

厚生労働科学研究費補助金

地域健康危機管理研究事業

最新の科学的知見に基づく水質基準の 見直し等に関する研究

平成16年度～平成18年度 総合研究報告書

主任研究者 眞柄 泰基（北海道大学大学院）

平成19（2007）年3月

厚生労働科学研究費補助金

地域健康危機管理研究事業

最新の科学的知見に基づく水質基準の見直し等に関する研究

平成16年度～18年度 総合研究報告書
(1/2冊)

主任研究者 眞柄 泰基

平成19(2007)年 3月

総合研究報告書目次

目 次

I. 総合研究報告	
最新の科学的知見に基づく水質基準の見直し等に関する研究	1
真柄 泰基	
(資料) 1. 無機物質に関する研究	15
2. 一般有機物質に関する研究	26
3. 微生物に関する研究	62
4. 消毒副生成物に関する研究	77
5. 農薬に関する研究	92
6. 水道水質管理に関する研究	120
7. リスク評価に関する研究	134
II. 研究成果の刊行に関する一覧表	143
III. 研究成果の刊行物・別刷	155

厚生労働科学研究費補助金（地域健康危機管理研究事業）
総合研究報告書

最新の科学的知見に基づく水質基準の見直し等に関する研究

主任研究者 眞柄 泰基 北海道大学創成科学共同研究機構学術研究員（特任教授）

研究要旨：平成15年5月に水道法に定める水質基準が改定され、平成16年4月より施行されている。この水質基準の改定に際して、今後は最新の科学的知見に従い逐次改正されることとなった。そこで、無機物質、一般有機物質、微生物、消毒副生成物、農薬、水道水質管理およびリスク評価に関して研究課題を設定して調査研究を行い、水質基準改正のための科学的な知見を集積し、水質基準の逐次改正等について提言することを目的とする研究を行った。

水質基準に定められている項目の健康影響リスクや利便性の観点から、それらの水質特性に応じて水道における存在状況、処理性および水質試験方法の確立を行うとともに、水道水から揮散した化学物質の経気暴露量をも考慮した評価手法についても明らかにした。さらに、WHOの飲料水水質ガイドラインでの健康影響リスク評価でベンチマークドーズ法が遺伝毒性を有する発ガン物質についても適用されるようになっており、このような観点からのリスクの再評価が必要であると考えられる。水道法に定める水質基準は、健康影響リスクばかりでなく水道水の利便性の観点からも定められており、後者の観点から見るとWHO飲料水水質ガイドラインで勧告している「水安全計画」は、HACCPの概念を基礎に危害因子の同定とその適切な制御を行うことにより、水源から給水栓までを通した系統的な水質管理を行うこと求めており、このような予防保全的アプローチをわが国の水道に導入すべきである。

分担研究者	所属機関	職名
伊藤 禎彦	京都大学大学院工学研究科	教授
遠藤 卓郎	国立感染症研究所寄生動物部	部長
国包 章一	国立保健医療科学院水道工学部	部長
西野 二郎	日本水道協会工務部水質課	水質課長
江馬 眞	国立医薬品食品衛生研究所安全性生物試験研究センタ	室長
長谷川隆一	国立医薬品食品衛生研究所医薬安全科学部	部長
広瀬 明彦	国立医薬品食品衛生研究所総合評価研究室	主任研究官

伊藤 雅喜	国立保健医療科学院水道工学部	室長
秋葉 道宏	国立保健医療科学院水道工学部	室長
安藤 正典	武蔵野大学薬学部薬学研究所	教授
相澤 貴子	横浜市水道局水質管理工学	技術顧問
西村 哲治	国立医薬品食品衛生研究所環境衛生化学部	室長
松井 佳彦	北海道大学大学院工学研究科	教授
浅見 真理	国立保健医療科学院水道工学部	室長

A. 研究目的

平成15年4月の厚生科学審議会答申「水道水質基準の見直し等について」を踏まえ、およそ10年ぶりに水道水質基準が全面的に改正されるとともに、今後は最新の科学的知見に従い水質基準は逐次改正されることとなった。また、答申では今後検討すべき課題も示された。一方、WHOでもおよそ10年ぶりの飲料水水質ガイドラインの全面改訂作業がなされ、今後、必要に応じ逐次改訂していくこととし、科学的知見の集積に努めるべき事項が提起された。これらの課題に対応し、最新の科学的知見に基づく水質基準の逐次改正や水道における水質管理体系の見直しを適正に行うことができるように、水質基準に定められた項目のみならず、新たに設定された水質管理目標設定項目や要検討項目、更にはWHO飲料水水質ガイドラインで逐次改訂を検討すべきとされた事項について、水道における存在状況の把握、水質基準を達成するための浄水処理技術の開発に関する基礎的知見の集積、水道水質管理における理論的根拠となる浄水処理過程及び給配水過程における挙動の把握、水質試験方法の策定、毒性情報の収集・評価、水道水の安全性を確保するための総合的な水質管理手法に関する知見の集積等を総合的にを行うことを目的とする。

B. 研究方法

主任研究者及び分担研究者の他、水道事業体等技術者、研究者等約60名の研究協力者からなる分科会を設け、全国レベルでの実態調査等をおこなった。

分科会はつぎのようである。①無機物質に関する研究、②一般有機物質に関する研究、③微生物に関する研究、④消毒副生成物に関する研究、⑤農業に関する研究、⑥水道水質管理に関する研究、⑦リスク評価に関する研究

(倫理面への配慮) 研究を進めるにあたり、研究内容について検討したところ人権擁護上の配慮、研究対象者に対する不利益、インフォームドコンセントに係る事項や動物愛護等への配慮は必要でないと判断されたことから、倫理面の問題がないと判断した。

C. 研究結果

本研究で行われた結果は、図-1に示すようである。

無機物質に関する研究では、WHO飲料水ガイドラインで改訂が検討されているニッケルなどの金属について実態調査、処理性についての検討が行われた。また、アルミニウムについても水質基準値を改訂できるかどうか、実態調査やアルミニウムの代替凝集剤についての実験結果から検討した。また、塩化ビニル管などプラスチック

管からの有機スズの溶出について調査を行い、その実態を明らかにすると共に、溶出試験方法についても明らかにした。

一般有機物質に関する研究では TOC についての水質基準値の見直しの検討をおこなった。また、管路内でのスライム形成の基質となる有機物についても実態調査を行った。感染性はないと考えられるピコプランクトン等不快生物についての検討や異臭味原因物質が藻類などプランクトンばかりでなく、下水処理場など排水の生物処理過程でも生成することを明らかにした。また、資機材等から塩素化 PAH が生成することを明らかにした。

微生物に関する研究では、給水栓からの線虫の漏洩やその理由について明らかにした。クリプトスポリジウム等耐塩素性微生物の検査のための試料の保存やより簡易な検査法を開発した。また、クリプトスポリジウム等の遺伝子検出法を開発した。なお、この方法はヒトへの感染性を有するかどうかを明らかにするものである。

消毒副生成物に関する研究では臭素酸のオゾン処理における処理操作の高度化による低減方法を明らかにするとともに、塩素剤である次亜塩素酸ソーダ中に不純物として存在していることを明らかにした。また、過塩素酸が原水中に存在することを明らかにするとともに発生源を特定することが出来た。NDMA の分析法を確立し水道水中の存在状況を明らかにした。消毒副生成物の多くは揮散性が高いため、浴室などでは水道水からそれらが揮散し経気暴露源となることを明らかにした。その結果、経気暴露量が経口暴露量に比べて無視できないことが明らかとなった。

農業に関する研究では、全国の主要な水道事業体で実態調査を行ったところ、流域特性を反映して地域差が大きいことが明らかとなった。流出解析シュミレーションを行い、水道水の農業濃度を予測するには、農業使用量や河川水量等のデータの精度が高い方が望ましいことが明らかとなった。農業の分析法や処理性は、農業の極性に大きく影響されるとともに、特にその分解物についてはその影響が大きいことが明らかとなった。なお、分解物については有機りん系農薬について検討をし、コリンエステラーゼ活性等生理活性が高まるものや残存するものも有ることが明らかとなった。

水道水質管理に関する研究では、水安全計画策定のためのマニュアルのモデルとして、いくつかの水道事業体の特性を考慮したモデルを策定した。この他、給水栓の鉛試験方法の妥当性を検討するとともに、カルキ臭の原因が水道原水中のアミノ系不純物と反応して生成するトリクロロミンであることを明らかとした。

リスク評価に関する研究では、WHO で改訂の対

象となっている6化学物質について毒性情報等を精査した。さらに、内分泌攪乱化学物質についても水質基準策定への適用性について検討した。また、乳幼児や小児への健康影響リスク手法を検討するため18化学物質について動物実験をおこない、その結果を基に新生児の感受性を解

析した。

D. 考察

無機物質については次のようである。3浄水場における処理結果から浄水場により設定 pH に違いはあるものの、硫酸添加による pH 調整を行うことで、浄水中の残留アルミニウム濃度を 0.1 mg/L 以下に

