

200738011A

厚生労働科学研究費補助金

地域健康危機管理研究事業

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19年度 総括・分担研究報告書

平成20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	3
国包 章一	
II. 分担研究報告書	
1. 給配水過程における健康リスクに関する検討	17
船水 尚行	
2. 消毒副生成物による健康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研究	23
伊藤 禎彦、大河内 由美子	
3. 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	35
西村 和之	
4. 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）	47
大瀧 雅寛	
5. アニューラーリアクターを用いた配水管路内における 微生物再増殖制御に関する検討	57
国包 章一、島崎 大、岩田 和隆	
III. 研究成果の刊行に関する一覧表	71
IV. 研究成果の刊行物・別刷	75

## 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

京都大学大学院工学研究科教授

伊 藤 禎 彦

お茶の水女子大学大学院人間文化創成科学研究科准教授

大 瀧 雅 寛

国立保健医療科学院水道工学部

生活衛生適正技術開発主任研究官

島 崎 大

県立広島大学生命環境学部教授

西 村 和 之

北海道大学大学院工学研究科教授

船 水 尚 行

### 研究協力者

京都大学大学院工学研究科

大河内 由美子

国立保健医療科学院水道工学部

岩 田 和 隆

厚生労働科学研究費補助金

地域健康危機管理研究事業

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19年度 総括研究報告書

平成20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、水道水の安全性およ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ことを目的として実施した。日本国内の浄水系をシミュレーションするための類型化、残留塩素に依存しない系において懸念される、配水管網や給水系内における微生物の再増殖のシミュレーション法、および、病原微生物と消毒副生成物による健康リスクの推算とその DALY 値を用いた比較方法を確立し、消毒剤の残留効果が無い場合を想定した健康影響リスク推算を行った。クロロ酢酸類および SRNOM 塩素処理生成物の *in vitro* バイオアッセイの結果と慢性毒性試験結果（文献値）から、SRNOM の塩素処理により生成する TOX の毒性はジクロロ酢酸と同程度かより強いことを示し、TOX を指標とした消毒副生成物リスクの総括的評価の重要性を提示した。給配水過程での重要な水質指標である従属栄養細菌数につき、BrdU 標識 DNA 合成量を指標とすることにより、7 日後に得られる R2A 平板培養数を 36 時間程度で予想可能であることを示した。酪農地域におけるクリプトスポリジウム等病原微生物の河川流出量を調査し定量的に明らかにした。また、RNA 法により活性を持つと判断されるオーシスト数を定量する場合に必要な底泥試料の量につき検討を行った。塩素、紫外線、オゾンおよび二酸化塩素を用いた消毒における大腸菌の損傷作用機構を検討し、これらの各々が病原細菌に与える損傷レベルを推定した。塩素は CT 値によって損傷レベルが異なり、オゾンは pH の影響を大きく受けた。紫外線照射装置の不活化効率を測定するための生物線量計として、原水中の一般細菌をそのまま用いる新しい方法を提案した。配水過程における微生物再増殖につき室内実験を行い、付着微生物量が 2~3 週間で定常状態に達すること、定常状態における付着微生物量や細菌種は水中の残留塩素濃度レベルや壁面の材質および粗度に応じて異なること、付着微生物量は残留塩素濃度の一時的な上昇によって急減するが、元の濃度に戻ると速やかに回復すること等を明らかにした。

#### 分担研究者

伊藤禎彦	京都大学大学院工学研究科教授
大瀧雅寛	お茶の水女子大学大学院人間文化研究科准教授
島崎 大	国立保健医療科学院水道工学部生活衛生適正技術開発主任研究官
西村和之	県立広島大学生命環境学部教授
船水尚行	北海道大学大学院工学研究科教授

## 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問題であり、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した。

## B. 研究方法

### 1. 給配水過程における健康リスクに関する検討

これまでの検討により、(1) 検証対象物質（病原微生物）の選定、(2) 原水水質＋処理系＋消毒系＋配水池＋配水管網＋給水系におけ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、また、水源域＋原水水質＋処理系＋消毒系＋配水池＋配水管網＋給水系を包括的に表現し、健康リスクを確率的に推算するシミュレーションを実施するための、具体的数値、要素モデルの同定を目的として、シミュレーション対象の類型化と計算モデルのコード化、ならびに、病原微生物について現状のリスク評価を行ってきた。今年度は、配水管網内微生物再増殖モデルの妥当性の検討をアニューラーリアクターを用いた実験結果との比較により実施し、また、原水水質→処理系→消毒のシステムの中で化学物質のリスク評価を実施し、DALY 値により病原微生物によるリスクとの比較を行った。

