

第に濃度が減少していった。

(8) 農薬類の処理性と実態調査結果との関連性の検討

農薬類の塩素処理性、PAC 処理性についての既存の情報と、農薬類実態調査結果の比較を行ったところ、PAC 除去されにくく、かつ、塩素処理により分解しにくい農薬は 7 種類(カルボフラン(カルボスルファン代謝物)およびベンフラカルブを 2 種と数える)であったが、そのうち、4 種類は浄水検出率 1%以上の農薬であった。また、PAC 除去はされやすいが、塩素処理により分解しにくい農薬 41 項目中では、17 種類が浄水検出率 1%以上の農薬であった。

活性炭除去されやすく塩素処理により分解されやすい 38 農薬中では、浄水検出率 1%以上の農薬は 7 種類であったが、この分類には、塩素処理により速やかにオキソン体に変化する有機りん系農薬も含まれているため、オキソン体も含めた解析では項目数が変化する可能性があり、注意が必要であると考えられた。

F. 研究発表

(1) 論文発表

- 1) Ayano, E., Kanazawa, H., Ando, M. and Nishimura, T.: sulfonylurea and urea herbicides in water samples using liquid chromatography with electrospray ionization mass spectrometric detection, *Anal. Chim. Acta*, 507, pp. 211-218, 2004.
- 2) 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.
- 3) 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.
- 4) 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.
- 5) 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.
- 6) 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.
- 7) 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.
- 8) 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.
- 9) 西村哲治: バイオアッセイの未来, *環境浄化技術*, pp. 1~6, 2005.
- 10) 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.
- 11) 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.
- 12) 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.
- 13) 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)

(2) 学会発表

- 1) 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, *10th International Specialised Conference on Watershed and Riverbasin Management*,

- Calgary, Canada, 2005. (Published afterward in *Water Sci. & Tech.*, 53(10), pp.173-81, 2006)
- 2) Matsui, Y., Narita, K., Inoue, T. and Matsushita, T.: Precise data sets on farming and pesticide properties verify a diffuse pollution hydrological model for predicting pesticide concentration, *10th International Specialized Conference on Diffuse Pollution and Sustainable Basin Management*, Istanbul, Turkey, 2006.
 - 3) 村田恵呉, 佐藤和男, 柳川茂, 関根広行, 笠原典秀, 藤巻志津恵: 導水路活性炭の効果, 第 57 回全国水道研究発表会講演集, pp.280~281, 長崎, 2006.
 - 4) 土田佳幸, 成田健太郎, 松井佳彦, 大野浩一: モデルシミュレーションによる監視農薬の選定, 第 57 回全国水道研究発表会講演集, pp.564~565, 長崎, 2006.
 - 5) 鎌田素之, 相澤貴子, 西村哲治, 浅見真理: 農薬実態調査に基づく今後の農薬監視のあり方, 第 57 回水道研究発表会講演集, pp.566~567, 長崎, 2006.
 - 6) 荒井活人, 森美由紀, 大津光一, 細田憲男, 染谷暁子, 大原憲司: ダラポン(農薬)の消毒副生成物としての検出, 第 57 回全国水道研究発表会講演集, pp.580~581, 長崎, 2006.
 - 7) 鴨志田公洋, 小坂浩司, 浅見真理, 相澤貴子: 有機りん系農薬およびそのオキソンの塩素反応性, 第 57 回全国水道研究発表会講演集, pp.584~585, 長崎, 2006.
 - 8) 西村哲治, 菊池修一, 宇田川富男, 高須豊, 渡部祐介, 宮田雅典, 奥野雅司, 橋渡健児, 安恒実, 安藤正典: 水質管理目標設定項目の検査方法の改正ー農薬類ー, 第 57 回全国水道研究発表会講演集, 長崎, pp.632~633, 長崎, 2006.
 - 9) 田原麻衣子, 久保田領志, 中澤裕之, 長岡恵, 徳永祐司, 西村哲治: フェンチオンの環境動態に伴うコリンエステラーゼ活性阻害の増強, 第 57 回全国水道研究発表会講演集, pp.684~685, 2006.
 - 10) 鎌田素之, 相澤貴子, 眞柄泰基: 水道水源における農薬の監視手法に関する検討, 関東学院大学工学部研究報告, 50(1), pp.59~64, 2006.
 - 11) 酒井紳, 佐藤和男, 大谷喜一郎: 導水路内における粉末活性炭の吸着能力: 農薬除去に関する事例, 第 7 回水道技術国際シンポジウム講演集, pp.683~684, 2006.
 - 12) 田原麻衣子, 久保田領志, 中澤裕之, 徳永祐司, 西村哲治: コリンエステラーゼ活性阻害の強い構造特性, フォーラム 2006 衛生薬学・環境トキシコロジー講演要旨集, p201, 2006.
 - 13) 遠藤治, 鴨志田公洋, 小坂浩司, 浅見真理, 相沢貴子, 鈴木元: プタミホスの塩素処理副生成物の変異原性, 日本環境変異原学会第 35 回大会プログラム・要旨集, p105, 堺, 2006.
 - 14) 相澤 貴子, 鎌田 素之, 西村 哲治, 浅見 真理, 小坂 浩司: 検出実態を反映した農薬監視体制の提案, 第 58 回水道研究発表会講演集, 釧路, 2007. (発表予定)
 - 15) 川嶋彩夏, 田原麻衣子, 久保田領志, 徳永祐司, 西村哲治: 有機リン系農薬の塩素処理とその反応試料抽出物の影響評価, 第 41 回日本水環境学会年会講演集, 大阪, 2007. (発表予定)
 - 16) 川崎寛子, 田原麻衣子, 久保田領志, 徳永祐司, 西村哲治: LC/MS 法によるカーバメート系農薬の分析法の確立と浄水工程における除去性の評価, 第 41 回日本水環境学会年会講演集, 大阪, 2007. (発表予定)
 - 17) 田原麻衣子, 久保田領志, 中澤裕之, 徳永祐司, 西村哲治: チオノ型有機リン系農薬 24 種の塩素浄水処理における有害リスクに関する知見, 日本薬学会第 127 年会要旨集, 2007. (発表予定)

主任研究者 北海道大学創成科学共同研究機構 眞柄泰基
分担研究者 国立保健医療科学院 国包章一
社団法人日本水道協会 西野二郎

研究要旨

WHOによる「水安全計画」のわが国の水道への導入手法、水道水中の鉛に関する基準超過状況やより適切な試料採取方法、及び、水道水のカルキ臭の原因物質とその制御方法につき検討した。「水安全計画」に関しては、東京都水道局、横浜市水道局、大阪市水道局、大阪府水道部、大阪市水道局及び神戸市水道局において引き続きケーススタディーを実施した。これらのうち多くの水道事業体では、すでに試行の範囲を超えてその成果を実務に導入しつつあり、「水安全計画」が水道水質管理に有用であることが示された。また、これらの成果を踏まえて、都市水道における「水安全計画」導入のためのガイダンスを取りまとめた。給水栓水の鉛については、東京都が設置している調査用鉛管などを用いた実験により、他の条件が同じであれば、15分滞留水は流水の2倍程度の高い濃度となることが示された。しかし、試料採取方法が流水から15分滞留水に変更された平成16年度以降に、鉛濃度測定値の基準超過が特に際だっているわけではなかった。水道事業体では定期水質検査地点として鉛管を使用していない箇所を選定したり、15分滞留水でなく流水を採取したりしている傾向がアンケート調査で伺われたが、今後はこのようなことがないよう指導の徹底を図る必要がある。また、15分滞留水を採取する方法は十分に適切であると考えられた。水道水のカルキ臭の主な原因物質は、塩素とアンモニアの反応によって生成されるトリクロラミンであることが明らかとなった。トリクロラミンの生成には、アンモニアなどが原水中に存在することのほか、温度や塩素の添加率と添加方法などが関係するのではないかと推定された。トリクロラミンの生成を抑制するためには、まずブレイクポイントまで前塩素を注入してアンモニアを除去し、その後で改めて塩素を注入する二段塩素処理が有効であると考えられた。

A. 研究目的

本研究では、安全で快適な水道水の安定した供給を図るために必要な、水道における水質管理の適切なあり方につき明らかにすることを目的とした。平成16年9月に公表されたWHO飲料水水質ガイドライン第3版¹⁾では、食品分野等におけるHACCPの考え方を新たに取り入れた「水安全計画」を、各水道事業体が作成するよう勧告しており、わが国におけるその円滑な導入手法につき

検討した。また、平成14年の水道水質基準改正により鉛の水質基準が0.05mg/Lから0.01mg/Lに強化され、さらに平成16年の水道水質基準の全面改正に伴い、鉛についての水質検査試料の採取方法が、流水を採取する方法から15分間滞留水を5L採取する方法に改められたことから、鉛についての基準超過状況やより適切な試料採取方法につき検討した。このほか、水道水に関する利用者の苦情の多くはカルキ臭であることから、カ

ルキ臭の発生メカニズムとその低減化手法についても検討した。

B. 研究方法

1. 「水安全計画」のわが国への導入に関する研究

1. 1 「水安全計画」の試験的導入に関するケーススタディー

「水安全計画」をわが国の水道に導入する上での課題を抽出して、その解決の方向性につき検討するため、東京都水道局、横浜市水道局、大阪府水道部、大阪市水道局及び神戸市水道局の協力のもとに、これらの各水道事業体において「水安全計画」の試験的導入に関するケーススタディーを、昨年度までに引き続いて実施した。