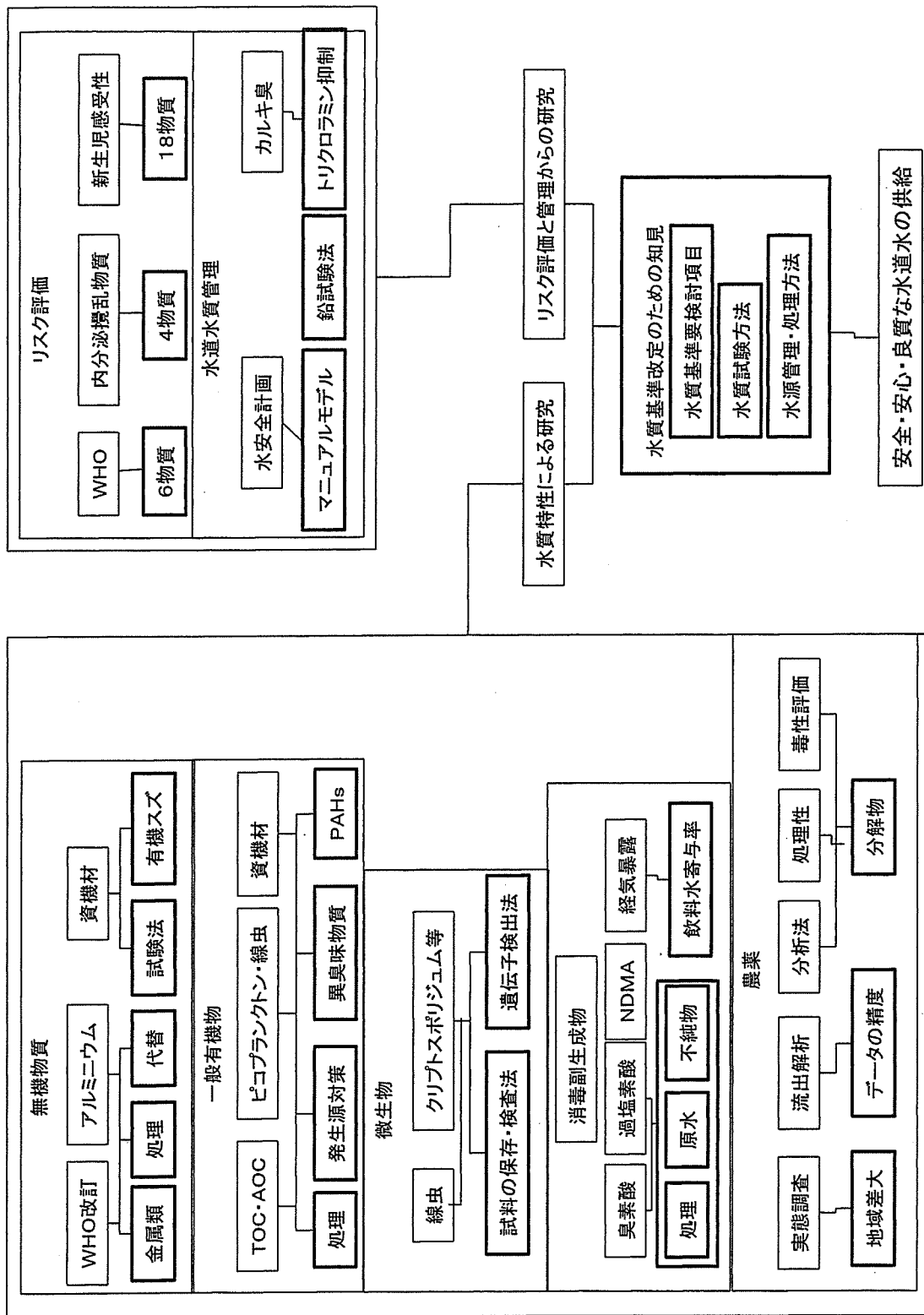


図-1 最新の科学的知見に基づく水質基準の見直し等に関する研究の構成と結果 (結果は下段枠内)

することが可能であることが示された。これにかかるコストと全体の浄水処理を考えると、硫酸添加によるコスト増と凝集剤注入量の低減による相殺効果があるか、LI(ランゲリア指数)が低くなることによる腐食の影響または後処理のコスト等について総合的に検討する必要がある。ジャーテストおよび実験プラントにおける高分子凝集剤(ポリマー)の実用化の検討を行った。浄水処理については沈澱水濁度の明確な改善は見られなかったが、設定条件が最適でない可能性があるため実験を継続中である。アクリルアミドモノマーの残留量はポリマー注入率が 0.5 mg/L 以下であれば、最大許容濃度の 1/10 以下であると推定された。このレベルのモノマーはオゾン処理により大部分が分解され、生物活性炭でほぼ完全に除去された。

小型平膜循環型のナノろ過実験装置を用いて凝集剤の違い、および濃度がファウリングに及ぼす影響を調べた。人工原水を用いて PAC、塩化第二鉄を凝集剤とした前処理を行った水を用いた実験では、どちらの凝集剤でも運転時間の経過とともにフラックスの経過が起こるが、塩化第二鉄を用いた場合の方が PAC を用いた場合に比べフラックスの低下割合が小さくファウリングを起こしにくいと考えられる。しかし河川水を塩化第二鉄で前処理した水と、これを NF 膜で濃縮した水と比較すると鉄濃度はほぼ同等であったが、フラックスの低下は濃縮水の方が早く、ナノろ過の濃縮過程においてファウリング因子が変わっていることが考えられる。

水道用資機材からの有機スズ等化合物の溶出に関する研究の実験に供した 3 社の製造メーカーのうち 1 社のみから有機スズ化合物が検出されたものの他の 2 社の製品からは有機スズの溶出が認められなくなった。これは安定剤をカルシン(Ca-Zn)系に変えたことが示唆される。

使用初期では 0.1 $\mu\text{g/L}$ を超える溶出はあったが、試験方法に基づくコンディショニング条件では 0.1 $\mu\text{g/L}$ 以下の溶出量であり、現在までに得られている毒性情報から見て特に問題はないと考えられる。また臭気についても有機スズとはパターンが一致しないものの、コンディショニング初期に臭気が検出されることが確認された。従って PVC 管の出荷時や使用時には十分な洗浄が必要であり、これが不十分であると使用開始時にトラブルが発生する可能性があることが考えられる。水道用ポリエチレン管からの酸化防止剤やその分解物等の有機物質が水道水中に溶出するという報告もあり、有機スズに限らず資機材からの溶出に留意する必要がある。

硬度、蒸発残留物は浄水処理による影響をほとんど受けないことを考慮すると、LI は水源水質に大きく依存すると予想される。低硬度で蒸発残留物が少ない水源をもつ浄水場で LI が低い値となる傾向があると考えられる。塩化物イオンに関しては、濃度が

高いほど腐食性が低い、という結論が導かれた。しかし、塩化物イオンは多くは土質に由来する成分であることから日本の水道水の腐食性は、土壌由来の溶解性成分に強く影響を受けているという可能性が導かれた。硬度、マンガンおよび蒸発残留物は水質基準値に対する達成率は概ね良かったが、目標値に対しては超過率が高くなることがわかった。特に硬度と蒸発残留物は味に大きく係わる項目であるので、消費者へ水道水の利用を進めていく上で課題として検討を要するものと考えられる。

一般有機物質については次のようである。A 水道事業体の給水地点の TOC の最小値は 0.3mg/l、最大値は 0.8mg/l であった。TOC の消毒副生成物質に対する指標性は、TTHM、ハロ酢酸、ホルムアルデヒドに対して確認された。TOC と TTHM の回帰直線は $Y = 0.0271 X + 0.0005423x$ 水温 -0.01322 ($r = 0.76$) と、TTHM の基準値 0.1mg/l に対応する TOC 値は 2.72mg/l となった。また、B 水道事業体の給水栓水の TTHM と TOC との関係式は、 $Y = 0.0276 X + 0.0015$ ($r = 0.3899$) で、TTHM 水質基準 0.1mg/L 以下は、TOC 3.6mg/L (TOC5mg/L \rightarrow TTHM0.140mg/L、TOC3mg/L \rightarrow TTHM 0.084mg/L)、浄水場浄水では $Y = 0.0277 X - 0.0048$ ($r = 0.7534$) で、TTHM 水質基準 0.1mg/L 以下は、TOC 3.8mg/L 以下に相当する (TOC5mg/L \rightarrow TTHM0.134mg/L、TOC3mg/L \rightarrow TTHM0.078mg/L) 以下に相当した。また、過去 6 年間に収集した TOC と TTHM との関連性は、極めて高い相関性を示していた。浄水工程における AOC の推移の炭素濃度換算評価を行う場合、試験菌として P17 株に関しては従来の酢酸収率係数の評価でよい異が確認されたが、NOX 株の場合にはシュウ酸収率係数を用いることが適切な評価ができ有効であることが明らかとなった。

水源としての琵琶湖(瀬田川)では、3 年間の最大値は $3.4 \sim 4.9 \times 10^5$ 個/mL であった。浄水場ではろ過水濁度は春季 1 万個/mL 以下でも濁度 0.1 度となるが、夏季 5 万個/mL を超過しないとろ過水濁度が 0.1 度とならなかった。千苺貯水池ではアオコ発生の対策として、硫酸銅を散布するが、散布後ピコプランクトンが出現する。3 年間の最大値は 16 年 $2.9 \sim 5.7 \times 10^5$ 個/mL であった。塩素消毒工程でのピコ植物プランクトンと細胞の可溶化に伴う AOC 生成原単位を求めた。

ピコ植物プランクトンは $0.82 \sim -0.98 \times 10^{-6}$ $\mu\text{g/cell}$ 、細菌 $0.49 \sim 0.8 \times 10^{-7}$ $\mu\text{g/cell}$ 、貯水池水の植物ピコプランクトンでは 2.3×10^{-5} $\mu\text{g/cell}$ となった。浄水処理後の塩素消毒による生成 AOC は、原水のピコ植物プランクトン濃度が最大となる夏場において、培養 AOC 生成原単位では 18 $\mu\text{g/l}$ 程度、貯水池での生成 AOC は 300 $\mu\text{g/l}$ 以上となった。

