部長

国包 章一

分担研究者 国立保健医療科学院水道工学部

島崎 大

1 消毒に関する諸外国の概要

1. 1 消毒剤、微生物制御に関する基準値の比較

WHO 飲料水ガイドライン、アメリカ EPA 第一種飲料水規則、EU 指令、日本水質基準における消毒剤、主要な消毒副生成物の比較を表 1 に、微生物に関する水質基準の比較を表 2 に示す。消毒剤について日本では 0.1mg/L 以上が義務づけられ、WHO でも遊離塩素で 0.5mg/L 残留すべきとしている。一方 EPA や EU 指令は消毒剤についての最低限必要な濃度を設定しておらず（アメリカは後述する表流水処理規則により表流水の場合は、消毒剤の残留濃度を規定している）、逆に消毒剤の最大残留濃度を設定している。また、微生物に関する項目では日本より多くの基準項目を設定している。

表 1 消毒剤及び主な消毒副生成物に関する基準の比較^{1,2,3)}

項目	水質基準 mg/L			
	WHO ガイドライン値 (第 3 版 2004 年) ⁷⁾	EPA 第 1 種飲料水規則 (2004 年現在) ⁸⁾	EU 指令(1983 年発行 1998 年改訂) ⁹⁾	日本水質基準 (2003 年)
モノクロラミン	3 以下			
クロラミン		塩素として 4.0 (MRDL)		
塩素	5(C)※	4.0 (MRDL)		遊離 0.1 以上(省令) 1 以下(目標項目)
二酸化塩素	(亜塩素酸により規制)	0.8 (MRDL)		0.6(目標項目)
臭素酸	0.01 (A, T)	0.01 (MCL)	0.01	0.01
総トリハロメタン	各物質の検出濃度とガイドライン値との比の和が 1 を超えないこと	0.08 (MCL)	0.1	0.1
クロロ酢酸	0.02			0.02
クロロホルム	0.2			0.06
ジクロロ酢酸	0.05 (T, D)			0.04
ジブロモクロロメタン	0.1			0.1
トリクロロ酢酸	0.2			0.2
ブロモホルム	0.1			0.09
ホルムアルデヒド	0.9			0.08
ハロ酢酸類 5 種		0.06 (MCL)		

※：効果的な消毒のため、pH8 未満で最低 30 分の接触後、遊離残留塩素が 0.5mg/L 以上あること

C：健康影響に基づくガイドライン値と同じかそれ以下の濃度でも、飲料水の外見や臭味に影響を及ぼす可能性があり、その結果、消費者から苦情がもたらされる。

T：算出されたガイドライン値が、実際の処理によって達成可能なレベルより低い

A：算出されたガイドライン値が、達成可能な定量下限以下

D：消毒によって、ガイドライン値を越える可能性がある。

MRDL：最大残留濃度

MCL：最大許容レベル

表2 微生物に関する水質基準

WHO飲料水質ガイドライン (第3版 2004年)		
すべての飲料水	大腸菌 (<i>E. coli</i>) もしくは糞便性大腸菌群	100mL中に検出されてはならない
配水システムに送られる浄水	大腸菌もしくは糞便性大腸菌群	100mL中に検出されてはならない
	大腸菌群	100mL中に検出されてはならない
配水システム中の浄水	大腸菌もしくは糞便性大腸菌群	100mL中に検出されてはならない
	大腸菌群	100mL中に検出されてはならない。*

*大規模な水道システムで十分な試料が検査された場合には、12カ月間を通じて95%の試料中に検出されないこと。

EPA 第1種飲料水規則 (2004年現在)	
クリプトスポリジウム	TT(99%の除去/不活化)
ジアルジア	TT(99.9%の除去/不活化)
ウイルス	TT(99.99%の除去/不活化)
レジオネラ	TT(規制はないが、ジアルジア及びウイルスが除去/不活化されていれば、レジオネラもまた制御されていると考えられる)
大腸菌群 (糞便性大腸菌、大腸菌含む)	1ヶ月間で5.0%以下検出
濁度	TT(1NTUを超えてはならない。かつ、月の毎日の測定値の95%が0.3NTUを超過してはならない)
従属栄養細菌	TT(1mLあたり500コロニーを超過しない)

*TT (Treatment Technique) : 浄水処理技術等による対象項目の低減化対策。微生物項目においては、表流水もしくは表流水の直接の影響を受ける地下水は、カッコ内の目標を達成するよう、所要の措置を講じなければならない。