「水安全計画」は、単に水質管理だけでなく、水道のあらゆる分野における実務のあり方と深く関わりがある。一般にわが国の水道事業体では、「水安全計画」に盛り込むべきであるとされている事項のうちその大半について、水道法に基づく厚生労働省による規制のもとで、系統的とは言えないまでも、すでに何らかの形で取り組みが行われている。また、水道の水源から給水栓に至るまでのシステムや、潜在的な危害因子とその重大さは、個々の水道事業体ごとに著しく異なっている。そのため、上記の各事業体におけるこのケーススタディーでは、各事業体の実情に合わせて自主的な検討を行うようにした。

1. 2 都市水道における「水安全計画」導入のためのガイダンス

上記の5水道事業体におけるケーススタディーを通して得られた経験と教訓を踏まえて、今後、都市水道において「水安全計画」を策定する際に考慮すべき事項につき、以下の各項目に分けて整理した。

- ①全般
- ②チーム編成及び事前準備
- ③水道システムの把握
- ④危害評価、管理措置、管理基準、監視方法の設定

⑤是正措置、対応方法の設定

⑥記録と保管方法の設定

⑦妥当性の確認と検証

2. 給水栓水中の鉛濃度測定手法に関する研究

2. 1 全国の主な水道事業体における鉛に関する定期水質検査の現状

厚生労働大臣認可の405水道事業体を対象としてアンケート調査を実施し、定期水質検査における給水栓水の鉛濃度の測定結果、並びに、試料採取方法などにつき調査した。

2. 2 流水と滞留水による鉛濃度の違いに関する検討

東京都水道局が給水末端に鉛管を1~6m布設して鉛溶出濃度につき調査している8地点を対象に、前年度より継続して2~4月に1回程度の頻度で、給水栓水中の鉛濃度を、毎回、流水の場合と公定法による15分滞留水の場合に分けて調査した。

2. 3 鉛管延長及び水温が鉛濃度に及ぼす影響に関する検討

大阪市水道局が平成14~18年度(但し、平成18年度は11月30日まで)に、鉛管使用者等からの依頼に基づき、給水栓水中の鉛濃度を調査した結果につき整理した。

3. カルキ臭の発生メカニズムとその発生抑制手法に関する研究

3. 1 全国の水道におけるカルキ臭の発生実態並びにその水道原水中のアンモニア態窒素濃度との関係に関する検討

全国の水道における原水中のアンモニア態窒素濃度の実態につき、水道統計に基づいて整理するとともに、アンモニア態窒素濃度が0.4mg/lを超える水道事業体のすべてと、これ以下の無作為に抽出した水道事業体を対象として、カルキ臭による苦情の発生状況につきアンケート調査を行った。

3. 2 カルキ臭の原因物質に関する検討

クロラミン類(モノクロラミン、ジクロラミン

及びトリクロラミン)のうちいずれか1つをできるだけ単独で含む水を調製し、これを供試水として被験者15人を対象に官能試験を行った。

3. 3 トリクロラミンの生成抑制手法に関する検討

東京都水道局の金町、東村山、三郷、朝霞及び三園浄水場における浄水中のトリクロラミンの濃度と浄水処理方式との関係などにつき、主として過去の実績データに基づいて整理した。

C. 研究結果及び考察

1. 「水安全計画」のわが国への導入に関する研究

1. 1 「水安全計画」の試験的導入に関するケーススタディー

各調査対象水道事業体におけるケーススタディーの実施経過及び結果は、以下のとおりである。

1. 1. 1 東京都水道局

東京都水道局では昨年度までに引き続き三郷浄水場の系統を対象として、これまで行っている水源管理、浄水管理、送配水・給水管理、水質管理を体系的に整理し、HACCPの考え方を加えて、水源から蛇口に至るまでの包括的な水質管理のための「水安全計画」を策定した。例えば三郷浄水場の簡易フローと想定される危害は、図-1に示すとおりである。東京都水道局では、この三郷浄水場系統を対象とした「水安全計画」を、平成19年度から実際の業務に反映させる予定である。また、その他の浄水場の系統についても平成19年度中に「水安全計画」を策定し、平成20年度から東京都水道局全体での「水安全計画」の運用を開始する予定である。東京都水道局では、「水安全計画」の策定により、水道水質の安全性の向上、技術力の維持・向上、利用者に対する信頼性の向上を目指している。

1. 1. 2 横浜市水道局

横浜市水道局では昨年度までに引き続き小雀浄水場の系統を対象として、図-2に示すような作業フローにより、水道水質管理におけるHACCP手法の適用に関する検討を行った。

HACCP手法の適用により、水質管理のより一層の効率化、水質管理体制の整備、及び、説明責任の向上に資することが期待されている。さらに、他の浄水場系統についても、小雀浄水場系統の結果を参考としてケーススタディーに着手した。横浜市水道局では、「水安全計画」の策定にあたって水質だけでなく水量・水圧も考慮に入れて、水源から蛇口までのあらゆるリスクを洗い出して評価し、その優先順位を明らかにして、今後の事業計画を推進する上で活用するとともに、PDCAサイクルによる継続的な改善により、より高度な品質管理に繋げて行くことが期待されている。

1. 1. 3 大阪府水道部

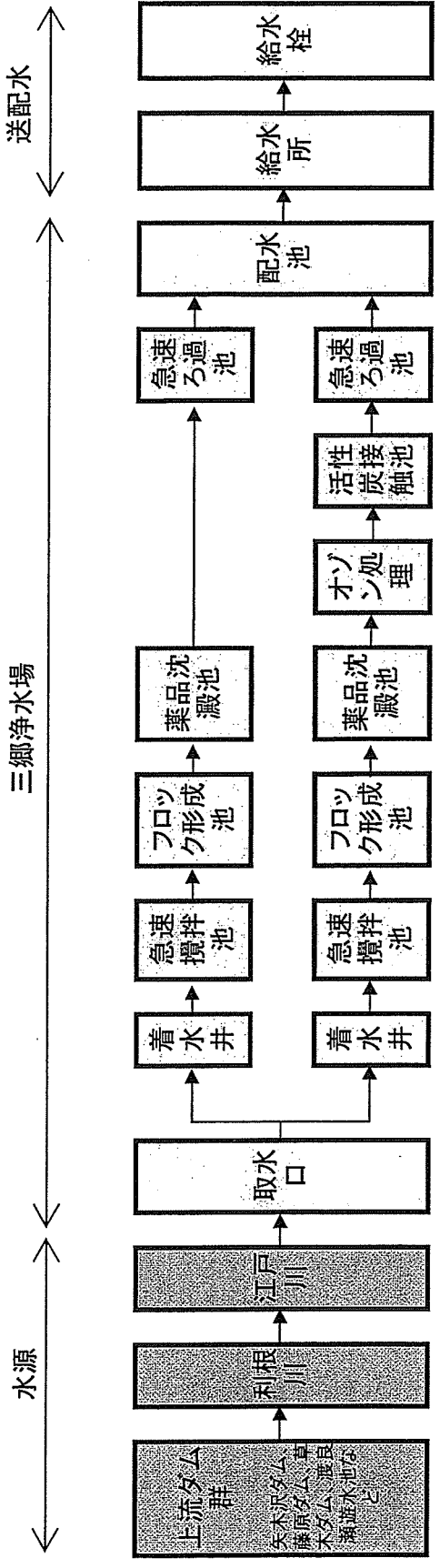
大阪府水道部は用水供給事業者であることから、受水事業体への水道水の受け渡し地点(分岐地点)までを対象範囲として「水安全計画」を作成することとし、平成19年度の計画完成を目標に、平成18年度は村野、庭窪及び三島浄水場を対象として危害因子の抽出を行った。大阪府水道部においては、従来、施設整備、適切な運転管理、及び、定期的な水質検査によって水道水の安全性が確保されているが、これに加えてリスク管理の考え方を新たに導入することにより、受水事業体へ安全な水の供給がより確実に保証されることになると見込まれている。また、支援プログラムとしてすでに作成され、実際に使用されている、危機管理、運転管理等に関する多数のマニュアルを系統化することができるので、異常時、事故時等の対応が迅速化されることが期待されている。

1. 1. 4 大阪市水道局

大阪市水道局では、「水安全計画」の策定に関する実質的な検討を昨年度までにすでに終えており、本年度はその既存の水質管理システムにおける位置づけの再確認を行った。

1. 1. 5 神戸市水道局

神戸市水道局では、昨年度までに引き続き、千苅浄水場の系統を対象に水安全マネジメントマニュアル及び水安全計画書を作成した。水安全マネジメントマニュアルは、PCDA(Plan-Check-Do-Act)サイクルで継続的改善が可