生活排水処理由来の臭気物質の実態調査を行

ったところ、3カ所の生物処理水からジェオスミンの濃度が100ng/L以上存在することが認められた。Dダムでは、夏期のダム湖水循環により底泥中の水温およびD0の上昇と共に2-MIB濃度が上昇する事が確認され、底泥中の放線菌由来である可能性が示唆されたが、アナベナ発生は抑制され、またジェオスミン濃度も低下した。換水率の向上により2-MIB濃度は抑制された。T川では、昨年2月の低温水期にもかかわらずジェオスミンが検出され、付着性藍藻類および底泥中の放線菌が検出された。後者は室内実験により4℃でもかび臭を発生することが確認された。茨城県の砂沼(河川水系)では、平成18年5月に2-MIBを主とした臭気原因物質が発生し、最高濃度は湖沼内で11,900ng/L、また水道原水で200ng/Lに達した。また沼内において藍藻類(*Phormidium tenue*)の増殖が確認された。

多環芳香族炭化水素類が遊離塩素と反応して一塩素置換体や二塩素置換体が生成することを昨年までの検討で示した。臭素イオン濃度の高い環境が想定されることから、臭素置換体の生成について検討した。ベンゾ[a]ピレンは、臭化物イオン濃度50mg/L、20℃、16時間の遮光条件下で、一臭素置換体および二臭素置換体を生成することが明らかとなった。

微生物については次のようである。関東地域にあるY浄水場の配水池(浄水)において12Lを5試料採取し、直ちにチオ硫酸ナトリウムを加えた(同浄水場の浄水の測定値:水温24.6℃、濁度0.01度、残留塩素0.8mg/L)。5試料は個別に全量をフィルターろ過し、1試料のろ過物中の線虫の測定用、1試料を線虫の形態学的同定用、1試料を線虫の遺伝子型別用、1試料を病原細菌の分離用、1試料をウイルス分離用とした。試料12Lから、計74隻の線虫が得られ、その内、生存虫体は30隻、生死判定不可個体18隻、死亡虫体26隻であった。遺伝子解析から線虫類は極めて多様であることが示された。現在まで、60種類以上の線虫の部分遺伝子解析が終了した。細菌分離は線虫の表面に付着する細菌類を排除する目的で次亜塩素酸ナトリウム処理を加えた虫体のホモジェネートからは細菌類は分離されなかった。一方、次亜塩素酸ナトリウム処理を施さなかった虫体のホモジェネートからはパチルス属菌が分離された(定性試験)。また、同様に凍結融解処理を施した線虫からアデノ40、およびアデノ41ウイルスを標的とした遺伝子検出を行ったがいずれも不検出に終わった。これまでの結果からは、水道水中に混入する線虫類により病原微生物が運ばれる事実は認められていない。

クリプトスポリジウム等の回収方法と上水試料保存を目指し、溶解可能な多孔質粉体を支持体に充填(重層)したものをフィルターとしたろ過

を考案し、特許出願した(特願2006-211340)。本方法の特徴は多量の水のろ過が可能なこと、ろ過後の充填剤を溶解することでろ過捕捉物の迅速な回収が可能なこと、迅速に捕捉粒子を高濃度に濃縮した状態で回収することができる。また、本方法で得られたろ過後の充填剤(フィルター部分)の量はろ過水量に対して著しく少なく、一時保存にも適している。ちなみに、均一な粒子を充填剤とした場合、それによって捕捉される粒子の大きさはフィルター粒子の15.5%程度以上と計算される。

水道水の原虫汚染回避には原水の汚染状況の把握が重要で、汚染度にあわせた回避策を講じるべきである。また、浄水処理による粒子除去率を加味すれば、1/10~1,000量の原水の検査で上水検査に匹敵する結果を得ることができる。さらに、検査水量が少なれば頻回の検査が可能となり、安全性確保への貢献度は倍加することが期待される。クリプトスポリジウムの水系集団感染事例の再検討により集団感染に至る以前にわずかな患者の発生が持続、すなわち上水中への少量のoocystの漏出が起きていることが強く示唆されている。その際の上水中の漏出oocyst数はおよそ0.02個/Lと計算される。仮に上水処理により2.7log程度の粒子除去が担保される場合には、原水中のオーシストは10個/Lに相当する。当該研究ではこの程度のoocyst汚染を検知するシステムの構築を企図した。すなわち、『1L程度の原水の濃縮、補足粒子からのDNA抽出、特異DNAの増幅』とする一連の検査法を提案するもので、遺伝子検出法としては、感度、特異性、迅速性等の観点かLAMP法(Loop-mediated Isothermal Amplification)を採用し、特異プライマーを開発した。ちなみに、LAMP法で陽性反応を得るには標的遺伝子が6コピー必要であった。また、本検査法に最確法(MPN)を組み合わせることで定量性を持たせた。現行の顕微鏡を用いた原虫検出は顕微鏡像の解釈に相当の経験が必要で、遺伝子検査法はこれに替わる簡便な定量検査法として期待される。

消毒副生成物については次のようである。オゾン処理における臭素酸イオン低減化についてはオゾン注入率制御、溶存オゾン濃度制御(測定位置の変更を含む)、およびpH制御の効果を実施で評価した。また、イオン交換処理により臭化物イオンを除去した場合の、臭素酸イオン生成特性に加えて、オゾンCT値や微量汚染物質の分解特性への影響を調査した。その結果、注入率・溶存オゾン併用制御(最大オゾン注入率0.8mg/Lで溶存オゾン0.1mg/L)を行う際の溶存オゾン濃度のモニタリングポイントを上流(粒状活性炭吸着池からオゾン接触池出口)に変更した。この変更によりオゾンの過注入を抑制することが可能とな

った。また、実際に臭素酸イオンの生成量も平成17年度に比べて低いことを示した。また、オゾン注入率と酸添加によるpH制御で臭素酸イオンが抑制できることを示した。また、低オゾン注入率でも、THMやアルデヒドは良好に制御されていることを確認した。水道原水の臭化物イオン濃度が比較的高い場合でも、中間塩素処理と溶存オゾン濃度(0.1 mg/L未満)・注入率(0.6 mg/L)制御の併用により、安定して臭素酸イオンを3 µg/L以下に制御できることを示した。イオン交換体で臭化物イオンの除去を行った場合に、臭素酸イオンの生成量の低減の他に、ヒドロキシルラジカルの生成特性が変化することを示した。また、この変化はイオン交換体により異なることが明らかとなった。

利根川流域の一部の地域で過塩素酸イオン濃度が高いこと、またこの影響で利根川中・下流の河川水を原水とする浄水では、過塩素酸イオン濃度が0.19-37 µg/Lの範囲にあること、浄水過程ではほとんど濃度変化がないこと、対象とした試料のうち半数の試料で10 µg/Lを超過していることを明らかにした。

次亜塩素酸ナトリウム中の臭素酸イオン、塩素酸イオン、亜塩素酸イオンについて購入時には亜塩素酸イオン・臭素酸イオンは微量(臭素酸イオンは17 mg/L以下)であるが、塩素酸イオンは255-2620 mg/Lと比較的高濃度であることを示した。有効塩素濃度の減少量と塩素酸イオン濃度の間には負の相関があり、次亜塩素酸減少量と塩素酸イオン生成量のモル比は2.97で理論値の3とほぼ一致した。さらに、物質収支計算から、浄水中の塩素酸イオンの63-83%が塩素消毒由来であることがわかった。

塩素酸イオンの制御の観点から、純度の高い次亜塩素酸ナトリウムの使用、温度管理の強化、保存期間の短縮等を実施した。これにより塩素酸イオン濃度を約0.40 mg/Lから約0.20 mg/Lと夏期でも安定して、半減できることを示した。

CI法によるNDMAの分析法を整備し、浄水プロセス中でのNDMAの挙動を調査した。市内3浄水場の原水と浄水中のNDMAを測定した結果、原水では最大2.0 ng/Lであったが、浄水では定量下限以下であった(1.0 ng/L以下)。

室内空気中のジクロロアセトニトリルと1,4-ジオキサンの分析法を整備した。また、予備実験として実際の浴室空気进行分析し、1,4-ジオキサン(0.7 µg/m³)とジクロロアセトニトリル(0.6-1.6 µg/m³)を検出した。THM曝露量評価を継続し、入浴時間が長い場合にはクロロホルム曝露の飲用寄与率が20%を下回る場合があることを示した。

クロロホルムとジクロロ酢酸についての対策技術について調べ、中間塩素処理、選択取水、送

水時間短縮、粉末活性炭処理の安定性と有効性を示した。また、他の水道事業体では、消毒副生成物濃度が高い夏季において、中間塩素処理、粉末活性炭、原水pHの調整(凝集処理強化)を行い、給水栓で水質基準値等の70%以下に安定して制御できることを示した。処理方法が異なる浄水場の消毒副生成物の比較を継続し、粒状活性炭処理がハロ酢酸、ホルムアルデヒドの除去に安定して有効であることを確認した。また液体塩素を用いる場合には塩素消毒由来の臭素酸イオンの混入が少ないことを示した。

臭化物イオンの濃度分布に関する調査により琵琶湖・淀川水系においては、臭化物イオン濃度の季節変動は少なく、常に人為起源の臭化物イオンの寄与が大きいことがわかった。また、環境水と一部の下水処理水ではBr/Cl比が異なる可能性を示した。

農薬については次のようである。平成16農薬年度の農薬製剤総出荷量は27.5万t、農薬原体量では約7万tと、前年度までと同様に、総出荷量は減少傾向にあった。一方、平成18年9月現在、農薬原体としての登録数は529種で、使用量と同様に減少傾向にあった。

全国11水道事業体の平成18年度の農薬類実態調査の結果では、独自に設定した監視農薬プライオリティーリストに基づき測定した農薬数はのべ158種で、そのうち検出され農薬数は、河川水で70種、原水で74種、浄水で45種であった。昨年度の結果と比較すると、原水ではほぼ20程度減少していたが、浄水は同数であった。検出濃度に関しては、河川水ではプロモブチドが11 µg/Lと最も高濃度で検出され、次いでプレチラクロールが7.2 µg/Lを示した。また、原水で最も高濃度で検出された農薬はプロモブチドで3.46 g/Lであったが、これ以外に最高濃度が1 µg/Lを超えた農薬は8種で、昨年と比べて減少する傾向にあった。一方、浄水ではピロキロンとプロモブチドが最高濃度で1.5 µg/Lを示したが、昨年最も検出濃度の高かったベンタゾンが0.61 µg/Lとそれ程高い値を示さなかった。