### 2. 消毒副生成物による健康リスクの総括的評価および塩素処理と免疫毒性の関連に関する検討

#### (1) 消毒副生成物による健康リスクの総括的評価に関する検討

昨年度までに行った文献考察によるクロロ酢酸類の慢性毒性試験結果と、クロロ酢酸類および SRNOM 塩素処理水の *in vitro* バイオアッセイ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) 再増殖微生物に対する代替指標の探索および測定の迅速化に関する検討

残留塩素を除去した給水栓水の再増殖 HPC とエンドトキシンの経時変化を調べた。また、残留塩素を低減した水道水をアニューラーリアクターに通水し、PVC 表面のバイオフィーム形成と流出水中のエンドトキシン濃度・形態変化を調べた。さらに、5-ブromo-2'-デオキシウリジン (BrdU) を添加してモデル微生物を短時間培養し、標識された新規合成 DNA の免疫学的定量を検討した。

### 3. 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

#### (1) 水道水源における健康影響微生物量の把握

広島県北部の酪農地帯を流れる一級河川江の川水系に属するA類型指定の西城川の支流であり、従来の調査により *Cryptosporidium* の検出頻度が高かった比和川における比和川橋と富士沢橋を調査地点とした。試料は、河川水 200L をポリタンクで採水後、実験室内でポリエチレン製 MF 中空糸膜モジュールを用いて濃縮した。濃縮試料は 2 分割し、公定法による顕微鏡観察と東和科学（株）製 *C. parvum* 検出キット（RNA 検出法）による *hsp* 86 領域に基く定量を行った。さらに、別途に採水した 40L 試料から遺伝子（DNA）を抽出し、PCR により *hsp*70 領域を増幅してホモロジー検索による遺伝子型の同定を行った。また、*Cryptosporidium* は、河川水中よりも底泥中の現存量の方が多いと指摘があることから、移植ゴテで底泥 400g を採取し、河川水試料と同様の前処理を行った後に、RNA 法と顕微鏡観察法により *Cryptosporidium* の定量を行った。

#### (2) 二酸化塩素処理による不活化条件の検討

不活化評価を行う上で微生物計数用の培地組成が結果に影響を及ぼすとする指摘があることから、*Salmonella enterica* (NBRC100797) に対する次亜塩素ナトリウム処理と二酸化塩素処理による不活化試験を行い、99%不活化に要する CT 値を用いて培地組成の影響を評価した。また、水道水が生活排水に汚染された場合を想定した不活化試験を行った。

### 4. 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) 各消毒法における大腸菌の損傷レベルの比較

塩素代替消毒法の導入可能性を検証するために、オゾンおよび二酸化塩素における細菌の損傷レベルについて試験した。オゾンおよび二酸化塩素処理を大腸菌（NBRC3301）に施し、4つの異なる培地（非選択培地および3つの選択培地）および DAPI/PI 染色法によって測定して、損傷レベルを検討した。

#### (2) 紫外線消毒装置の運転管理手法の提案

上水への適用が新たに認められた紫外線照射装置の評価方法として、装置内線量分布の実測を試みた。異なる流量条件において、生物線量計による線量測定データを 40~60 収集し、その標準偏差より装置のもつ線量分布を推定した。

### 5. 配水管路内における微生物再増殖制御に関する検討

生物膜モニタリング装置であるアニュラーリアクターを用いて、消毒剤の種類および配水管の材質が配水過程における微生物再増殖性に及ぼす影響について調べた。前者では、定常状態に達した生物膜に対して、異なる消毒剤（二酸化塩素および次亜塩素酸ナトリウム）およびキレート剤である EDTA を 2 日間添加した。後者では、鋳鉄、ステンレス SUS304、コンクリート被覆ポリカーボネートの 3 種類の試験片を用い、残留塩素なしで連続通水した。各実験ともに、流入水、流出水および試験片表面に付着した微生物を定期的に採取し、一般細菌数と従属栄養細菌数を測定した。一部の実験においては、グラム染色法および API キット（日本ビオメリュー株式会社）による細菌種の分類と同定を行った。