①取水：異物混入、毒物投棄、粉末活性炭注入異常（ポンプ故障、詰り）、管破損等
 ②着水井：pH異常、発泡等
 ③急速攪拌池：攪拌異常、濁度、色度異常等
 ④薬品沈澱池：濁度異常、残留塩素異常、アルミニウム流出等
 ⑤オゾン接触池：色度流出、臭気物質流出、有機物流出等
 ⑥活性炭接触池：破過・マンガン付着等による臭気物質流出、有機物流出、微粉炭流出による濁度異常等
 ⑦急速ろ過池：逆洗異常、沈澱濁度高等による濁度流出、塩素不足によるマンガンを流出、濁度異常によるクリプトスポリジウム流出等
 ⑧配水池：残留塩素異常、マンガン剥離、内面塗装剤剥離等

①送水・給水所：ポンプ故障による送水異常、流量変動によるマンガン剥離、管破損、監視機器故障等
 ②給水栓：貯水槽への毒物混入、クロスコネクション、鉛流出等

①流域が広く、生活系・畜産系・工業系負荷が大きく、危害影響物質も多い。
 ②上流ダム群は富栄養化による臭気物質発生がある。
 ③江戸川に特異的な危害として魚卵による異臭発生がある。
 ④下水処理場放流水、浄化槽排水の流入による有機物、アンモニア態窒素等の流入がある。
 ⑤その他、クリプトスポリジウム、車両事故による油流出、排水機場運転によるアンモニア態窒素流入、有機物流入等多くの危害がある。

図-1 三郷浄水場の簡易フローと危害（東京都水道局）

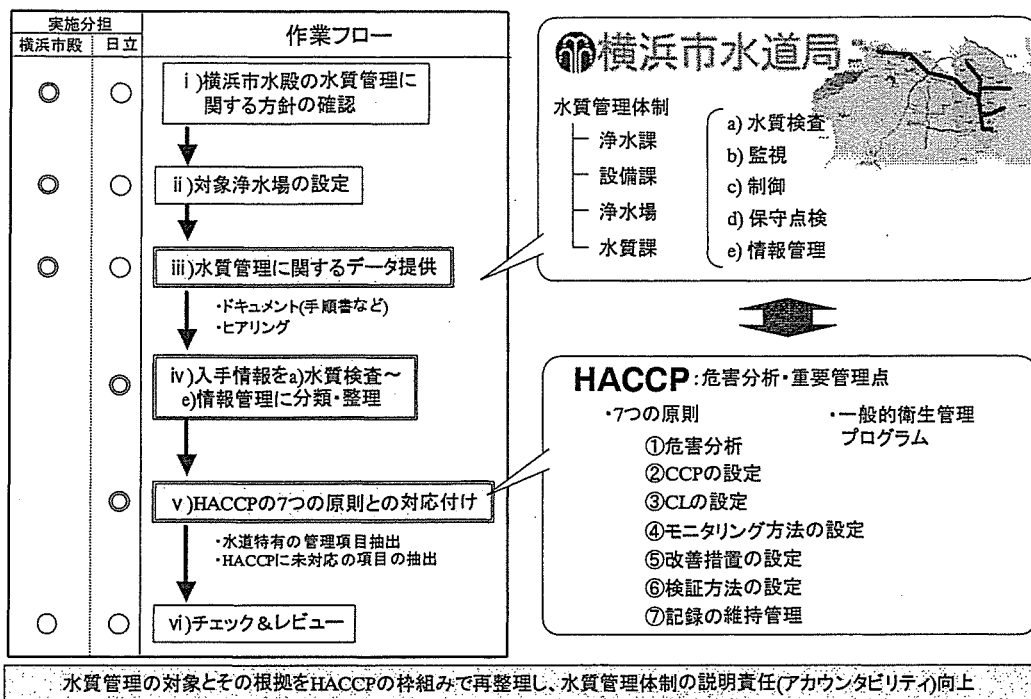


図-2 現行の水質管理体制への HACCP 手法適用の検討フロー (横浜市水道局)

能なシステムとし、ISO9001 を参考に作成した。水安全マネジメントシステムの概要は、図-3 に示すとおりである。また、水安全計画書は、日本水道協会による「平成 17 年度水安全計画策定ガイドライン作成調査報告書(ケーススタディ)²⁾」を参考に作成した。これらはすでに実務に反映されており、このことにより下記のような効果がすでに得られているか、又は、得られることが期待されている。

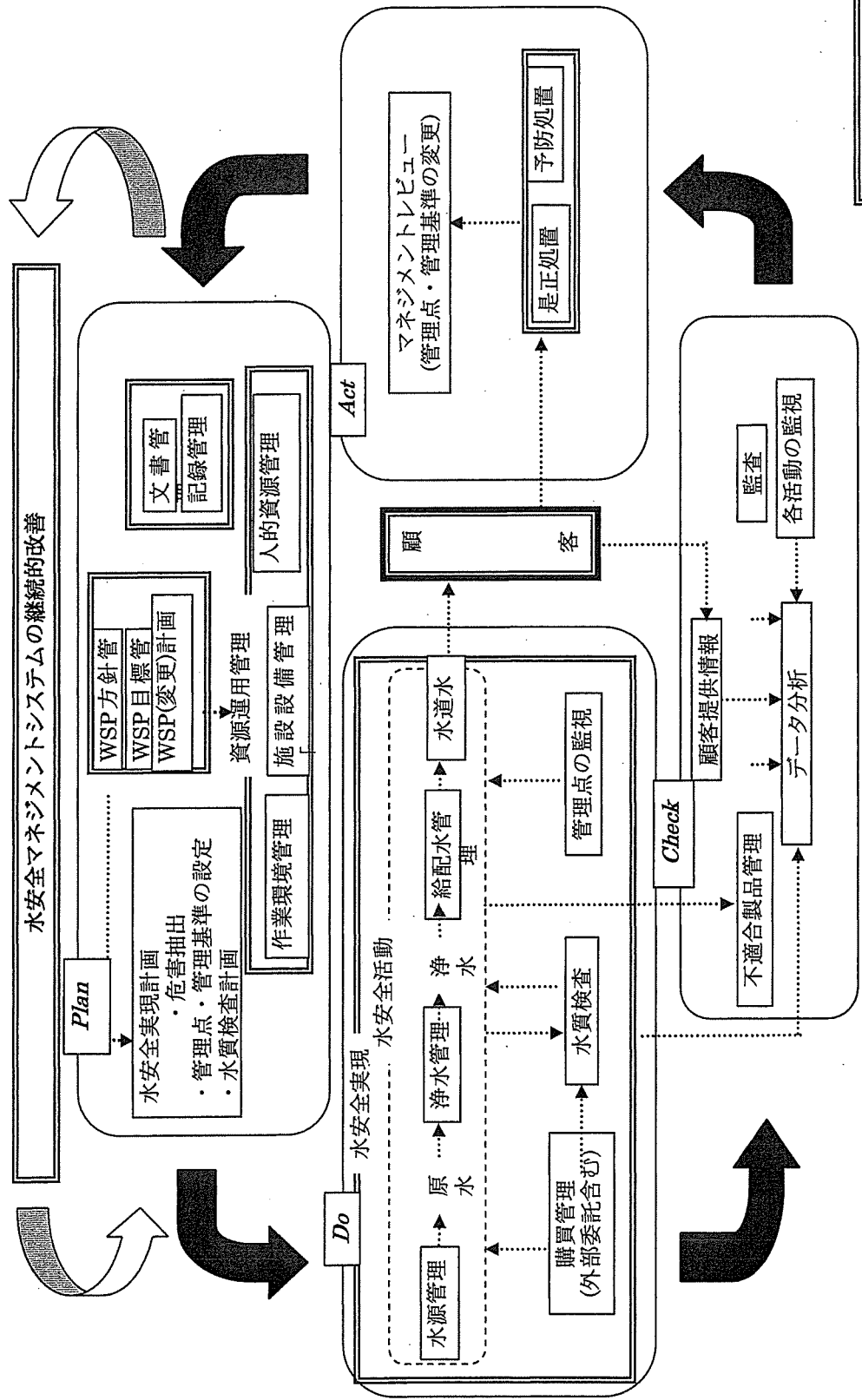
- ①水道水質管理に関する現行システムの妥当性が確認できた。
- ②文書・記録類の管理が明確化されることによって、水道利用者への説明責任のツールとして活用できるので、水道に対する信頼が高まる。
- ③「水安全計画」を策定・実施することにより、問題点や検討すべき点が明確になり、例えば、水源の水質保全、水道施設のテロ対策など、投資の優先順位が明らかになる。
- ④水源から給水栓までを通した水道システムの潜在的な危害が文書化され、その情報を関係者が共有することができる。また、職員研修資料として活用するなど、技術の継承に資することができる。

1. 2 都市水道における「水安全計画」導入のためのガイダンス

上記の5水道事業体におけるケーススタディーを通して得られた経験と教訓を踏まえて、都市水道において「水安全計画」を策定する際に考慮すべき事項を取りまとめると、以下のとおりである。これらは、今後、「水安全計画」策定のための指針などを作成する上で、参考となることが期待される。

1. 2. 1 全般

WHO 飲料水水質ガイドライン¹⁾ などにおけるガイドライン¹⁾ などにおける「水安全計画」についてのガイダンスは、開発途上国なども視野に入れてあらゆる形態の飲料水供給に適用できるよう作成されたものであり、これをそのまま日本の水道事業体に導入することは現実的ではない。そのため、わが国の水道事業体の実情に即した整理が必要である。また、既存の計画やマニュアル(例えば、地域水道ビジョン、水質検査計画、水道維持管理指針、ISO9001 品質管理システムなど)との間で齟齬が生じないように、これらとの相互関係につき十分に配慮する必要がある。