個別農薬評価値に関しては、河川水において最大値でプロモブチドが1.08と高い値を示し、チオベンカルブ、プレチラクロール、モリネートが0.5以上の値を示した。これら以外にも10種の農薬が0.1以上を示した。原水ではエディフェンフォスが最高値で0.16を示し、これ以外に5種の農薬が0.1以上の値を示した。一方、浄水では最高値がフェニトロチオンオキソンで0.05を示し、0.01を超えた農薬は13種であった。

検出指標値に関しては一部の河川水で1を超えた他、0.5を超える事例も数件認められ、例年に比べ高い傾向が認められた。また、浄水の検出指標値は最高でも0.06であった。全体の傾向とし

ては、これまでの調査結果を反映し、監視農薬の選定がより効率的に行われるようになり、その結果として、原水の検出率や測定農薬に占める検出農薬の割合などが高くなったり、一部の事業体では水源や原水で高濃度の農薬が検出され、検出指標値も高い値を示すことはあるが、浄水の個別農薬評価値はこれまでの調査結果と比べても同等もしくは低い値を示していることから、農薬検出時には粉末活性炭を注入する対策がとられるなど、浄水処理工程の水質管理がより徹底して行われるようになったと判断された。

相模川及び酒匂川水系をモデル水域に選定し、101農薬を含む249種の農薬について、施用情報と流域別作付面積を用いて、流域別散布量を推定するとともに、これにfugacity model level IIを適用して各農薬の流域への時期別流出量を推定した。モデルに使用する変数のうち、土壌吸着定数について、昨年度までは全ての農薬においてKowから推定していたが、本年度はイオン性農薬については米国農務省等のデータベースにある実測のKocから推定した。この結果、グリホサート、グルホシネート、ジクワット、パラコートは、土壌吸着係数がKowからの推定値より大きい値となった。これら農薬は、以前の評価では農薬流出量やADIを考慮した流出リスク指標が上位の農薬であったが、土壌吸着係数の変更により順位が低下した。再計算後にADIを考慮した流出リスク指標の上位にあった農薬は、酒匂川ではマンネブ、マンゼブ、アシュラム、相模川では、ダゾメット、プロピネブ、マンゼブであった。また、過去の農薬出荷量データを用いた次年度の流出量予測の検討として、2005年度の予測を行う際に、2000～2004年度のデータを用いる場合と2004年度のデータのみを用いる場合とで比較を行ったところ、当該年度の流出量としては前年度実績値のみを用いる方がよいと考えられた。

モデルシミュレーションによる「濃度予測」の有効性を検証するため、2004年以前までに入手可能な公開データを入力値として、2005年の河川水農薬濃度の予測を行った。シミュレーションの対象農薬原体は、福岡県、熊本県、大分県において出荷量が多く、農薬原体の物性情報が入手可能であった11種類の除草剤とした。シミュレーションを行う際には、降水量・気温などの水文気象データを用いた。さらに過去10年間(1995～2004年)の水文気象パターンを用いて多数回シミュレーションを行うことで2005年の農薬原体濃度を予測した。特に本年度は、流出モデルにおいて、(1)農薬出荷量予測方法、(2)農薬散布時期の推定、(3)各農家の畔の高さの推定について改良を行った。改良した流出モデルにより、2005年度の農薬濃度について予測値と観測値とで比較したところ、概ね一致する結果が得られた。

第1群に指定されているP=S型有機りん系農薬のうち、未検討の9種(ピリダフェンチオン、ベンスリド(SAP)、メチダチオン(DMTP)、アニロホス、ジメトエート、マラチオン、フェントエート(PAP)、ジスルフォトン、ピペロホス)、第2群、第3群に指定されているP=S型有機りん系農薬4種(シアノホス(CYAP)、ピリミホスメチル、ジクロフェンチオン(ECP)、クロルピリホスメチル)およびP=0型有機りん系農薬4種(プロパホス、モノクロトホス、テトラクロルピホス

(CVMP)、ホスチアゼート)について、GC/MS(SAPのみLC/MS)による分析法の検討を行った。これら17種の有機りん系農薬の検出下限値は0.5～10 µg/Lの範囲で、固相抽出による回収率は検討が終了した13種については76.8～105.0%の範囲であった。これら第1群のP=S型有機りん系農薬9種について、9種混合系で塩素処理における挙動を検討したところ、塩素濃度1 mg/Lで全ての農薬が30分以内に分解した。このとき、ピリダフェンチオン、DMTP、アニロホス、PAPについてはオキシソンの生成が、SAPについてはオキシソンの生成が認められた。また、第2群、第3群に指定されているP=S型有機りん系農薬4種について、4種混合系で塩素濃度1 mg/Lで塩素処理したところ、速やかに分解し、ピリホスメチルおよびクロルピリホスメチルについてはオキシソンの生成を確認した。

17種の有機りん系農薬について、コリンエステラーゼ(ChE)活性阻害を評価したところ、P=S型有機りん系農薬はChE活性阻害をほとんど示さないものが多かった。P=S型有機りん系農薬のうち6種を対象に、塩素処理にともなうChE活性阻害の変化を検討したところ、DMTP、PAPおよびSAPについては変化なかったが、ピリダフェンチオン、ピリミホスメチルおよびクロルピリホスメチルについては塩素処理によってChE活性阻害は増加した。さらに、これら6種について、乳酸脱水素酵素(LDH)活性を指標とした細胞阻害性に対する塩素処理の影響について評価したところ、コントロールと比較して変化がなく、塩素反応生成物による細胞阻害への影響は認められなかった。

P=S結合を有する有機りん系農薬のうち、昨年度の研究において、塩素処理による反応経路が、オキシソン体への変換反応とP-O-アリアル結合の切断によるフェノール性化合物(5-メチル-2-ニトロフェノール)の生成反応が約50%ずつであったブタミホスについて、農薬原体と塩素反応生成物の変異原性試験を行った。変異原性試験は、Ames試験を採用し、サルモネラ菌TA98、TA100、YG1026およびYG1029を用い、ラット肝S9mix添加・無添加の条件で評価した。その結果、ブタミホスおよびブタミホスオキシソンはTA100および

YG1026 株に対して、5-メチル-2-ニトロフェノールは全ての株に対して、S9mix 添加・無添加のいずれの条件でも変異原性は認められなかった。一方、5-メチル-2-ニトロフェノールの塩素反応生成物である 4-クロロ-5-メチル-2-ニトロフェノールは、S9mix 添加条件において、TA100、YG1026 および YG1029 株に対し変異原性を示し、その強さはそれぞれ 1,200、1,400 および 7,600 rev./mg であった。これらの結果から、ブタミホスの塩素処理副生成物は S9mix および o-アセチルアミノ転移酵素によって活性化される塩基対置換型の変異原性を示すことが示唆された。

水道水質管理については次のようである。WHO 飲料水水質ガイドライン第 3 版のほか「水安全計画」について資料を収集し、その基本的な考え方から水道への具体的な適用方法までを整理した。

「水安全計画」では、HACCP の概念を基礎に危害因子の同定とその適切な制御を行うことにより、水源から給水栓までを通した系統的な水質管理を行うこと求めており、このような予防保全的アプローチをわが国の水道に導入することは大いに意義があると考えられた。また、「水安全計画」の水道への導入を国としていち早く進めているニュージーランドの実情を現地調査し、同国における水道水質管理施策の中での「水安全計画」の位置づけと重要度を明らかにした。

東京都水道局、横浜市水道局、大阪市水道局、神戸市水道局（以上、上水道事業）、及び大阪府水道部（水道用水供給事業）を対象に「水安全計画」の導入に関するケーススタディーを実施した。これらの各ケーススタディーでは、統一的なアプローチをとることは避けて、各事業体がそれぞれの現状に合わせた自主的な検討を行った。これらの成果を基に、都市水道における「水安全計画」導入のためのマニュアルを策定した。わが国の水道水質管理における「水安全計画」の制度化についての考え方を取りまとめるとともに、ニュージーランドにおける公衆衛生の面から見た水道事業体の格付けの実施状況を参考にして、「水安全計画」のための支援制度とそのあり方についても検討した。

水道水の鉛の公定検査法「15 分間滞留水を 5L 採取」による検査の実態を調査するとともに、給水栓水中の鉛濃度測定における採水時の事前滞留時間と、鉛濃度との関係を明らかにすることとした。

全国の厚生労働大臣認可の水道事業体 405 箇所を対象にアンケート調査を行い、定期水質検査

における鉛濃度の測定値などにつき調べた。この結果を用いて、鉛濃度に影響を及ぼすとされている鉛管延長、pH 及び水温と、給水栓における鉛濃度測定値との関係につき検討したが、これらの間に明確な関係は認められなかった。鉛管が用いられている水道であっても、その地点が採水地点として選ばれていない場合や、15 分間滞留水でなく流水が採取されている場合があり、このような現状について今後さらに詳しく調査する必要があると考えられた。

採水方法の違いが給水栓での鉛濃度測定結果に及ぼす影響について明らかにするため、東京都が給水末端に設置している試験用鉛管 8 地点（延長 1、3 及び 6m、口径 13mm）において、約 3 年間にわたって 1 回/1~4 ヶ月の頻度で 15 分間滞留水及び流水を採取し、鉛濃度の測定を行った。この結果、15 分間滞留水と流水では濃度の違いが明らかに認められ、前者の方が後者に比べて 2 倍近く高い値を示したが、約 3 年間の時間経過に伴う鉛濃度の低下傾向などは特に認められなかった。