EU 指令(1983年発行 1998年改訂)	
微生物学的項目	項目値 (個/100mL)
大腸菌 (<i>E. coli</i>)	0
腸球菌	0
指標項目	項目値 (個/100mL)
コロニー数 (22℃)	異常がないこと
大腸菌群	0
ウエルシュ菌* (芽胞を含む)	0

日本水質基準(2003年)	
基準項目	基準値
一般細菌	1mLの検水で形成される集落数が100以下であること
大腸菌 (<i>E. coli</i>)	検出されないこと

1.2 諸外国で使用されている消毒剤の概要

日本では消毒剤として法的に認められている消毒剤は塩素のみであるが、表3に示すように各国では多様な手法を適用している。大まかに分類すると以下のとおりになる。

- 塩素だけを用いている国：デンマーク、ギリシャ、ポルトガル
- 塩素+オゾンを用いている国：アイルランド
- 塩素+二酸化塩素を用いている国：ブラジル
- 塩素+オゾン+二酸化塩素を用いている国：フランス、イタリア、
- 塩素+二酸化塩素+クロラミン：スウェーデン
- 塩素+オゾン+二酸化塩素+クロラミンを用いている国：スペイン、南アフリカ
- 塩素+オゾン+二酸化塩素+紫外線の国：オーストリア、ベルギー、ドイツ、オランダ
- すべての消毒剤を用いている国：フィンランド、イギリス、アメリカ

表3 諸外国における消毒方法^{4,5)}

	塩素	オゾン	二酸化塩素	紫外線	クロラミン
オーストリア	+++	+	+	+	
ベルギー	+++	+	+	+	
デンマーク	+				
ドイツ	+++	++	+++	+	
スペイン	+++	++	+		++
フィンランド	+++	+	+	+	+
フランス	+++	++	++		
イギリス	+++	+	+	+	+
ギリシャ	+++				
アイルランド	+++	+			
イタリア	+++	+	+++		
オランダ	++	+++	++	+	
ポルトガル	+++				
スウェーデン	+++		+		++
アメリカ	+++	+	+	+	+
ブラジル	+				
南アフリカ	+++	+	+		+

+++主たる手法、++よく使用されている手法、+場合により使用されている手法

EU 諸国は AQUA, Vol.48 (1999年4月)⁴⁾ 掲載データ、アメリカとブラジルと南アは 1993年 IWA 国際会議総括報告⁵⁾でのデータ

2 アメリカにおける消毒の状況

2.1 アメリカにおける消毒剤の残留⁶⁾

EPA による 2000 年の調査ではアメリカの 9 割以上の水道システムが消毒を行っている⁷⁾。しかし、配水システムにおいて消毒剤の残留が要求されているのは、表流水（表流水から直接影響を受ける地下水も含む）を水源とする給水人口 1 万人以上の水道システムだけであり、SWTR（表流水処理規則 1989 年）により、消毒剤の残留保持を要求されている。

SWTR はターゲットをジアルジアとウイルスとし、ジアルジアは 3log、ウイルスは 4log 除去を目標としている。そのためには、「配水エリアの流入点で最低限継続して消毒残留濃度 0.2mg/L を保持し、配水システム全体の 95% で消毒剤の残留が確認されなければならない」としている。

すべての水道システムに対して適用される規則として大腸菌群規則（Total Coliform Rule）があり、「大腸菌群(total coliform)の検出が 1 ヶ月あたり 5% 以下という規定」がある。

2004 年まで地下水には統一的な消毒剤の残留に関するルールはない。EPA では地下水の消毒に対して表流水と同等の基準を提案しているところである。

参考としてアメリカの水源割合を表 4 に示す。

表4 アメリカの公営水道における水源割合 (2004年)⁸⁾

	地下水	表流水	合計
システム数(割合%)	41,264(78%)	11,574(22%)	52,838
給水人口(割合%)	90,499,550(33%)	181,996,127(67%)	272,495,677

2. 2 アメリカにおける消毒剤残留の目的

アメリカでは地下水を除いて残留消毒が義務づけられている。その目的として次の三点が挙げられる。

(1) 配水管内における微生物再増殖の最小化

浄水処理で病原菌や指標菌を完全に除去することは不可能であり、消毒剤の残留効果がない場合、配水管内で微生物膜が形成され、病原菌も微生物膜内で増殖する可能性がある。こうした生物膜は一度形成されると、それを剥離されることは非常に困難である。再増殖を抑制するためには、配水管の洗管、腐食防止、水質調査の徹底、管路の更新なども重要な手段であるが、消毒剤の残留が最も有効である。