図一3 神戸市水道局における水安全マネジメントシステム概要図

「水安全計画」策定の対象範囲は、本来、水源から給水栓までの全工程とすべきである。その場合、水源施設や貯水槽以下など、水道事業体の管理下でない施設も対象範囲として含まれることになる。これらについては、それぞれの管理主体と水道事業体の責任及び役割分担に応じて、個々の管理主体との情報伝達方法などを含め、当該水道事業体として求められる事項につき「水安全計画」に盛り込むことが必要である。水道用水供給事業体における受水事業体との関係についても同様である。

1. 2. 2 チーム編成及び事前準備

「水安全計画」は水源から給水栓までの全工程を対象とすべきであることから、その策定のためのチーム編成にあたっては、浄水処理や水質管理の担当者だけでなく、計画、配水、給水などの担当者も含め、幅広い関係者が参画するようにすべきである。また、全体を統括する部署を明確にするとともに、当面の計画策定だけでなく、実際の運用、さらには見直しまでを見通した上で、これに取り組むための体制を整備しておくことが重要である。

1. 2. 3 水道システムの把握

水源から給水栓までの水道システムについて、危害分析を始め、重要管理点及び管理基準の設定など、「水安全計画」の策定にあたって必要な全ての入手可能な関連情報を収集・整理する。このとき、全体像をわかりやすく整理するためにフローシートをできるだけ活用すると良い。フローシートとしては、水道施設全体に関するもののほか、取水地点から浄水場までの流達時間、浄水場内の流達時間、配水池までの平均流達時間、配水池滞留時間を整理したものなどが考えられる。また、薬品注入点や、自動連続監視装置の種類と設置地点、水質検査計画に基づく採水地点などの情報を含めた詳細なフローシートも、必要に応じて作成すると良い。これらのフローシートは、現地確認を行いながら作成する必要がある。

水道システムに関する情報の収集、とりわけ水源情報の収集は、多くの場合大変な作業となるこ

とが予想される。水源情報の収集・整理は流域の水道事業体が協力して行い、得られた情報を関連するすべての水道事業体が共有することによって、作業の効率化と充実した内容の「水安全計画」の策定が期待される。化学物質排出把握管理促進法に基づく PRTR 制度の情報を活用することも重要である。

1. 2. 4 危害評価、管理措置、管理基準、監視方法の設定

危害の評価などにおいては、その対象範囲の見極めが一般に問題となる。「水安全計画」で対象とすべき危害としては、水質に関係するものはすべて含むこととするが、それ以外の危害、すなわち例えば水量だけに関係するものなどは原則として除外して良い。また、危害因子としては、水質基準項目などを参考にすると良いが、国による規制などの対象となっていないものであっても、当該水道の原水水質に関して特に問題となるようなものは、積極的に取り上げるようにする必要がある。危害分析の具体的な手順と、これに必要な情報・データの種類も整理しておくこと、そのあとの作業が容易である。例えば、危害を、自然条件によるもの、社会条件によるもの、及び、人為的な要因によるものなどに分類するのも、わかりやすく整理するための一つの方法である。危害ごとに管理措置などをまとめると情報量が多くなりすぎることもあるので、見やすくまとめるための工夫が必要である。監視方法は、危害レベルに応じて適切に設定することが重要である。

1. 2. 5 是正措置、対応方法の設定

管理基準を逸脱した場合の対応方法及び是正措置について、「水安全計画」の中で明確にしておく必要があるが、それ以前のこととして、管理基準から逸脱しないようにするための方法を前もって検討し、そのための措置を施しておくことが重要である。それでも万一逸脱が判明した場合には、逸脱の原因を究明して是正処置を施すとともに、再発防止策について検討する必要がある。あらかじめ想定される逸脱に関しては、現場と十分に調整した上で、プロセスの操作方法などを含

めて、その対応方法を標準作業手順書として準備しておくが良い。管理基準からの逸脱以外の異常事態が起こった場合の対応方法についてもあらかじめ検討し、その記録及び報告の方法についても検討しておくことが望ましい。

1. 2. 6 記録と保管方法の設定

運転管理の推移と監視結果などを記録し、その記録を適切に保管することによって、技術の伝承を図り、過去の教訓に学ぶことが可能となる。また、運転管理及び監視に関する記録は、常に安全な水が供給されていることについての水道利用者に対する説明の根拠となるものであり、逸脱が生じた場合の原因の究明、逸脱や異常・緊急事態への対応の適切さの評価などにおいても欠かせないものである。記録の保管にあたっては、文書の識別方法と相互関係、制定・廃棄の手続き、閲覧・配布・周知について定めておく必要がある。

なお、工程管理に用いるデータは、長期間保管できるようなシステムになっていない場合がある。どの程度のデータが必要なのかを検討した上で、維持管理指針などとの整合を考慮しつつ記録・保管する必要がある。

1. 2. 7 妥当性の確認と検証

「水安全計画」の妥当性について確認するとともに、「水安全計画」や水道システムが安全な水を供給するために適切であったかについて検証する。妥当性の確認の対象や方法を適切に設定する必要がある。

2. 給水栓水中の鉛濃度測定手法に関する研究

2. 1 全国の主な水道事業体における鉛に関する定期水質検査の現状

アンケート調査対象とした厚生労働大臣認可の405水道事業体のうち、332事業体から回答を得た。これらの事業体における鉛濃度の測定結果を、鉛管延長、pH及び水温により区分して整理した結果を表-1に示す。試料採取方法が流水から15分滞留水に変更された平成16年度以降において、基準値0.01mg/lを超過したケースは4件で、その最大値は0.015mg/lであった。基準値を超過

したケースについては、それぞれ、布設替え(1件)、浄水でのpHコントロール(1件)、飲用注意(2件)の対策が講じられていた。また、水温が高くなるほど鉛濃度が高くなる傾向が認められたが、鉛管延長やpHの影響は明確ではなかった。ちなみに、鉛管延長は0.3~82.0m(平均6.2m)であった。

なお、別途行われた鉛管布設状況調査では「鉛管使用無し」が17%であったにもかかわらず、本アンケート調査では、定期水質検査地点に鉛管使用箇所を含めていない事業体が233(70%)と多くあった。また、これとは別に、公定法に従って15分滞留水を採取している事業体は137(41%)にとどまっていた。これらのことから、鉛濃度の検査においては、国による規制が必ずしも十分に守られていないことが明らかであり、今後その徹底を図る必要があると考えられる。

2. 2 流水と滞留水による鉛濃度の違いに関する検討

本年度を含めて調査開始当初からのすべての調査結果は表-2に示すとおりであり、流水の場合には平均0.001~0.007mg/l、最大0.002~0.022mg/l、15分滞留水の場合には平均0.003~0.017mg/l、最大0.005~0.049mg/lで、いずれの調査地点においても滞留水が流水の2倍程度と、両者の間で鉛濃度に明確な違いが認められた。

なお、上記の調査では、15分滞留水の場合に、鉛管延長が長いほど、また、水温が高いほど鉛濃度が高いことも認められたが、時系列的な鉛濃度の変化について特定の傾向は認められなかった。

2. 3 鉛管延長及び水温が鉛濃度に及ぼす影響に関する検討

本年度分を加えた平成16年度以降の15分滞留水による調査においては、図-4に示すように、鉛濃度と鉛管延長及び水温との間に明確な関係は認められなかった。平成14~15年度の流水による調査においては、鉛管延長が長いほど、また、水温が高いほど鉛濃度が高くなる傾向が認められており、このような採水方法変更前後における調査結果の違いの原因についてはまだよくわか

表-1 全国の水道事業者の定期水質検査における鉛濃度測定結果
平成16年度以降(15分滞留)

No	管延長	pH	水温	件数	最高値 (mg/L)	平均値 (mg/L)	不検出 件数	不検出 (%)
1	5 m未満	7.0以上 7.5未満	10℃未満	49	0.004	0.0009	27	55
2			10℃以上20℃未満	154	0.009	0.0016	63	41
3			20℃以上	143	0.011	0.0019	62	43
4		7.5以上 8.0未満	10℃未満	63	0.005	0.0007	36	57
5			10℃以上20℃未満	219	0.009	0.0017	89	41
6			20℃以上	275	0.010	0.0021	107	39
7	5 m以上 10m未満	7.0以上 7.5未満	10℃未満	16	0.003	0.0007	8	50
8			10℃以上20℃未満	39	0.004	0.0006	25	64
9			20℃以上	33	0.009	0.0014	18	55
10		7.5以上 8.0未満	10℃未満	9	0.002	0.0007	5	56
11			10℃以上20℃未満	67	0.006	0.0010	33	49
12			20℃以上	102	0.007	0.0015	47	46
全 体				1169	0.011	0.0012	520	50