全国の水道事業体のうち、原水中のアンモニア態窒素濃度が 0.4mg/l を超えている 128 事業体を含めて、178 事業体を対象にアンケート調査を実施した。この結果、水道原水中のアンモニア態窒素濃度の最高値は 3.02mg/l で、地下水を水源としている事業体で高い値が多く検出されていた。原水中のアンモニア態窒素濃度とカルキ臭による苦情との関係は明確ではなかった。

カルキ臭は、水道水の塩素消毒によって生じる独特の臭気であり、水道水の水質に対する消費者の苦情の中で最も代表的なものである。塩素処理に伴う水道水の臭気につき文献調査した結果、以下のような場合にそのような臭気が生成されることが明らかとなった。①pH が非常に低い条件で、アンモニアと塩素が反応した場合。②pH が中性域であっても、アンモニアに対する塩素のモル比が非常に高い条件で、アンモニアと塩素が反応した場合。③アミノ酸と塩素が反応した場合である。上記のうち①と②の場合には、トリクロロミンが生成されている可能性が高いことが示唆されていた。また、③の場合には、アンモニアをブレイクポイント処理した場合よりも強い臭気

を発することがあることが認められていた。

これらのことから、水道水のカルキ臭の主な原因物質はトリクロロミンであると考えられた。トリクロロミンの生成を抑制するためには、その原因物質であるアンモニアやアミノ酸の濃度をできるだけ低くすること、並びに、消毒における塩素濃度を十分に高く保つことが重要であると考えられた。

リスク評価については次のようである。水質基準・目標・要検討項目等に関する最新情報のフォローアップでは、WHO の飲料水水質ガイドラインにおける最新の評価は、LOAEL の代わりにベンチマークドース (BMDL) を使用していること、動物実験の結果をヒトに外挿する際に PBPK 手法を用いて標的臓器等における化学物質濃度を補正していること、遺伝毒性発がん物質について BMDL を出発点とした直線外挿を行っていること、などが特徴的であり、水道水の水質基準改定においてもこのような評価方法についても適用する必要性があると考えられる。

内分泌攪乱物質や新たに健康影響等が懸念される物質の毒性情報収集において、有機スズ化合物については、生殖発生毒性および免疫毒性に関する研究は多く報告されているが、その他の一般毒性、特に長期曝露に関する情報はほとんどないことが明らかとなった。得られた情報からブチルあるいはフェニルの三および二置換体が同レベル曝露で影響を示すのに対して、モノ置換体の毒性は弱いことが示唆された。また、メチルおよびエチルなどの低級アルキル置換体は、生殖発生毒性および免疫毒性よりも神経毒性を示す傾向が高いことが示された。PBDE に関しては、毒性データは限られていたものの、多くの場合、肝重量の増加、T4 の減少、生殖発生影響が数 mg/kg 以上で認められていた。一方で、一部の同族体 (BDE-47 や BDE-99 : Penta-BDE の主成分) については、より低用量での胎生/新生児期曝露による影響 (精子数減少や行動異常など) が認められていることが明らかとなった。今後は、曝露情報と共に、他の同族体での低用量影響や、代謝物での影響を調べる研究が必要であると考えられる。HBCD と TBBPA については比較的多くの情報を得ることが出来た。HBCD については肝臓および甲

状腺への影響が報告されており、最近報告された 28 日間反復投与試験では甲状腺重量の変化をもとに BMDL は 1.6 mg/kg/day とされている。一方、TBBPA の 28 日/90 日間反復投与試験では 1,000 mg/kg/day 投与によっても明確な有害影響は観察されていない。HBCD および TBBPA 共に、遺伝毒性および胎児毒性/催奇形性は認められていないが、最近、神経発達への影響を示唆する変化が報告されている。

日本と WHO の水道水質基準値設定手法の比較においては、TDI と VSD の算出のための一般原理は同じであるが、適用されたエンドポイントが異なることが明らかになった。実験動物で観察された影響をヒトに外挿する際には毒性の性質やその機構などを考慮する必要があり、最新の科学的知見に基づいた日本の基準値はより適切と考えられる。さらに、基準値の算出に用いられた飲水寄与率が異なることも明らかになったが、近年、ミネラルウォーターとして瓶詰めされた多くの飲料水が世界的に流通していることから、今後は化学物質リスク評価の国際的協調が必要とされるであろう。化学物質に対する新生児の感受性に関する研究では、対象とした 18 物質のうち、およそ 2/3 の物質については、新生児ラットが若齢ラットよりも明らかに高い感受性 (新生児ラットで 2 倍から最大 8 倍の感受性) を示し、残りの物質については、若齢ラットと同等の感受性、もしくは新生児ラットの方が低い感受性 (0.1 から 2 倍未満) を示した。なお、例外として、新生児ラットのみで腎毒性が観察された物質が 1 物質あった。新生児は高感受性集団の一つであるが、リスクアセスメントでは、種内差に対して用いられている不確実係数 10 が新生児集団もカバーしていると考えられる。

E. 結論

水質基準に定められている項目の健康影響リスクや利便性の観点から、それらの水質特性に応じて水道における存在状況、処理性および水質試験方法の確立を行うとともに、水道水から揮散した化学物質の経気曝露量をも考慮した評価手法についても明らかにした。さらに、WHO の飲料水水質ガイドラインでの健康影響リスク評価で

ンチマークドーズ法が遺伝毒性を有する発ガン物質についても適用されるようになっており、このような観点からのリスクの再評価が必要であると考えられる。水道法に定める水質基準は、健康影響リスクばかりでなく水道水の利便性の観点からも定められており、後者の観点から見るとWHO 飲料水水質ガイドラインで勧告している「水安全計画」は、HACCP の概念を基礎に危害因子の同定とその適切な制御を行うことにより、水源から給水栓までを通した系統的な水質管理を行うこと求めており、このような予防保全的アプローチをわが国の水道に導入すべきである。

水道水の水質特性に関する広範な研究とリスク評価と管理からの研究から、水質基準改定のための最新の科学的知見が得られた。平成18年度における水質基準の改定に本研究の成果がすでに活用されているが、安全・安心・良質な水道水の供給のためのベンチマークである水質基準が科学的な根拠によるものであるよう引き続き同じ目的を持つ研究が実施されるべきである。

F. 健康危険情報

なし

G. 研究発表

1. 論文発表

T. Ohgai, Y. Oguchi, K. Ohno, T. Kamei, Y. Magara and M. Itoh "Development of evaluation methods to introduce a nanofiltration membrane process in drinking water treatment" Water Supply Vol 6 No 2 pp 9-17, 2006

T. Nishimura, S. Iizuka, N. Kibune and M. Ando, Study of 1,4-dioxane in the total diet using the market-basket method. J. Health Sci., 50, 100-107, 2004.

T. Umemura, Y. Kitamura, K. Kanki, S. Maruyama, K. Okazaki, T. Imazawa, T. Nishimura, R. Hasegawa, A. Nishikawa and M. Hirose, Dose-related changes of oxidative stress and cell proliferation in kidneys of male and female F344 rats exposed to potassium bromate, Cancer Sci., 95, 393-398, 2004.

金志勲 許春蓮 秋葉道宏 宮川徹也 千葉信男 西村修 西村哲治 安藤正典 水道水源における同化性悠基炭素の動態に関する基礎的研究, 水道協会雑誌, 第73巻 第11号 p11-p18, 2005.

T. Nishimura, S. Iizuka, N. Kibune, M. Ando and Y. Magara. Study of 1,4-dioxane intake in the total diet. J. Health Sci., 51(4), 514-517, 2005..

秋葉道宏、国包章一：水道における利水障害の

発生状況とその対策、水環境学会誌、28(5)、296-300, 2005.

押見誠則、藤本尚志、鈴木昌治、大西章博、秋葉道宏、国包章一：かび臭産生藻類 *Phormidium tenue* を溶解する細菌の分離と溶藻特性に関する研究、水環境学会誌、28(6)、25-30, 2005.

Ogawa Y., Kawamura Y., Wakui C., Mutsuga M., Nishimura T. and Tanamoto, K.. Estrogenic activities of chemicals related to food contact plastics and rubbers tested by the yeast two-hybrid assay. Food Additives and Contaminants, 2006, 23(4), 422-430.

Masago Y., Katayama H., Watanabe T., Haramoto E., Hashimoto A., Omura T., Hirata T. and Ohgaki S. Quantitative Risk Assessment of Noroviruses in Drinking Water Based on Qualitative Data in Japan, *Environ. Sci. Technol.*, 2006, 40, 7428-7433.

Matsushita, T., Le-Clech, P., Chen, V. and Wickramasinghe, S.R., Behavior of gold colloid as model viruses during filtration through adsorptive ion exchange membranes, *Desalination*, 199 (1-3), 105-107, 2006.

Matsushita, T., Matsui, Y. and Shirasaki, N., Analyzing mass balance of viruses in a coagulation-ceramic microfiltration hybrid system by a combination of the polymerase chain reaction (PCR) method and the plaque forming units (PFU) method, *Water Science and Technology*, 53 (7), 199-207, 2006.

T. Izumi, K. Yagita, T. Endo, T. Ohyama. Detection System of *Cryptosporidium parvum* Oocysts by Brackish Water Benthic Shellfish (*Corbicula japonica*) as a Biological Indicator in River Water. Arch. Environ. Contam. Toxicol., 51, 559-566, 2006.

T. Izumi, K. Yagita, T. Endo, T. Ohyama. Detection System of *Cryptosporidium parvum* Oocysts by Brackish Water Benthic Shellfish (*Corbicula japonica*) as a Biological Indicator in River Water. Arch. Environ. Contam. Toxicol., 51, 559-566, 2006.