## (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等は行っていない。

## C. 研究結果

### 1. 給配水過程における健康リスクに関する検討

#### (1) 配水管網内微生物再増殖モデルの妥当性の検討

アニューラリアクター流出水中の従属栄養細菌濃度について、実測値と計算結果の比較を行った。塩素が存在しない場合については、20日経過後の菌数のオーダー( $10^5$ レベル)の実測と計算は一致し、論文等で従来使用されていたパラメータ値を用いることが可能であることが確認された。残留塩素が存在する場合について、生菌数減少速度係数を従来値よりも大きく見積もらないと、実測結果を表現することができなかった。また、残留塩素濃度を一時的に変化させる実験結果をシミュレーションは再現できることも確認した。

#### (2) 消毒副生成物のリスク評価

浄水中 TOC 濃度の推算値(平均値で類型 I: 2.0mg/L、類型 II: 1.2mg/L、類型 III: 0.7mg/L)をもとに、TOX 濃度を計算し、ジクロロ酢酸と同程度の発がん性を有すると仮定 (slope factor:  $5 \times 10^{-2}$  per mg/kg-day) して年間の発ガンリスクを計算した。次に発ガンに関する DALY 値を 10 年 per case とおいて計算したところ、WHO の許容値 ( $10^{-6}$ DALY/人/年) を超える結果となった。このため、消毒副生成物によるリスク評価については、今後の更なる精査の上で結論を得る必要があると判断された。

### 2. 消毒副生成物による健康リスクの総括的評価および塩素処理と免疫毒性の関連に関する検討

#### (1) 消毒副生成物による健康リスクの総括的評価に関する検討

総じて、SRNOM 塩素処理水の毒性はトリクロロ酢酸よりも強く、ジクロロ酢酸またはクロロ酢酸と同程度であると推定された。そこで、SRNOM 塩素処理水の毒性をジクロロ酢酸と同程度と仮定し、ジクロロ酢酸の現行の水道水質基準値から対応する TOX 値を算出したところ、22  $\mu\text{g-Cl/L}$  となった。

#### (2) 再増殖微生物に対する代替指標の探索および測定の迅速化に関する検討

給水栓水を対象とした調査およびアニューラリアクター運転結果より、再増殖が進んだ試料(水中浮遊従属栄養細菌数  $< 2 \sim 5 \times 10^3$  cfu/mL)では遊離エンドトキシン比率が 70%未満に低下することが確認された。さらに、5 時間培養後の *P. fluorescens* P17 の BrdU 標識 DNA 量は、R2A 平板培地を用いた計数結果の対数値に比例することを確認した。

### 3. 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

#### (1) 水道水源における健康影響微生物量の把握

*Cryptosporidium* について顕微鏡観察法と RNA 検出法により定量を行った結果、100L 相



当の試料水中から顕微鏡観察法では検出できないが、RNA 検出法では最大 5 個/80L のオーシストが検出されたことから、調査対象である比和川流域における原単位は、最大 48 個/sec のヒト型またはウシ型のオーシストが流出していると結論づけられた。また、底泥試料から分子生物学的手法により *Cryptosporidium* を検出する場合、定性的に確認するならば 50g あれば十分であるが、RNA 法により活性を持つと判断されるオーシスト数を定量する場合には、100g 以上の試料が必要であると判断された。一方、レジオネラ菌族や *Ba. Cereus* に関しては、源流部に近い本調査の場合、市販の分子生物学的キットでは 1.5L 程度の試料であっても検出することは困難であり、試料の濃縮方法や遺伝子の抽出方法等を含めて検討しなければならないと判断された。

#### (2) 二酸化塩素処理による不活化条件の検討

*S. enterica* を指標微生物とした消毒処理試験の結果、不活化に必要な CT 値を得る為には、大腸菌と同様に評価用の培地特性を考慮した実験を行う必要があるとあり、文献データの収集・整理においてもその点を考慮する必要があることが示された。

#### 4. 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) 各消毒法における大腸菌の損傷レベルの比較

オゾン溶解水においては pH により反応主体が変化し、細菌への損傷部位が変わることがわかったが、オゾン曝気においては、pH によらずオゾン分子が反応主体となり、外膜の損傷が起りやすいことがわかった。二酸化塩素では、外膜への損傷は起こらずに細胞内部で酵素活性の損傷が起りやすいことが示唆された。また、いずれにおいても大腸菌を用いて各消毒法の評価を行う場合は、細胞の一部が損傷を受けているが、増殖可能であるような亜致死の損傷の大腸菌を誤陰性としてしまい、消毒効果の過大評価につながることをわかった。