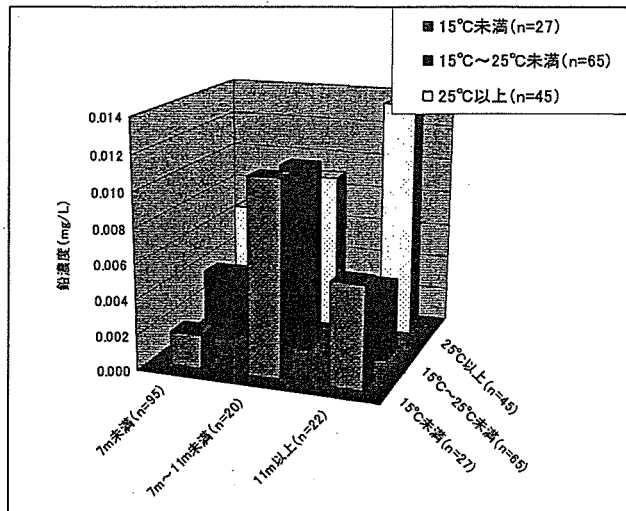


図-4 大阪市の市内給水栓における鉛濃度
(平成16~18年度=15分滞留水の場合、データはグループごとの平均値)

らないが、変更後の調査件数が非常に限られていることが関係しているのではないかと推察される。今後も測定した結果を随時加えてデータ数を増やすことが必要と考えられる。

3. カルキ臭の発生メカニズムとその発生抑制手法に関する研究

3. 1 全国の水道におけるカルキ臭の発生実態並びにその水道原水中のアンモニア態窒素濃度との関係に関する検討

平成16年度の水道統計から、原水アンモニア濃度の年間最大値が0.4mg/l以上であった水源は141ヶ所(地下水102ヶ所、表流水39ヶ所)で、その濃度別分布は図-5に示すとおりである。また、これらのうち最大濃度は8.0mg/lで、深井戸を水源とするものであった。

アンケート調査は、上記の水道事業者を含め184事業者を対象として実施し、そのうち146事業者から回答を得た(有効回答率79.3%)。こ

表-2 流水と滞留水による鉛濃度の違いに関する調査結果

調査地点No.1 延長: 6 m (口径13mm)	試験項目/月日	H16.5.11	H16.12.7	H17.1.5	H17.2.1	H17.5.10	H17.9.6	H17.12.6	H18.2.14	H18.5.9	H18.9.12	平均値	最大値	最小値	測定回数	
	鉛及びその化合物(mg/L)	0.012	0.005	0.003	0.004	0.006	0.010	0.004	0.004	0.003	0.006	0.006	0.012	0.003	0.002	11
	鉛及びその化合物(mg/L) 流水	0.003	0.003	0.002	0.002	0.004	0.004	0.005	0.002	0.003	0.003	0.004	0.003	0.006	0.003	11
	水温(°C)	17.4	12.6	7.4	7.8	18.1	25.7	9.7	9.7	17.0	17.0	25.2	15.9	26.8	6.8	11
	pH値	7.6	7.4	7.4	7.4	7.5	7.5	7.6	7.6	7.6	7.5	7.5	7.5	7.6	7.4	11
調査地点No.2 延長: 6 m (口径13mm)	試験項目/月日	H16.5.19	H16.9.18	H16.10.8	H16.12.8	H17.2.2	H17.5.18	H17.7.6	H17.10.5	H18.2.8	H18.5.17	H18.7.5	平均値	最大値	最小値	測定回数
	鉛及びその化合物(mg/L)	0.014	0.016	0.014	0.012	0.008	0.011	0.021	0.016	0.010	0.010	0.021	0.017	0.049	0.008	12
	鉛及びその化合物(mg/L) 流水	0.000	0.008	0.007	0.005	0.000	0.006	0.002	0.010	0.007	0.007	0.005	0.008	0.022	0.000	11
	水温(°C)	18.2	25.2	20.0	12.2	7.8	17.7	22.7	21.1	6.8	15.4	23.6	18.2	27.5	6.8	12
	pH値	7.5	7.5	7.5	7.5	7.4	7.6	7.6	7.5	7.5	7.7	7.6	7.6	7.8	7.4	12
調査地点No.3 延長: 3 m (口径13mm)	試験項目/月日	H16.5.8	H16.11.16	H17.1.11	H17.3.8	H17.6.14	H17.9.13	H17.11.11	H18.2.14	H18.6.13	H18.9.5	H18.11.15	平均値	最大値	最小値	測定回数
	鉛及びその化合物(mg/L)	0.010	0.009	0.004	0.007	0.007	0.007	0.004	0.003	0.000	0.006	0.003	0.006	0.010	0.000	11
	鉛及びその化合物(mg/L) 流水	0.006	0.004	0.002	0.003	0.004	0.004	0.004	0.002	0.000	0.000	0.003	0.003	0.006	0.000	11
	水温(°C)	22.3	23.6	15.4	8.3	22.7	22.9	13.8	6.2	18.0	25.8	25.8	16.8	25.8	5.9	11
	pH値	7.6	7.6	7.5	7.3	7.6	7.7	7.5	7.5	7.2	7.5	7.5	7.7	7.7	7.3	11
調査地点No.4 延長: 3 m (口径13mm)	試験項目/月日	H16.5.16	H16.12.7	H17.1.5	H17.3.1	H17.5.17	H17.9.6	H17.12.6	H18.3.7	H18.5.16	H18.9.12	H18.11.15	平均値	最大値	最小値	測定回数
	鉛及びその化合物(mg/L)	0.006	0.008	0.003	0.003	0.005	0.006	0.002	0.002	0.004	0.015	0.015	0.005	0.015	0.002	11
	鉛及びその化合物(mg/L) 流水	0.003	0.002	0.001	0.001	0.003	0.004	0.001	0.001	0.000	0.000	0.008	0.003	0.008	0.000	11
	水温(°C)	18.1	10.7	7.4	7.8	16.8	24.1	8.0	9.1	14.7	24.8	24.8	15.0	24.8	7.4	11
	pH値	7.4	7.6	7.4	7.4	7.5	7.5	7.5	7.6	7.5	7.5	7.5	7.5	7.6	7.3	11
調査地点No.5 延長: 1 m (口径13mm)	試験項目/月日	H16.5.9	H16.9.14	H16.12.15	H17.2.9	H17.6.15	H17.9.14	H17.12.14	H18.2.15	H18.6.14	H18.9.6	H18.11.15	平均値	最大値	最小値	測定回数
	鉛及びその化合物(mg/L)	0.005	0.004	0.003	0.002	0.003	0.008	0.001	0.001	0.003	0.003	0.003	0.003	0.008	0.001	11
	鉛及びその化合物(mg/L) 流水	0.004	0.002	0.001	0.000	0.002	0.002	0.000	0.000	0.000	0.002	0.002	0.001	0.004	0.000	11
	水温(°C)	21.2	24.0	19.9	7.5	22.3	23.6	10.3	7.6	19.0	25.1	25.1	17.5	25.1	7.5	11
	pH値	7.5	7.7	7.4	7.6	7.6	7.6	7.6	7.5	7.6	7.6	7.6	7.6	7.7	7.3	11
調査地点No.6 延長: 1 m (口径13mm)	試験項目/月日	H16.4.13	H16.9.7	H16.10.5	H16.12.14	H17.4.12	H17.7.12	H17.10.18	H18.2.14	H18.4.11	H18.7.11	H18.11.15	平均値	最大値	最小値	測定回数
	鉛及びその化合物(mg/L)	0.003	0.003	0.003	0.001	0.002	0.002	0.006	0.002	0.002	0.004	0.004	0.003	0.006	0.001	12
	鉛及びその化合物(mg/L) 流水	0.001	0.002	0.002	0.001	0.000	0.001	0.001	0.001	0.000	0.000	0.000	0.001	0.002	0.000	10
	水温(°C)	14.2	25.6	17.6	10.7	6.9	13.7	21.7	20.8	6.6	11.5	23.2	16.3	25.6	6.6	12
	pH値	7.5	7.6	7.5	7.5	7.4	7.4	7.6	7.6	7.5	7.5	7.2	7.5	7.6	7.2	12
調査地点No.7 延長: 1 m (口径13mm)	試験項目/月日	H16.6.2	H16.9.7	H16.12.15	H17.2.2	H17.3.5	H17.6.8	H17.8.10	H17.12.7	H18.2.8	H18.6.7	H18.8.11	平均値	最大値	最小値	測定回数
	鉛及びその化合物(mg/L)	0.004	0.005	0.002	0.002	0.002	0.004	0.002	0.002	0.003	0.003	0.003	0.003	0.005	0.002	12
	鉛及びその化合物(mg/L) 流水	0.002	0.004	0.002	0.001	0.000	0.002	0.002	0.000	0.000	0.002	0.002	0.002	0.003	0.000	12
	水温(°C)	21.4	28.2	24.5	13.1	8.3	21.3	26.0	10.8	6.0	18.9	27.9	17.9	28.2	6.0	12
	pH値	7.4	7.3	7.3	7.4	7.5	7.5	7.3	7.4	7.4	7.4	7.6	7.4	7.6	7.3	12
調査地点No.8 延長: 1 m (口径13mm)	試験項目/月日	H16.5.19	H16.9.18	H16.11.17	H16.12.15	H17.2.9	H17.6.15	H17.8.3	H17.11.18	H18.2.15	H18.6.14	H18.8.2	平均値	最大値	最小値	測定回数
	鉛及びその化合物(mg/L)	0.003	0.004	0.004	0.004	0.002	0.003	0.003	0.002	0.002	0.000	0.000	0.004	0.012	0.000	12
	鉛及びその化合物(mg/L) 流水	0.002	0.003	0.004	0.001	0.000	0.002	0.002	0.002	0.000	0.000	0.000	0.002	0.005	0.000	12
	水温(°C)	22.6	28.4	16.6	12.0	7.5	22.8	27.7	15.6	7.0	18.5	24.2	19.1	28.4	7.0	12
	pH値	7.4	7.5	7.4	7.4	7.4	7.4	7.4	7.4	7.4	7.4	7.3	7.6	7.4	7.6	12