Katsuhiko Ohata, Kanji Sugiyama, Mitsuaki Suzuki, Rieko Shimogawara, Shinji Izumiyama, Kenji Yagita, Takuro Endo : Growth of *Legionella* in Nonsterilized, Naturally Contaminated Bathing Water in a System that Circulates the Water. IN *Legionella: State of the Art 30 Years after Its Recognition*. Eds. Nicholas P. Cianciotto et al. 2006 ASM Press, Washington, D.C.

Kanji Sugiyama, Katsuhiko Ohata, Mitsuaki Suzuki, Rieko Shimogawara, Shinji Izumiyama, Kenji Yagita, Takuro Endo : Inhibition of *Legionella* Growth in Circulating Bathing Water by Filter Refreshment Method Using High Concentration Chlorine. IN *Legionella: State of the Art 30 Years after Its Recognition*. Eds. Nicholas P. Cianciotto et al. 2006 ASM Press, Washington, D.C.

遠藤卓郎。提言－新寄生虫事情－食品衛生研究。56(6), 5, 2006.

- F. Kura, J. Amemura-Maekawa, K. Yagia, T. Endo, M. Ikeno, H. Tsuji, M. Taguchi, K. Kobayashi, E. Ishii and H. Watanabe. Outbreak of Legionnaires' disease on a cruise ship linked to spa-bath filter stones contaminated with *Legionella pneumophila* serogroup 5. *Epidemiol. Infect.*, 134, 385-391, 2006.
- Tadashi Itagaki, Shisuka Kinoshita, Mikiko Aoki, Naoyuki Itoh, Hideharu Saeki, Naoto Sato, Junya Uetsuki, Shinji Izumiyama, Kenji Yagita, Takuro Endo. Genotyping of *Giardia intestinalis* from domestic and wild animals in Japan using glutamate dehydrogenase gene sequencing. *Veterinary Parasitology*, 133, 283-287, 2005.
- 遠藤卓郎, 黒木俊郎. クリプトスポリジウム・ジアルジア感染症 - 話題の疾患と治療. 感染・炎症・免疫 35(3), 77-79, 2005.
- 遠藤卓郎, 八木田健司, 泉山信司. いま, 知っておきたい話題 クリプトスポリジウム症. 日本医事新報 No.4236, 33-36, 2005.
- 黒木俊郎, 泉山信司, 遠藤卓郎. [話題の感染症] クリプトスポリジウムの最近の知見. モダンメディア 51(4), 75-80, 2005.
- 遠藤卓郎, 八木田健司, 泉山信司. <特集 ヒトと動物の新興感染症> クリプトスポリジウム症. *Medical Science Digest* 31(1), 27-30, 2005.
- T. Izumi, Y. Itoh, K. Yagita, T. Endo, T. Ohyama. Brackish Water Benthic Shellfish (*Corbicula Japonica*) as a Biological Indicator for *Cryptosporidium parvum* Oocysts in River Water. *Bull. Environ. Contam. Toxicol.*, 72:29-37, 2004.
- 遠藤卓郎, 泉山信司. 「病原微生物対策への理解に向けて」 Safe Drinking-Water: for the Control of Microbial Hazards. 用水と廃水 46(7), 43-49, 2004.
- 遠藤卓郎, 黒木俊郎, 泉山信司. <話題の感染症> ジアルジア症. モダンメディア 50(4), 73-77, 2004.
- 遠藤卓郎, 八木田健司, 泉山信司. レジオネラ症 Update - 宿主アメーバからみたレジオネラの水系汚染対策. 臨床と微生物 32(4), 383-388, 2005.
- P.R. Hunter, Y. Andersson, C.H. Von Bonsdorff, R.M. Chalmers, E. Cifuentes, D. Deere, T. Endo, M. Kadar, T. Krogh, L. Newport, A. Prescott and W. Robertson. Surveillance and Investigation of Contamination Incidents and Waterborne outbreaks. Chapter 7. Assessing Microbial Safety of Drinking Water - Improving Approaches and Methods. World Health Organization, OECD, 205-236, 2003.
- W. Koster, T. Egli, N. Ashbolt, K. Botzenhart, N. Burlion, T. Endo, P. Grimont, E. Guillot, C. Mobilat, L. Newport, M. Niemi, P. Payment, A. Prescott, P. Renaud and A. Rust. Analytical Methods for Microbiological Water Quality Testing. Chapter 8. Assessing Microbial Safety of Drinking Water - Improving Approaches and Methods. World Health Organization, OECD, 237-292, 2003.
- Kosaka K., Asami M., Matsuoka Y., Kamoshita M., and Kunikane, S.: Occurrence of perchlorate in drinking water sources of metropolitan area in Japan, *Water Research*. (投稿中).
- 越後信哉, 伊藤禎彦, 夏井智毅: 染色体異常誘発性からみた浄水プロセスにおけるオゾン/塩素処理の評価, 環境工学研究論文集, Vol.43, pp.599-604, 2006.
- Kuwahara, M., Miura, M., Niwa, A., Echigo, S., and Itoh, S.: Bromide removal by hydrotalcite-like compounds, *Adv. Asian Environ. Eng.*, Vol.5, No.1, pp.47-52, 2006.
- 越後信哉, ロジャー マイニーア: 浄水プロセスにおける NOM およびフェノール性化合物の臭素化反応の速度論環境システム制御学会誌, Vol. 10, No.2, pp.44-52, 2005.
- 浅見真理: 水道水の成分と検査, チャイルドヘルス, Vol.8, No.7, pp.22-27, 2005.
- 浅見真理: 水の安全管理, チャイルドヘルス, Vol.8, No.7, pp.29-32, 2005.
- 越後信哉, 伊藤禎彦, 荒木俊明, 安藤良: 臭化物イオン共存下での塩素処理水の安全性評価: 有機臭素化合物の寄与率, 環境工学研究論文集, Vol.41, pp.279-289, 2004.
- Echigo, S., Itoh, S., Natsui, T., Araki, T., and Ando, R.: Contribution of brominated organic disinfection by-products to the mutagenicity of drinking water. *Water Sci. Technol.*, Vol.5, No.5, pp.321-328, 2004.
- Ayano, E., Kanazawa, H., Ando, M. and Nishimura, T.: sulfonyleurea and urea herbicides in water samples using liquid chromatography with electrospray ionization mass spectrometric detection, *Anal. Chim. Acta*, 507, pp.211-218, 2004.
- Ayano, E., Okada, Y., Sakamoto, C., Kanazawa, H., Okano, T., Ando, M. and Nishimura, T.: Analysis of herbicides in water using temperature-responsive chromatography and an aqueous mobile phase, *J. Chromatogr. A*, 1069, pp.281-285, 2005.
- Tahara, M., Kubota, R., Nakazawa, H., Tokunaga, H. and Nishimura, T.: Use of cholinesterase activity as an indicator for the effects of combinations of organophosphorus pesticides in water from environmental sources, *Water Res.*, 39(20), pp.5112-5118, 2005.
- Matsui, Y., Inoue, T., Matsushita, T., Yamada, T., Yamamoto, M. and Sumigama, Y.: Effect of uncertainties of agricultural working schedule and monte-carlo evaluation of the model input in basin-scale runoff model analysis of herbicides., *Water Sci. & Tech.*, 51(3-4), pp.329-337, 2005.
- Matsui, Y., Narita, K., Inoue, T. and Matsushita, T., Screening level analysis for monitoring pesticide in

river water using a hydrological diffuse pollution model with limited input data, *Water Sci. & Tech.*, **53**(10), pp.173-81, 2006.

Matsui, Y., Narita, K., Inoue, T. and Matsushita, T.: Investigation rice-farming pesticide concentrations in river water using a basin-scale runoff model with uncertain inputs, *Transactions of the ASABE*, **49**(6), pp.1723-1735, 2006.

Tahara, M., Kubota, R., Nakazawa, H., Tokunaga, H. and Nishimura, T.: Analysis of active oxon forms of nine organophosphorus pesticides in water samples using gas chromatography with mass spectrometric detection, *J. Health Science*, **52**(3), pp.313-319, 2006.

相澤貴子, 嶋田俊夫, 鎌田素之, 西村哲治: 水道における新たな農薬監視体制, *用水と排水*, pp.56~64, 2004.

西村哲治: バイオアッセイの未来, *環境浄化技術*, pp.1~6, 2005.

嶋津治希, 杉田育生, 橋渡健児, 米倉祐司, 高尾健一郎, 広田忠彦: 太田川流域の浄水場における農薬類検出実態と原水中濃度の予測, *水道協会雑誌*, **74**(1), pp.19~27, 2005.

新井崇子, 鎌田素之, 島崎大, 浅見真理, 相澤貴子: 農薬の分子構造別の塩素分解性に関する研究, *水環境学会誌*, **28**(7), pp.437~444, 2005.

池貝隆宏: 流域の環境負荷評価のための農薬流出推定, *環境情報科学論文集*, **20**, pp.31~36, 2006.

嶋志田公洋, 小坂浩司, 浅見真理, 相澤貴子: 塩素処理における有機りん系農薬の類型別反応性とオキソン体への変換について, *水環境学会誌*. (掲載予定)

Shoichi Kunikane(2007) Application of □Water Safety Plan□to drinking water quality management in Japan. Proceedings of the Japan-U.S. Governmental Conference on Drinking Water Quality Management and Wastewater Control, Okinawa, January 2007.

Ema M, Fujii S, Ikka T, Matsumoto M, Hirose A, Kamata E. Early pregnancy failure induced by dibutyltin dichloride in mice. *Environ Toxicol*, **22**, 44-52, 2007.

Ema M, Fujii S, Matsumoto M, Hirose A, Kamata E. Prenatal developmental toxicity study of basic rubber accelerator, 1,3-di-*o*-tolylguanidine, in rats. *Reprod Toxicol*, **22**, 672-678, 2006.