##### (2) 紫外線消毒装置の運転管理手法の提案

紫外線照射装置の評価に関しては、異なる流量条件において装置の与える紫外線線量分布の標準偏差はほぼ等しいことが推定された。

#### 5. 配水管路内における微生物再増殖制御に関する検討

管内面に付着する細菌数および流出水中の細菌数は、二酸化塩素および次亜塩素酸ナトリウムの添加により大きく減少したが、EDTA の添加による生物膜剥離効果は確認できなかった。生物膜中の細菌群は、消毒剤の有無およびその種類による影響を受け、球菌と桿菌の割合や同定された細菌種に相違が見られた。配水管の材質については、鋳鉄、SUS304、コンクリート被覆ポリカーボネイトのいずれの材質も流出水中の細菌数は同程度であったが、管内面に付着する細菌数は鋳鉄の場合に多く、定常期の細菌数は他の材質よりも 1 桁前後高かった。また、生物膜中の細菌群は材質や次亜塩素酸ナトリウムの添加による影響を受け、グラム陽性菌とグラム陰性菌の割合や同定された細菌種に相違が見られた。

## D. 考察

### 1. 給配水過程における健康リスクに関する検討

有機物濃度→TOX 生成量→等価ジクロロ酢酸量→発がんリスク→DALY 値という消毒副生成物によるリスク、ならびに DALY 値推算法を提案した。これにより、病原リスクと消毒副生成物のリスクを DALY という共通の尺度で評価することが可能となった。

### 2. 消毒副生成物による健康リスクの総括的評価および塩素処理と免疫毒性の関連に関する検討

#### (1) 消毒副生成物による健康リスクの総括的評価に関する検討

ジクロロ酢酸水質基準値に相当する TOX 量  $22 \mu\text{g-Cl/L}$  に対して、一般的な水道水中の TOX は  $80\sim 100 \mu\text{g-Cl/L}$  であり、TOX を指標とした消毒副生成物リスクの総括的評価の重要性が改めて認識されたといえる。

#### (2) 塩素処理と免疫毒性との関連性に関する検討

遊離エンドトキシン比率の低下は微生物再増殖が進んだ試料では有効な指標となったが、再増殖初期には他のモニタリング指標・手法が必要と考えられる。また、BrdU 法は R2A 平板培養数を 36 時間程度で予測可能とする有効な手段と考えられる。

### 3. 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

#### (1) 水道水源における健康影響微生物量の把握

文献値および過去の調査事例から、我が国における牛糞由来のクリプトスポリジウム・オーシスト負荷は、 $1.0\sim 1.9\times 10^9$  個/頭程度であると算定されることから、 $7.5\times 10^{11}\sim 2.0\times 10^{12}$  個が流域に負荷されたと推定されるクリプトスポリジウム・オーシストが、 $7.1\times 10^{-5}\sim 2.7\times 10^{-5}$  程度希釈されて採水点まで到達したものと推計された。一方、本調査より、水源河川水中のクリプトスポリジウム・オーシスト濃度を 5 個/100L と仮定すると、この水を直接飲用した場合の感染確率は年間 14.2% となり、浄水場に求められる除去性能は 99.9% 除去を満たす処理技術となる。

#### (2) 二酸化塩素処理による不活化条件の検討

デスオキシコーレート寒天培地で *S. enterica* の不活性化を評価した場合、大腸菌で示唆されていることと同様に消毒効果を過大に評価する可能性があると考えられた。また、低濃度の二酸化塩素処理では、塩素消毒よりも大きな CT 値によるプロセス制御が必要であると判断された。二酸化塩素処理では、塩素処理と比較して接触時間がより大きく影響する可能性があることを示していた。

### 4. 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）

異なる培地による大腸菌数の違いおよび DAPI/PI 染色法による測定結果の違いによって、

各消毒技術による大腸菌への作用機構が推定された。それによれば、塩素は高濃度では致死的な損傷割合が高くなるが、低濃度では細胞壁の変性による亜致死的な損傷の割合が高くなること、オゾンにおいては低 pH から中性付近では主に細胞壁の変性による亜致死的な損傷割合が高いが、高 pH では致死的な損傷の割合が高くなることと推察された。また二酸化塩素においては、亜致死的な損傷割合が高いものの、その損傷部位は細胞膜ではなく、細胞内の酵素生成能に及びやすいと推察された。