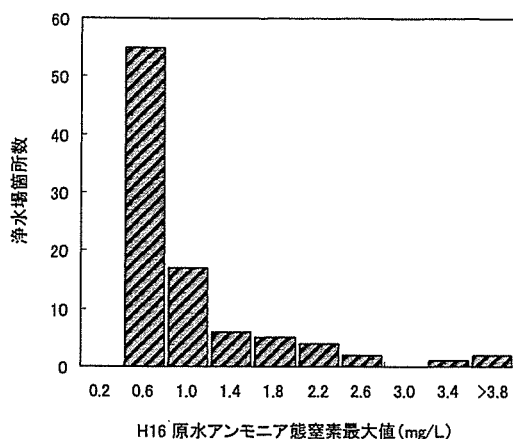


図-5 水道原水中のアンモニア態窒素濃度最大値の分布(平成16年度データ、年間最大値、アンモニア態窒素濃度が0.4mg/l以上の場合のみ)

のアンケートでは、平成17年度の水質をもとに、原水アンモニア態窒素濃度、水温、TOC、塩素添加率及びカルキ臭による苦情の有無についてたずねた。

カルキ臭による苦情の有無については、回答があった137事業体のうち95事業(69.3%)で苦情ありとの回答が寄せられた。地域別に見ると、表-3に示すように、水温の高い九州・沖縄地方や大都市圏でカルキ臭による苦情ありの場合が多く、水温の低い東北や北海道ではカルキ臭による苦情が比較的少ないことが明らかとなった。

カルキ臭の発生を季節別に見ると、全国的には7月～9月の夏場が多く、これは水温の上昇によるのではないかと考えられる。高度浄水処理を導入している東京や千葉では、他の地域で見られるような夏季のカルキ臭は抑えられているが、冬季を含めてカルキ臭が発生していた。水温の低下する冬季はアンモニア濃度が上昇するとともに、処理を行った高度浄水処理水でも、ジクロロミン(実際は有機クロロミンと考えられる)が検出されることがあるが、その際に不快な臭気を感じる人はほとんどいない。

以上のことから、カルキ臭の最大の原因はトリクロロミンであると推定された。

また、参考までに、東京都において市販のミネ

生物活性炭の硝化機能が低下することが、その原因ではないかと考えられる。北海道では融雪期の3～5月に臭気が発生する傾向が見られた。これは、雪解けとともにアンモニアを含んだ雪解け水が大量に水道原水に混入するためであると考えられている。新潟県においても3～4月にカルキ臭が発生しており、北海道と同様な原因が推定される。

また、原水のアンモニア態窒素濃度とカルキ臭の発生との関係につき検討した結果、両者の間には明確な関係が認められず、アンモニア態窒素濃度が0.01mg/lと極めて低濃度の場合でも、カルキ臭が発生していた。

3.2 カルキ臭の原因物質に関する検討

カルキ臭の官能試験のために調製した供試水についてクロラミン類の濃度を測定した結果は、表-4に示すとおりである。これに対して、官能試験の結果は表-5に示すとおりで、モノクロロミン、ジクロロミンは比較的高濃度でにおいを感じる人が多かったが、トリクロロミンは低濃度で被験者全員がにおいを感じていた。この結果から、遊離塩素、モノクロロミン、ジクロロミン、トリクロロミンの中では、トリクロロミンのにおいが最も強いことがわかった。

一方、クロラミン類には有機クロロミンもある。有機クロロミンはジクロロミンとして測定される。水道水からはジクロロミンが検出されることがあるが、遊離塩素が残るまで塩素注入した水道水で一定時間が経過すると、水道水中にはアンモニアに由来するモノクロロミン、ジクロロミンは存在しなくなる。したがって、遊離塩素を含む水道水で検出されるジクロロミンは、有機クロロミンであると考えられる。オゾン処理と生物活性炭ラルウォーターにトリクロロミンを加えた供試水2種類(トリクロロミン濃度は0.01及び0.03mg/l)を調製し、イベント来場者においを感じてもらったところ、トリクロロミン濃度0.01mg/lで76%の人が、0.03mg/Lで90%の人がにおいを感じるとの調査結果が得られている。

表-3 カルキ臭に関するアンケート集計結果

県No.	県	はい	いいえ	未回答	合計	地域名	はい	いいえ	回答合計	未回答	合計
1	北海道	5	8	1	14	北海道	5	8	13	1	14
2	青森県	2			2	東北	7	6	13	3	16
3	岩手県	1			1	東北					
4	宮城県		3	2	5	東北					
5	秋田県		1		1	東北					
6	山形県	1	1		2	東北					
7	福島県	3	1	1	5	東北					
8	茨城県	2	3	11	16	関東	27	8	35	31	66
9	栃木県	1			1	関東					
10	群馬県	2	1		3	関東					
11	埼玉県	10	1	9	20	関東					
12	千葉県	9	3	10	22	関東					
13	東京都	1			1	関東					
14	神奈川県	2		1	3	関東					
15	新潟県	5	2	1	8	中部	12	6	18	3	21
17	石川県	1		2	3	中部					
18	福井県	1			1	中部					
19	山梨県		1		1	中部					
20	長野県	1	3		4	中部					
23	愛知県	4			4	中部					
24	三重県	1			1	近畿	28	11	39	4	43
26	京都府	3	4		7	近畿					
27	大阪府	11	3	1	15	近畿					
28	兵庫県	8	1		9	近畿					
29	奈良県	5	2	3	10	近畿					
30	和歌山県	1			1	近畿					
33	岡山県	1	1		2	中国	4	2	6	0	6
34	広島県	2			2	中国					
35	山口県	1	1		2	中国					
36	徳島県	1			1	四国	2	1	3	0	3
38	愛媛県	1			1	四国					
39	高知県		1		1	四国					
40	福岡県	6		3	9	九州	10	0	10	5	15
41	佐賀県	2			2	九州					
45	宮崎県	1			1	九州					
46	鹿児島県	1		1	2	九州					
47	沖縄県			1	1	九州					
合計		95	42	47	184		95	42	137	47	184

(はい):カルキ臭が発生している、又は、カルキ臭による苦情を受けたことがある。

(いいえ):カルキ臭は発生していない、及び、カルキ臭による苦情は受けていない。

3. 3 トリクロロアミンの生成抑制手法に関する検討

トリクロロアミンは原水中のアンモニア態窒素と塩素とが反応して生成することから、東京都水道局の5浄水場の通常処理（凝集沈澱+急速砂ろ過）系において、原水アンモニア態窒素濃度と浄水トリクロロアミン濃度との関係につき検討したが、両者の間に明確な関係は認められなかった。

一方、前塩素添加率/原水アンモニア態窒素濃度比と浄水トリクロロアミン濃度との関係から、前塩素添加率/原水アンモニア態窒素濃度比を高くして十分な前塩素処理を行うことにより、トリクロロアミンの生成が抑制されることが示された。しかし、別に行った実験から、アンモニア態窒素を含む水に、ブレイクポイントに相当する量より

も多い量の塩素を一度に添加すると、図-6に示すようにトリクロロアミンが生成することが明らかである。したがって、トリクロロアミンの生成を抑制するためには、まずブレイクポイントまで前塩素を注入してアンモニア態窒素を除去し、その後改めて塩素を注入する二段塩素処理を行うことが有効であると考えられる。

D. 結論

WHO が推奨する「水安全計画」は、今後のわが国の水道水質管理において大いに参考とすべきである。ケーススタディーを実施した5水道事業体のうち特に東京都と神戸市においては、導入試行の範囲を超えて、すでに独自の「水安全計画」を策定して実務に取り入れつつある。また、大阪

表-4 クロラミン類の官能試験に用いた供試水
(濃度の単位はmg/l)

供試水	pH	NH ₃ -N	Cl注入率	Cl/NH ₃	遊離塩素	モノクロミン	ジクロミン	トリクロミン
A	無調整	0	0.50		0.53	0.00	0.00	0.00
B	7.4	0.5	1.00	2.0	0.00	0.94	0.08	0.00
C	6.6	0.5	4.00	8.0	0.00	0.38	0.86	0.00
D	6.6	0.5	5.00	10.0	0.42	0.01	0.00	0.33
E	6.6	0.5	5.00	10.0	0.00	0.01	0.29	0.00

※供試水Eは、Dをアスコルビン酸で脱塩したもの。

表-5 官能試験結果

供試水	×	△	○	◎	異臭有/全体
A	7	5	3	0	0.53
B	9	3	3	0	0.40
C	6	2	7	0	0.60
D	0	0	4	1	1.00
E	13	1	1	0	0.13