(2) 配水システムへの汚染物質混入時のリスクの低減

二番目の長所は、破裂事故、汚水侵入、クロスコネクションを原因とする汚染物質への混入に対するリスクの低減である。アメリカでは1989年にミズリー州 Cabool で水道を介した大腸菌 O157 による汚染があり、243人が感染し、4人が亡くなる事故が起きている⁹⁾。これは地下水を消毒せずに供給していたもので水道管事故時に下水か動物のフンの混入が要因である。また1993年のミズリー州 Gideon では住民1,104人の44%がネズミチフス菌 (*Salmonella typhimurium*) に感染している⁹⁾。このケースはハトとのフンが配水池天井の穴から残留消毒されていない水道水に混入したものである。両者の病原体は塩素に弱く、残留消毒があれば被害を十分に防ぐことができたと想定される。

またアメリカでは、配水システムの老朽化が深刻化している。表5に示すとおり給水人口が大きな都市ほど老朽化が進んでおり100年以上の年数がたっている施設もある。そのため配水管の破裂事故も頻発しており、給水人口が多い都市ほど事故が発生している。したがって残留消毒はこうした事故の被害を最小限に食い止めることに役立つと考えられている。

表5 アメリカにおける配水管の布設年数と事故件数⁹⁾

給水人口	20年以上経過した管の割合%	最も古い管の布設年数(年)			年間の配水管事故件数(件)	
		平均	最小	最大	平均	標準偏差
500以下	60.25	21	10	35	1.33	0.58
501~3,300	58.86	50	2	112	7.51	27.7
3,301~10,000	58.97	62	11	134	13.27	15.6
10,000~50,000	60.35	71	20	130	41.99	59.2
50,001~500,000	42.53	67	12	120	97.12	111
500,000以上	69.57	91	20	140	488	547

(3) 汚染物質混入の指標

配水システムを運用し状況をモニターしている場合、通常のパターンから逸脱した残留塩素変化は、クロスコネクションや破裂事故による下水等の混入の可能性があるとして認識できる。このような残留塩素を含めたリアルタイムの監視装置は実用化されており、今後もより高性能な開発が期待される。

2. 3 消毒副生成物の抑制

USEPA は世界で初めて総トリハロメタンの最大汚染濃度を年間平均で 0.1mg/L 以下とする暫定規則を定めた。現在、EPA による第一種飲料水規則では消毒副生成物として臭素酸 0.01mg/L、亜塩素酸 0.1mg/L、総トリハロメタン 0.08mg/L、ハロ酢酸類 5種 0.06 mg/L に基準値を設けている。消毒剤についても最大残留濃度値を設定しており、クロラミンが 4.0 mg/L (Cl₂換算値)、塩素が 4.0 mg/L (Cl₂換算値)、二酸化塩素が 0.8 mg/L としている。こうした規制に対し、アメリカではトリハロメタン対策のためクロラミン処理を行っている浄水場が多く見受けられる。しかしクロラミン処理は、配水システム中に過度のアンモニアと硝化菌の作用により亜硝酸塩を形成させ、亜硝酸塩や硝酸塩は乳幼児に対するメトヘモグロビン血症を引き起こす可能性が指摘されている。アメリカでは硝酸塩は 10mg/L (硝酸性窒素換算値)、亜硝酸塩はとして 1mg/L (硝酸性窒素換算値) の MCL (最大許容レベル) を設定している。

2. 4 アメリカにおける消毒処理の実際

EPA のホームページより、2000 年のアメリカにおける消毒処理方法を表 6 にまとめた。特徴的な事項として、

- ①塩素消毒のみの割合が表流水 16.2%、地下水 74.3%であること
- ②前消毒、中間消毒として塩素を用いている割合は、表流水が前消毒として 34.5%、中間消毒として 23.0%用いているのに対し、地下水はともに 10%未満であること
- ③表流水の後消毒として、塩素が 69%、クロラミンが 7%、二酸化塩素が 1%使用されており、紫外線も 1.6%の使用実績があることがあげられる。

また実際の浄水場における消毒事例を表 7 に示す。最近は主にクリプトスポリジウム対策や異臭味除去としてオゾンを導入しているケースが増えている。さらに紫外線も本格導入に向けた試運転が 20 以上の浄水場で行われている (表 8)。