#### 5. 配水管路内における微生物再増殖制御に関する検討

消毒剤の種類について、二酸化塩素の方が次亜塩素酸ナトリウムよりも消毒効果が高かった。一時的な残留塩素濃度の上昇に対して、残留塩素なしの系で増殖した生物膜の感受性は高く、大幅に細菌密度が低下した。一方、残留塩素が元々存在する系ではほとんど影響は見られず、塩素濃度の変動に対する耐性を持つことが示された。管表面の材質については、鋳鉄のみが他の材質よりも 1 桁前後高かったが、これは鋳鉄の酸化により消毒剤がほぼ消費され、消毒効果が損なわれたためと考えられる。

#### E. 結論

わが国の水道水の安全性は、塩素消毒によって確保されていると言っても過言ではない。水道における塩素消毒は、水系感染症の予防に大きな役割を果たしている。水道水の安全確保におけるこのような塩素消毒の効果は、もとより正当に評価されるべきである。しかしながら、水道における塩素消毒には、以前から指摘されているように、副生成物の生成を初めとして、水道水の安全性や快適性の面でいくつかの問題点があることも事実である。本研究は、これらの問題点を見据えつつ、現状における水道水の安全性を客観的・科学的に評価するとともに、塩素消毒や残留塩素の確保だけに依存しない新しい水道の水質管理のあり方につき模索を行ったものである。本研究による成果の概要は以下のとおりである。

- (1) 日本国内の浄水系をシミュレーションするための類型化、残留塩素に依存しない系において懸念される、配水管網や給水系内における微生物の再増殖のシミュレーション法、および、病原微生物と消毒副生成物による健康リスクの推算とその DALY 値を用いた比較方法を確立し、消毒剤の残留効果が無い場合を想定した健康影響リスク推算を行い、その適用性を確認した。
- (2) クロロ酢酸類の毒性試験結果に基づいて SRNOM 塩素処理水の毒性を推定し、ジクロロ酢酸と同程度かより強いことを示し、TOX を指標とした消毒副生成物リスクの総括的評価の重要性を提示した。
- (3) 微生物再増殖を表す指標としてエンドトキシン濃度およびその形態に着目し、再増殖微生物量が従属栄養細菌数として  $2\sim 5 \times 10^3$  cfu/mL を超えた場合に、遊離エンドトキシン比率が顕著に低下 (<70%) することを示した。
- (4) DNA 合成活性に着目して従属栄養細菌定量の迅速化を試み、従属栄養細菌数測定に要する時間を 36 時間程度に短縮できる可能性を示した。

- (5) 酪農地域におけるクリプトスポリジウム等病原微生物の河川流出量を調査して、定量的に明らかにした。また、RNA 法により活性を持つと判断されるオーシスト数を定量する場合に必要な底泥試料の量につき明らかにした。
- (6) オゾン消毒は、その条件によって大腸菌への損傷の与え方が異なることがわかった。また二酸化塩素の主な損傷部位は細胞内部であることがわかった。いずれにおいても大腸菌を用いて消毒方法の評価を行う場合は、測定培地によっては過大評価となることが示唆された。
- (7) *S. enterica* を指標微生物とした消毒処理試験の結果、その不活化に必要な CT 値を得るためには、大腸菌の場合と同様に評価用の培地特性を考慮した実験を行う必要があり、文献データの収集・整理においてもその点を考慮する必要があることが示された。
- (8) 流水式の紫外線照射装置の評価手法として、生物線量計を用いて装置のもつ線量分布の標準偏差を実測する方法を提案した。
- (9) 配水過程における微生物再増殖につき室内実験を行い、付着微生物量が 2~3 週間で定常状態に達すること、定常状態における付着微生物量や細菌種は、水中の消毒剤の種類や濃度、および、壁面の材質に応じて異なること、ならびに、消毒剤の種類や濃度、管材質の種類によって、生物膜中で同定される細菌種に相違が現れることを明らかにした。

## F. 研究発表

### 1. 論文発表

- 1) 廣戸裕子, 大瀧雅寛 (2006) 流水式紫外線照射装置における一般細菌を用いた生物線量計の実用性, 用水と廃水, Vol.48, No.11, pp.989-993.
- 2) 大河内由美子, 石川卓, 高橋恭介, 伊藤禎彦 (2007) 水環境におけるエンドトキシンの変動要因と浄水処理過程におけるエンドトキシン除去特性, 環境工学研究論文集, 44, pp.247-253.