注) ×:におわない △:少しにおう ○:におう ◎:強烈ににおう

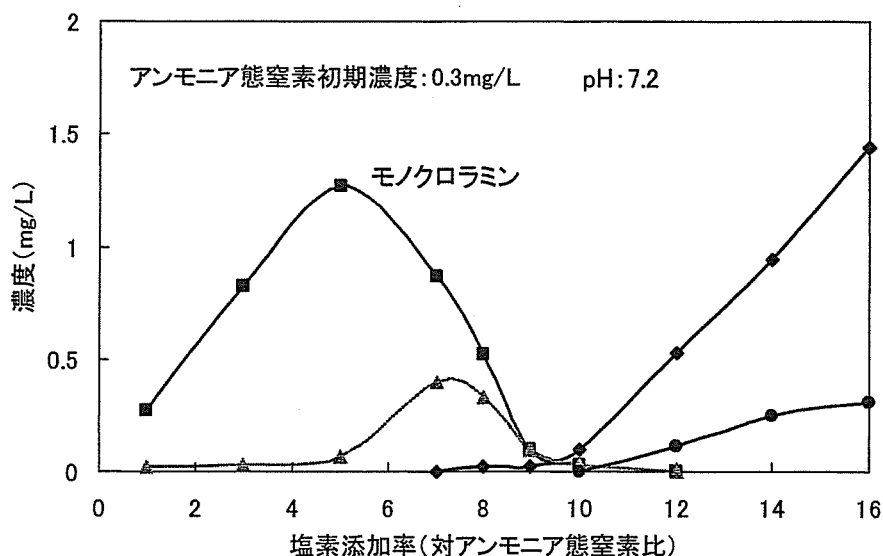


図-6 塩素添加率と形態別残留塩素濃度との関係

市においても、すでにその「平成18年度大阪市水道・水質管理計画」において、「水安全計画」の考え方を実質的に取り入れている。本研究では、上記のほか横浜市や大阪府を含めたケーススタディーの成果を踏まえて、都市水道における「水安全計画」導入のためのガイダンスを取りまとめた。このガイダンスは、今後わが国において「水安全計画」策定のための指針につき検討する際に、大いに役立つものと期待される。

給水栓水の鉛については、東京都が設置している調査用鉛管を用いた実験により、他の条件が同じであれば、15分滞留水は流水の2倍程度の高い濃度となることが示された。このほか、15分滞留水の場合には、鉛管延長が長いほど、また、水温が高いほど鉛濃度が高くなる傾向があることも認められた。しかし、定期水質検査などにおいてはこれらのことは必ずしも明確でなく、また、水

質検査試料の採取方法が流水から15分滞留水に変更された平成16年度以降に、鉛濃度測定値の基準超過が特に際だっているわけでもなかった。アンケート調査の結果によれば、水道事業者では、定期水質検査地点を選ぶ際に鉛管を使用している箇所を避けたり、15分滞留水でなく流水を採取したりしている傾向が伺われた。このことが上記のようなことと関係していると推察される。今後は、このようなことがないよう指導の徹底を図るとともに、鉛給水管の布設替えをより積極的に推進することが必要である。また、試料採取方法として、15分滞留水を採取する方法に関して特に不都合な点はなく、十分に適切であると考えられる。

水道水のカルキ臭の主な原因物質は、塩素とアンモニアの反応によって生成されるトリクロロミンであることが明らかとなった。トリクロロミンは、モノクロロミン及びジクロロミンとともにこの反応の中間生成物であり、アンモニアなどが原水中に存在することのほか、温度や塩素の添加率と添加方法などが、その主な生成要因ではないかと推定される。トリクロロミンの生成を抑制するためには、経験的な知見として、まずブレーク

ポイントまで前塩素を注入してアンモニアを除去し、その後で改めて塩素を注入する二段塩素処理が有効であると考えられる。

E. 参考文献

- 1) World Health Organization(2004) Guidelines for Drinking-water Quality(3rd Edition) Vol.1.
- 2) 日本水道協会(2006) 平成17年度水安全計画策定ガイドライン作成調査報告書(ケーススタディ)、平成18年3月。

F. 健康危険情報

該当なし

G. 研究発表

- 1) 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.

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
—リスク評価分科会—

分担研究者 江馬 眞 国立医薬品食品衛生研究所・総合評価研究室 室長
分担研究者 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
分担研究者 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

研究の要旨

平成 15 年の水質基準改定以後、食品安全委員会で実施された評価の状況や WHO での逐次改訂作業（ローリングリビジョン）を考慮しつつ、最新の毒性情報や評価手法に関する情報の収集及び整理を行い、健康影響評価値の設定や基準改定のための検討を行った。具体的には、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として、WHO の飲料水水質ガイドラインとして 2005 年に評価文章が公表された 6 物質の健康影響評価手法について調査を行うとともに、食品安全委員会において清涼飲料水に係る化学物質の健康影響評価が行われている 9 物質について最新の評価結果と想定される基準値と平成 15 年度改定基準値の比較検討を行った。また、近年その環境汚染濃度の上昇から健康影響等が懸念される有機スズ化合物、ポリ臭素化ジフェニルエーテル、ヘキサプロモシクロドデカンおよびテトラプロモビスフェノール A についての毒性情報を収集・整理し、水質基準策定への適用性などを検討した。さらに、安全性評価手法に関する研究として、日本（2003 年改訂版）と WHO（第 3 版）で異なる基準値が設定され、その主な要因が健康リスクアセスメント手法の違いにあるジ(2-エチルヘキシル)フタル酸エステル、トルエンおよび塩化ビニルについて基準値設定手法の違いを検証し、また、近年、注目されている乳幼児や子供への健康影響を考慮に入れた新たな安全性評価手法を検討するために、18 種の化学物質を対象として実施した新生児ラット試験（生後 4 日から 21 日まで投与）と現行の毒性試験（若齢ラットに 28 日間投与）の結果を比較検討した。

A. 研究目的

我が国では、平成 15 年に水道水質基準の改訂が行われたが、その後も、食品安全委員会での清涼飲料水規格基準の改正など、水質基準項目に相当する化学物質の健康影響評価が行われている。WHO でも、飲料水水質ガイドライン第 3 版の刊行（2003 年）以後、いくつかの物質について逐次改訂作業（ローリングリビジョン）を行っている。本研究では、これらの評価情報を基本として、さらなる最新知見の収集及び整理を行い、水道水質基準策定の観点から必

要なリスク評価手法の検証を試みる。また、社会的に問題となっている内分泌攪乱物質や環境汚染が問題となっている物質について、毒性情報などを収集し、水質基準策定への適用性などを検討する。さらに、近年、化学物質のリスク評価として注目されている乳幼児や子供への健康影響を考慮に入れた新たな水道水質のリスク評価手法の適用性に関する研究を行う。

B. 研究方法

(1) 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: WHOの飲料水水質ガイドラインとして2005年に評価文章が公表された6物質(1,1-ジクロロエチレン、臭素酸、ホルムアルデヒド、水銀、クロロホルム、トリクロロエチレン)の健康影響評価手法について調査を行った。さらに、食品安全委員会において清涼飲料水に係る化学物質の健康影響評価が行われている9物質(1,4-ジオキサン、1,1-ジクロロエチレン、四塩化炭素、シス/トランス-1,2-ジクロロエチレン、塩素酸、ジクロロアセトニトリル、抱水クロラル、塩素(残留塩素))について最新の評価結果と想定される基準値と平成15年度改訂基準値の比較検討を行った。

(2) 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: 有機スズ化合物、ポリ臭素化ジフェニルエーテル(PBDE)、ヘキサブROMシクロドデカン(HBCD)およびテトラブROMビスフェノールA(TBBPA)についての毒性情報を収集・整理し、水質基準策定への適用性などを検討した。

(3) 安全性評価手法に関する研究: 日本(2003年改訂版)とWHO(第3版)で異なる基準値が設定され、その主な要因が健康リスクアセスメント手法の違いにあるジ(2-エチルヘキシル)フタル酸エステル(DEHP)、トルエンおよび塩化ビニルについて基準値設定手法の違いを検証した。さらに、近年、注目されている乳幼児や子供への健康影響を考慮に入れた新たな安全性評価手法を検討するために、18種の化学物質(4-ニトロフェノール、2,4-ジニトロフェノール、3-アミノフェノール、2-クロロフェノール、4-クロロフェノール、2-tert-ブチルフェノール、2,4-ジ-tert-ブチルフェノール、3-メチルフェノール、3-エチルフェノール、4-エチルフェノール、p-(a,a-ジメチルベンジル)フェノール、1,3,5-トリヒドロキシベンゼン、2,4,6-トリニトロフ

エノール、(ヒドロキシフェニル)メチルフェノール、トリチルクロライド、1,3-ジブROMプロパン、1,1,2,2-テトラブROMエタン、テトラブROMビスフェノールA)を対象として実施した新生児試験(生後4日から21日まで投与)と現行の毒性試験(若齢試験:5~6週齢より28日間投与)の結果を比較評価しながら、今後の乳幼児や子供への健康影響の観点にたったりリスク評価の適用性について検討した。

(倫理面への配慮)