Ema M, Fukui Y, Aoyama H, Fujiwara M, Fuji J, Inouye M, Iwase T, Kihara T, Oi A, Otani H, Shinomiya M, Sugioka K, Yamano T, Yamashita KH, Tanimura T. Comments from the Developmental Neurotoxicology Committee of the Japanese Teratology Society on the OECD Guideline for the Testing of Chemicals, Proposal for a New Guideline 426, Developmental Neurotoxicity Study, Draft Document (October 2006 version), and on the Draft Document of the Retrospective Performance

Assessment of the Draft Test Guideline 426 on Developmental Neurotoxicity. Cong Anom (in press). Ema M, Fukunishi K, Matsumoto M, Hirose A, Kamata E. Evaluation of Developmental Toxicity of Ultraviolet Absorber 2-(3',5'-Di-*tert*-butyl-2'-hydroxyphenyl)-5-chlorobenzotriazole in Rat. *Drug Chem Toxicol* **29**, 215-225, 2006.

Ema M, Fukunishi K, Matsumoto M, Hirose A, Kamata E, Ihara T. Developmental toxicity of dibutyltin dichloride in cynomolgus monkeys. *Reprod Toxicol*, **23**, 12-19, 2007.

Ema M, Hara H, Matsumoto M, Hirose A, Kamata E. Evaluation of developmental toxicity of 1-butanol given to rats in drinking water throughout pregnancy. *Food Chem Toxicol*, **43**, 325-331, 2005.

Ema M, Harazono, A., Fujii, S. and Kawashima, K.

Evaluation of developmental toxicity of β -thuyaplicin (hinokitiol) following oral administration during organogenesis in rats. *Food Chem. Toxicol.*, **42**, 465-470, 2004.

Ema M, Hirose A. Reproductive and developmental toxicity of organotin compounds. Golub MS, Ed. *Metals, Fertility, and Reproductive Toxicity*, CRC Press, Boca Raton, 23-64, 2006.

Ema M, Ito Y, Matsumoto M, Hirose A, Kamata E. Combined repeated dose and reproductive/developmental toxicity study of rubber accelerator, N,N-dicyclohexyl-2-benzothiazolesulfenamide, in rats. *Drug Chem Toxicol*, **30** (in press).

Ema M, Kimura E, Matsumoto M, Hirose A, Kamata E. Reproductive and developmental toxicity screening test of basic rubber accelerator, 1,3-di-*o*-tolylguanidine, in rats. *Reprod Toxicol* **22**, 30-36, 2006.

Fukuda, N., Ito, Y., Yamaguchi, M., Mitsumori, K., Koizumi, M., Hasegawa, R., Kamata, E. and Ema, M. Unexpected nephrotoxicity induced by tetrabromobisphenol A in newborn rats. *Toxicol. Lett.*, **150**, 145-150, 2004.

Fukui Y, Ema M, Fujiwara M, Higuchi H, Inouye M, Iwase T, Kihara T, Nishimura T, Oi A, Ooshima Y, Otani H, Shinomiya M, Sugioka K, Yamano T, Yamashita KH, and Tanimura T. Comments from the Behavioral Teratology Committee of the Japanese Teratology Society on OECD Guideline for the Testing of Chemicals, Proposal for a New Guideline 426, Developmental Neurotoxicity Study, Draft

- Document (September 2003). Cong. Anom. (Kyoto)., 44,172-177, 2004.
- Hamamura M, Hirose A, Kamata E, Katoku K, Kuwasaki E, Oshikata T, Nakahara Y, Emma M, Hasegawa R. Semi-quantitative immunohistochemical analysis of male rat-specific alpha(2u)-globulin accumulation for chemical toxicity evaluation. J Toxicol Sci., 31: 35-47, 2006.
- Hasegawa R, Hirata-Koizumi M, Dourson M, Parker A, Hirose A, Kamata E, Emma M. Pediatric Susceptibility to 18 Industrial Chemicals: A Comparative Analysis with Older Experimental Animals. Regul Toxicol Pharmacol, 47, 2006 Dec 6; Epub ahead of print PMID: 17157422.
- Hasegawa R, Hirata-Koizumi M., Takahashi M, Kamata E, Emma M. Comparative susceptibility of newborn and young rats to six industrial chemicals. Congenit Anom Kyoto, 45, 137-145, 2005.
- Hasegawa R, Koizumi M, Hirose A. Principles of risk assessment for determining the safety of chemicals: Recent assessment of residual solvents in drugs and di(2-ethylhexyl) phthalate. Congenit Anom (Kyoto), 44, 51-59, 2004.
- Hayashi M, Kamata E, Hirose A, Takahashi M, Morita T, Emma M. In silico assessment of chemical mutagenesis in comparison with results of Salmonella microsome assay on 909 chemicals. Mutat. Res., 588:129-135, 2005
- Hirata-Koizumi M., Hamamura M, Furukawa H, Fukuda N, Ito Y, Wako Y, Yamashita K, Takahashi M, Kamata E, Emma M, Hasegawa R. Elevated susceptibility of newborn as compared with young rats to 2-tert-butylphenol and 2,4-di-tert-butyl phenol toxicity. Congenit Anom Kyoto, 45, 146-153, 2005.
- Hirata-Koizumi M., Nishimura N., Enami T., Wada H., Ogata H., Yamamoto Y., Ito Y., Kamata E., Emma M. and Hasegawa R. The susceptibility of newborn rats to the hepatotoxicity of 1,3-dibromopropane and 1,1,2,2-tetrabromoethane, compared with young rats. J. Toxicol. Sci., 30, 29-42, 2005.
- Hirose A, Hasegawa R, Nishikawa A, Takahashi M and Emma M. Revision and establishment of Japanese drinking water quality guidelines for di(2-ethylhexyl) phthalate, toluene and vinyl chloride - differences from the latest WHO guideline drafts -. J Toxicol Sci, 29, 535-539, 2004.
- Takahashi M, Hirata-Koizumi M, Nishimura N, Ito Y, Sunaga M, Fujii S, Kamata E, Hasegawa R, Emma M. Susceptibility of newborn rats to 3-ethylphenol and 4-ethylphenol compared with that in young rats. Congenit Anom Kyoto, 46: 26 -33, 2006.
- Takahashi M, Ogata H, Izumi H, Yamashita K, Takechi M, Hirata-Koizumi M, Kamata E, Hasegawa R, Emma M. Comparative toxicity study of 2,4,6-trinitrophenol (picric acid) in newborn and young rats. Cong. Anom. (Kyoto). 44, 204-214, 2004.
- 江馬 眞. OECD の高生産量化学物質安全性点検プログラムとその手順、化学生物総合管理学会, 2, 83-103, 2006.
- 江馬 眞. 生殖発生毒性試験の役割、産科と婦人科 74 巻 3 号 (特集/妊娠と薬), 309-315, 2007.
- 高橋美加、平田睦子、松本真理子、広瀬明彦、鎌田栄一、長谷川隆一、江馬 眞、OECD 化学物質対策の動向 (第 6 報) - 第 14 回 OECD 高生産量化学物質初期評価会議 (2002 年パリ)、化学生物総合管理学会誌、1, 46-55, 2005.
- 高橋美加、平田睦子、松本真理子、広瀬明彦、鎌田栄一、長谷川隆一、江馬 眞、OECD 化学物質対策の動向 (第 7 報) - 第 15 回 OECD 高生産量化学物質初期評価会議 (2002 年ボストン)、衛研報告、123, 46-52, 2005.
- 高橋美加、松本真理子、川原和三、菅野誠一郎、菅谷芳雄、広瀬明彦、鎌田栄一、江馬 眞、OECD 化学物質対策の動向 (第 8 報) - 第 16 回 OECD 高生産量化学物質初期評価会議 (2003 年パリ)、化学生物総合管理学会誌、2, 147-162, 2006.
- 高橋美加、松本真理子、川原和三、菅野誠一郎、菅谷芳雄、広瀬明彦、鎌田栄一、江馬 眞、OECD 化学物質対策の動向 (第 9 報) - 第 17 回 OECD 高生産量化学物質初期評価会議 (2003 年アローナ)、化学生物総合管理学会誌、2, 163-175, 2006.
- 高橋美加、松本真理子、川原和三、菅野誠一郎、菅谷芳雄、広瀬明彦、鎌田栄一、江馬 眞、OECD 化学物質対策の動向 (第 10 報) - 第 18 回 OECD 高生産量化学物質初期評価会議 (2004 年パリ)、化学生物総合管理学会雑誌、2, 286-301, 2006.
- 高橋美加、松本真理子、川原和三、菅野誠一郎、菅谷芳雄、広瀬明彦、鎌田栄一、江馬 眞、OECD 化学物質対策の動向 (第 11 報) - 第 19 回 OECD 高生産量化学物質初期評価会議 (2004 年ベルリン)、国立医薬品食品衛生研究所報告、124, 62-68, 2006.
- 広瀬明彦、江馬 眞. 生殖発生毒性を指標としたダイオキシンの耐容 1 日摂取量 (TDI) 算定の考え方について、国立医薬品食品衛生研究所報告 122: 56-61, 2004.
- 松本真理子、川原和三、菅谷芳雄、江馬 眞、OECD 高生産量化学物質点検プログラム：第 21

回初期評価会議概要, 化学生物総合管理学会誌, 2, 135-146, 2006.

松本真理子、鈴木理子、川原和三、菅谷芳雄、江馬 眞、OECD 高生産量化学物質点検プログラム：第 20 回初期評価会議概要, 化学生物総合管理学会誌 1, 445-453, 2005.

松本真理子、高橋美加、平田睦子、広瀬明彦、鎌田栄一、長谷川隆一、江馬 眞、OECD 高生産量化学物質点検プログラム：第 18 回初期評価会議までの概要、化学生物総合管理学会誌, 2, 104-135, 2006.

松本真理子、田中里依、川原和三、菅谷芳雄、江馬 眞、OECD 高生産量化学物質点検プログラム：第 19 回初期評価会議概要, 化学生物総合管理学会誌 1, 280-288, 2005.