本研究は、公表されたデータにもとづいた調査及び評価作業による研究成果であり、倫理面での問題は無い。調査に用いた新生児試験や現行の28日間毒性試験は、当該施設の動物実験に関する指針に基づいて行われたものである。

C. 研究結果と考察

(1) 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

●2005年に公表されたWHO水質ガイドライン評価文章の検討
対象とした6物質それぞれの評価手法の特徴を以下に示す。

1,1-ジクロロエチレン: LOAELの代わりに

BMDL₁₀を用いて評価した

臭素酸: 発がん性に関して、TDIと数理モデルの両アプローチを行い、数理モデルとしてはBMDL₁₀を出発点とした直線外挿法を用いた

ホルムアルデヒド: 反応性が高く、局所影響が主であるため、影響は摂取量より濃度に依存するとして評価した

水銀: JECFA等で用いられたメチル水銀に基づいた評価ではなく、飲料水中の存在形態を考慮したHg²⁺による実験動物のデータを用いたTDIアプローチを用いた

クロロホルム: 動物実験の結果をヒトへ外挿する際にPBPK手法を用いて標的臓器等における化学物質濃度の補正を行い(補正後は、UF:100ではなく、種差のキネティクスに依存するUFを除いて、10(個体差)×2.5(種差の感受性のみ)を用いる)、さらに、BMDL₀₅をTDI算定の出発点として評価を行った

トリクロロエチレン: 非発がん影響 (BMDL₁₀を基にTDI算定)と(遺伝毒性) 発がん影響 (数理モデルを用いて生涯発がんの信頼上限リスク10⁻⁵の濃度を算出)の両方で評価を行って適正な方を選択した

●平成18年度に食品安全委員会において評価された9物質の検討

対象とした9物質について、平成15年改定時と比較して評価が大きく変わったのは、1,1-ジクロロエチレン、ジクロロアセトニトリルと抱水クロラールであった。それ以外の6物質については、平成15年改訂時の評価との違いはほとんど認められなかったが、シス/トランス-1,2-ジクロロエチレンについては、TDI及び評価値を個々に扱うか、シス体とトランス体の和に適用するかについて相違が認められた。

基準値や目標値を変える必要性については、抱水クロラールに関しては、評価内容は異なるものの、最終的なTDIに相違が認められないため、その必要性はひくいと考えられる。しかし、1,1-ジクロロエチレンのTDIは、平成15年改定時の7倍高く提案されているので、このまま取り入れれば基準値としても7倍高くなることになる。現在の検出状況からは、場合によっては基準項目に残すかどうかの検討も必要になると考えられた。一方、ジクロロアセトニトリルについては、逆に約3倍評価値が低くなっていた。現在の検出状況を考慮すると、目標設定項目から基準項目への変更を検討する必要があると考えられた。シス/トランス-1,2-ジクロロエチレンについては、その元々の毒性情報が少ないこともあり、基準値等を変更するほどの根拠は薄く、また、トランス体がほとんど検出されていない状況から、実質的にも現状のままで管理上問題ないと考えられた。

(2) 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

●有機スズ化合物

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おり、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暴露で影響(着床阻害、胚/胎仔死亡、催奇形性など)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。さらに、胎児期および離乳前の投与では、より低用量で毒性発現を引き起こしていることも示された。メチルおよびエチルなどの低級アルキル置換体については、それほど多くの報告はなかったものの、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唆された。その他の一般毒性、特に長期曝露に関する毒性情報はほとんどないことが明らかとなった。

●ポリ臭素化ジフェニル (PBDE)

難燃剤として主に3種の製品 (penta-BDE, octa-BDE, deca-BDE)が市場に出ている。理論的にはPCBなどのように209の同族体が存在するが、各々の商品には互いに類似した限られた種類の同族体しか含んでいない。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(胚死亡、骨化遅延、催奇形性など)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、暴露情報と共に、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。

●ヘキサプロモシクロドデカン (HBCD)及びテトラプロモビスフェノールA (TBBPA)

比較的多くの毒性情報が入手することができた。HBCDについては10000 mg/kg、TBBPAについては2000 mg/kgの単回強制経口投与でも死亡は認められていないことから、両物質とも急性毒性は低いと考えられる。反復投与毒性に関しては、HBCDについては肝臓及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1000 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かった。HBCD及びTBBPA共に、多くの遺伝毒性試験において陰性結果が報告されていた。HBCDについてはB6C3F1マウスを用いた試験において、肝細胞癌、胆癌、肺腺腫、白血病などの腫瘍性病変の発現頻度に用量相関性が認められなかったことが報告されたが、B6C3F1マウスが本来肝臓の腫瘍性病変に対して高い感受性を示すことから、HBCDの発がん性を評価する系としては疑問があるとする意見もあり(Darnerud, 2003)、更なる検討が必要であろう。生殖毒性に関しては、TBBPAの二世帯生殖試験において影響が認められなかったことが報告されているが、一方、HDBBの生殖毒性については報告がなかった。最近、EUのFIRE projectにより両物質の一世帯生殖毒性試験が実施されており、早期の試験結果の公表が望まれる。妊娠期投与による発生毒性試験

では、両物質共に胎児毒性や催奇形性は認められなかった。一方、最近、自発運動試験やMorris水迷路試験などで神経発達への影響を示唆する変化が報告されており、今後はこれらの毒性的意義を含めた更なる検討が必要である。

(3) 安全性評価手法に関する研究

●日本とWHOの水道水質基準値設定手法の比較

TDIやVSD算出のための一般原理は同じであったが、適用されたエンドポイントが異なり、このことが基準値の差異を導いていることが明らかになった。つまり、日本では、DEHPについては精巢毒性が、また、トルエンについては神経毒性が、TDI算出のためのエンドポイントとして用いられていたが、一方、WHOでは、両物質ともに、肝毒性を基にTDIが算出されていた。塩化ビニルの場合は、日本とWHOで同じ試験結果が使用されていたが、発がんリスク評価についての解釈が異なり、適用された腫瘍性エンドポイントが異なっていた。ヒトの健康への影響を適切に評価するためには、実験動物における悪影響をヒトへ外挿する際に毒性の性質やその機構などを十分に考慮する必要があり、最新の日本の決定は最近の科学的考慮に基づくので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。例えば、DEHPの場合、適用したエンドポイントは異なるものの、日本とWHOで設定されたTDIまたはNOAELは同じ値であった。しかし、WHOの寄与率が日本の寄与率の10分の1であったため、基準値は一桁程度異なっている。寄与率は、物理化学的性質と同様に環境状況にも依存し、水道設備で供給される飲料水のリスクマネジメントであれば、地域的な暴露評価がそれぞれの化学物質の寄与率の推定に必要である。しかしながら、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、その化学物質の規制値は飲料水ガイドラインに基づいている。従って、化学物質リスク評価の国際的協調も将来的により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

新生児試験及び若齢試験の結果を比較するための毒性指標として、推定無毒性量(pNOAEL)並びに推定確実中毒量(pUETL)を主試験及び用量設定試験の両試験結果から求めた。得られたpNOAEL及びpUETLの比(若齢/新生児ラット)から、新生児ラットは、対象

とした18物質のうち2/3に対しては若齢ラットよりも明らかに高い感受性(最大8倍)を示し、残りの物質に対しては若齢ラットと同等の感受性、もしくは若齢ラットよりも低い感受性を示すことが明らかとなった。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(テトラプロモビスフェノールA)あった。pNOAELを求める際に用いた毒性エンドポイントにBMD手法を適応した結果、pNOAELと良い相関を示した(相関関数:0.904)。BMD手法が本研究の目的に非常に有用であったと言えるだろう。

pNOAEL及びpUETL比の解析から、両値を設定することが出来た16物質を、若齢ラットと比較して新生児ラットのpNOAELが低い、もしくは同等であったフェノール類11物質(Group I)、そして、新生児ラットのpNOAELの方が高かったその他の5物質(Group II)、の二つのグループに分けることが出来た。Group Iでは、新生児ラットにおける用量反応曲線は若齢ラットのそれを左側へ、すなわち低用量側へ平行移動した形になり、Group IIでは、新生児ラットにおける用量反応曲線の傾きが、若齢ラットと比較して急になると考えられる。

このような結果が得られた主な要因について、既存の文献情報を基に考察を行った。Group Iの化学物質については、主として中枢神経系に直接的に作用すると推測されるが、新生児期にはその解毒代謝酵素活性が低いために感受性が増大したものと考えられる。一方、Group IIの化学物質については、代謝を受けたのちに毒性を発現すると考えられるため、代謝酵素活性が低いことが活性代謝物の生成率の低下を招き、このことが毒性の発現し始める比較的低用量での新生児ラットの感受性低下の要因の一つと考えられた。また、新生児ラットの酸化ストレスに対する防御機能が未成熟であることが、Group IIの用量反応曲線の傾きが若齢ラットと比較して大きい要因の一つとして考えられた。

本研究の結果は、新生児期の感受性を解析することの重要性を示している。新生児試験において、通常実施されている毒性試験よりもより低い用量で毒性影響が認められた場合には、その結果をもとに耐容1日摂取量や許容1日摂取量を設定するべきである。この時期を対象とした試験が実施されていない場合には、新生児の感受性を考慮するための不確実係数を適用