松本真理子、日下部哲也、川原和三、菅谷芳雄、江馬 眞、OECD 高生産量化学物質点検プログラム：第 22 回初期評価会議概要, 化学生物総合管理学会誌, 2, 302-312, 2006.

2. 学会発表

省略

H 知的所有権の取得状況

クリプトスポリジウム等の回収方法と上水試料保存のための、溶解可能な多孔質粉体を支持体に充填（重層）フィルターとしたろ過方法。特願 2006-211340

厚生労働科学研究費補助金（地域健康危機管理研究事業）
総合分担研究報告書

最新の科学的知見に基づく水質基準の見直し等に関する研究
—— 無機物質分科会 ——

主任研究者 眞柄 泰基 北海道大学 創成科学研究機構 特任教授
分担研究者 伊藤 雅喜 国立保健医療科学院 水道工学部 水道計画室長
分担研究者 国包 章一 国立保健医療科学院 水道工学部長

研究要旨

無機物質分科会では、残留アルミニウムの低減化、水道用資機材からの有機スズの溶出、セレン、ホウ素等水質基準項目の他、監視項目、要検討項目、その他 WHO ガイドラインの逐次改訂項目となる可能性のある物質について原水、浄水処理過程、水道水における存在量、除去性の調査および処理技術、測定方法の開発等について調査検討を行った。

アルミニウムの実態調査において浄水中のアルミニウム濃度が 0.1 mg/L を超過もしくは超過の恐れがある浄水場では、基準値が 0.1 mg/L へ引き下げられた場合、対応が困難あるいは難しいとしたものが 80%以上となった。理由としては低水温、低濁度、高濁度、藻類、高 pH が主たるものであった。対応策としては凝集剤の多量注入、アルカリ剤や硫酸等による pH 値の改善などを行っているが、一つの対策が他の部分へ影響を及ぼす場合もあり、財政面を含め対応に苦慮している事業体が多い。対策事例として硫酸添加により、従来より低pH側へ制御することで、アルミニウム濃度を 0.1 mg/L 以下にすることが可能であることがいくつかの浄水場で実証された。

ナノろ過では、前処理に使用する凝集剤の違いによりファウリングの発現が異なることが示され、凝集剤の種類がフラックスの低下に影響を及ぼすことが示された。

水道用資機材からの有機スズ化合物の溶出に関する研究では、分析方法、試験方法を確立させ複数箇所ですべて統一した実験を行った。一部の製品では 0～3 日のコンディショニング期間で数種類の有機スズで溶出が認められた。全スズについても 0 日で高い溶出濃度を示し急激に低下する傾向を示したため、使用実態を反映するような試験方法の検討が必要である。

WHO の資料ではカルシウム、マグネシウムの推奨値としてそれぞれ適正值 40～80mg/L、20～30mg/L が示されている。わが国でも従来の水の腐食性に加え、健康影響リスクの観点から硬度の分布特性や技術的対応などについての調査・研究が必要になると考えられる。硬度成分と関連する LI の調査研究では、日本の水道水の LI に大きく影響しているのは水源の種類によらず、ミネラル分や溶解性成分であると判断された。

その他の物質については、ほとんどが基準値または目標値の 70%以内に収まっていた。超過率が高かったのはアルミニウムで、これは凝集剤として使用されていることから、先にテーマとしている浄水処理との関係から検討している。

A. 研究目的

本研究では水道水質として問題となる無機物質等のうち水質基準項目である、アルミニウム、セレン、フッ素、ホウ素の他、監視項目、要検討項目となっているニッケル、モリブデン、バリウム、さらに水道用資機材から溶出の恐れが懸念される有機スズ化合物を対象物質とし、測定方法の開発や原水、浄水処理過程、水道水における存在量、除去性の調査および処理技術について調査検討を行うことを目的としている。また WHO 飲料水水質ガイドラインの改訂項目となっている無機物質に関しては随時検討項目に取り入れ、存在状況、処理性等、水質基準の逐次改訂作業のための基礎的情報を収集することとした。

B. 研究方法

本研究を実施するにあたり、大学、国立試験研究機関、水道事業者等の分担研究者、研究協力者による研究分科会を組織し、以下のテーマについて研究を行った。

1) アルミニウムの低減化に関する研究

アルミニウムは平成 16 年 4 月に施行された新水質基準でそれまでの快適水質項目から基準項目になり、基準値 0.2 mg/L が定められた。WHO では大規模浄水場での実用レベルとして 0.1 mg/L が示されるなど、今後、残留アルミニウムをどこまで低減できるか等については代替凝集剤への転換の可能性等を含め調査・研究が必要である。

本研究テーマでは浄水施設におけるアルミニウムの現状、対策等の調査をおこない、原水特性と残留アルミニウムの関係や、処理・対策上の問題点などを明らかにし浄水処理における改善方法の低減を目指す。合わせて代替凝集剤導入の可能性についても検討する。

平成 12～14 年度の水道統計および平成

15 年度に行ったアルミニウムの実態に関するアンケート調査のとりまとめを行うとともに、各水道事業者で行った残留アルミニウムの実態調査、低減化対策、代替凝集剤についての研究事例を収集した。アンケート調査はアルミニウムの最大値が 0.1 mg/L を超える、または近い値である水道事業者および水道用水供給事業の計 76 事業者を対象として、水質基準を 0.1 mg/L としたときの対応可能性等について調査した。

新たな処理方式と凝集剤の適用について、高度処理として期待されるナノろ過の前処理に用いる凝集剤とファウリング発現について PAC、鉄系凝集剤を用いた小型回分式実験装置を用いた検討を行った。

2) 水道用資機材からの有機スズ等化合物の溶出に関する研究

水道用硬質塩化ビニル管等の水道用資機材には安定剤として有機金属化合物(主としてジメチル系、ジブチル系およびジオクチル系有機スズ化合物)が用いられている。

本研究テーマでは既往・関連研究に関する調査や毒性に関する最新情報の収集を図るとともに、適切な試験方法の検討と汎用性の高い微量有機スズ化合物の分析方法を確立し、それに基づいた溶出試験を行った。

平成 16 年度はこれまでの研究で開発された分析方法・溶出試験方法等の検討を行い、今後必要となる検討項目の整理を行った。合わせて毒性に関する文献調査も行った。

平成 17・18 年度はこれまで開発してきた分析方法をもとに、複数機関による同一のコンディショニング方法、分析方法により有機スズの溶出試験を行い、コンディショニング日数と溶出濃度の関係を明らかにした。分析方法は誘導体化-SPME(ヘッドスペース)-GC/MS 法とし、SPME 条件、GC/MS 測定条件は各

機関に任せた。モノおよびジメチルスズについては一部、誘導体化-HS-GC/MS法とした。供試試料は各機関で同一のPVC管を用いた。有機スズの他、臭気(官能法)、TOC、残留塩素の測定も行った。

3) セレン、フッ素、ホウ素等無機物質に関する研究

3.1) WHO 飲料水水質ガイドライン逐次改訂項目の調査(平成16年度)

WHOの逐次改訂項目として挙げられているニッケルと水銀について改定案についての情報を収集した。

3.2) 海水淡水化施設等におけるホウ素濃度の実態調査(平成17年度)

ホウ素は平成16年4月施行の新水質基準で基準項目となり、基準値1.0mg/Lが定められた。海水淡水化施設のホウ素濃度については、平成11年に国内の約7割の施設について実態調査を行っているが、未実施の施設や新たに設置された施設もあり、新水質基準施行後の実態も把握されていないことから、今回改めて調査を行った。

調査対象は国内の生活用水として使用している海水およびかん水淡水化施設(71施設)を対象とし、稼働していない施設や送付先が不明な施設を除き54事業者を対象に調査を行った。27施設からの試料および24事業者、28施設についてアンケート回答があった。

3.3) 硬度成分、モリブデン、バリウム、ベリリウムに関する調査(平成17年度)

硬度成分であるカルシウム、マグネシウムについてはWHO飲料水水質ガイドラインの改訂対象として検討されることになっている。わが国の水道水は軟水であるため、硬度成分であるカルシウムおよびマグネシウムについての健康影響リスクについて文献調査を行った。

モリブデン、バリウム、ベリリウムについては

国内の現存量に関するデータはほとんどないため、現状把握のための実体調査を行った。特にベリリウムについてはガイドラインの次の改訂に入る可能性があるため今回の調査に含めた。調査は無機物質分科会の研究協力者である水道事業体で原水、浄水または配水、給水栓水の測定を行った。

3.4) 硬度及びランゲリア指数に関する実態調査(平成18年度)

平成17年度の研究では文献調査からカルシウム、マグネシウムについてはそれぞれ最低値として20mg/L、10mg/L、適正值として40~80mg/L、20~30mg/Lが示されている。これらは健康影響リスクの観点から示されたものであるが、一方でカルシウムは水の腐食性の観点からも重要である。

カルシウムは健康影響リスクの観点からWHO飲料水水質ガイドラインの逐次改訂の可能性があるが、一方で、ルシウムは水の腐食性の観点からも重要である。そこでカルシウム、マグネシウムおよびランゲリア指数(腐食性)に関する水質項目の整理を行うこととした。分科会分担研究者の所属する水道事業体の水質データおよび平成16年度水道統計のデータを分析した。

3.5) セレン等無機物質に関する実態調査(平成18年度)

セレンは必須元素であり、WHO飲料水水質ガイドラインの改訂により第4版で基準が見直される予定がある水質項目である。逐次改訂計画に合わせ、わが国における対応を考えるため分科会分担研究者の所属する水道事業体の原水・浄水のデータについて、水系別にデータを収集し実態の整理を行った。データ収集に当たっては定量下限値以下についても可能な限りデータの整理を行った。

このほかの無機物質については今後の