### 2. 学会発表

- 1) 西村和之, 国包章一 (2007) 流出クリプトスポリジウム・オーシスト量算出のための予備的調査, 第 58 回全国水道研究発表会講演集, p.606-607.
- 2) 大河内由美子, 石川卓, 高橋恭介, 伊藤禎彦 (2007) 浄水処理過程における微生物およびその由来物質の挙動に関する研究, 第 58 回全国水道研究発表会講演集, p.622-623.
- 3) Dai Simazaki, Masako Takai and Shoichi Kunikane (2007) Effect of residual chlorine concentration and roughness of pipe wall surface on bacterial regrowth potential in the course of drinking water distribution, Proceedings of IWA 14th International Symposium on Health-Related Water Microbiology (Sep. 9- 15, 2007, Tokyo, Japan)
- 4) 大瀧雅寛, 廣戸裕子 (2007) 紫外線量の化学光量計による計測, 第 10 回日本水環境学会シンポジウム.
- 5) 王雪丹, 大瀧雅寛 (2007) オゾン処理における大腸菌損傷レベルの評価方法, 第 17 回日

本オゾン協会年次研究講演会講演集, pp.95-97.

- 6) 大河内由美子, 浅田安廣, 伊藤禎彦 (2008) DNA 合成量に基づいた従属栄養細菌の迅速定量に関する基礎的検討, 第 42 回日本水環境学会年会, p.162.
- 7) 岩田和隆, 島崎大, 国包章一 (2008) 配水過程における微生物再増殖に対する管材質および残留塩素の影響, 第 59 回全国水道研究発表会 (発表予定).

#### 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

地域健康危機管理研究事業

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19年度 分担研究報告書

平成20年3月

分担研究報告書 1

## 給配水過程における健康リスクに関する検討

分担研究者 船水 尚行

## 平成 19 年度分担研究報告書

### 給配水過程における健康リスクに関する検討

分担研究者 北海道大学大学院工学研究科環境創生工学専攻 船水 尚行

#### 研究要旨

##### (1) 全体の研究目的

残留塩素に依存しない系においてリスク値を一定以下にするため方策を検討する。このために、原水水質から処理系、そして給配水系を包括的に表現し、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。

##### (2) 全体の研究方法:

- ①水系伝染病の発生に関する統計と DALY 値を用いて検証対象物質(病原微生物)の選定を行う。
- ②水源域+原水水質+処理系+消毒系+配水池+配水管網+給水系を包括的に表現し、健康リスクを確率的に推算できるモデル構築を行う。

##### (3) これまでの研究結果:

###### ① 検証対象物質(病原微生物)の選定(2005 年度)

水系伝染病の発生頻度に関する統計値をその疾病の重篤さの指標である DALY 値を用いて重み付けを行い、主要な検討対象微生物として、ロタウィルス、カンピロバクターを選定した。また、給配水系における微生物の再増殖に関連が深いレジオネラも対象に加えた。

###### ② シミュレーションモデルの構築(2006 年度)

- ・ シミュレーション対象の類型化と原水水質変動特性の設定
- ・ 各処理ユニットの処理効率変動特性
- ・ 配水池, 配水管網, 給水系のうちの, 管網, 貯留水槽再増殖のモデル
- ・ 病原性微生物に関する現状のリスク推算

#### A. 平成 19 年度の研究目的

19 年度は以下の二つの項目の検討を行った:

- (1) 配水管網内微生物再増殖モデルの評価, パラメータ値の同定
- (2) 塩素消毒副生成物の健康リスク評価と病原微生物によるリスクとの相対比較

#### B. 研究方法

##### (1) 配水管網の微生物再増殖モデルについて

昨年度構築したモデルの妥当性の評価を保健医療科学院における実験結果を用いて検証する。具体的には、実験条件(流入水条件等)を用い、微生物の増殖のシミュレーションを行い、計算結果と実測結果の照合を行い、パラメータ値のチューニング等を行う。具体的には、昨年度作成したモデルをアニュラーリアクターに適用するためのモデルの修正と実験条件からシミュレーションへの条件の変換を行った。

##### (2) 消毒副生成物のリスク評価

遊離塩素を用いた場合について、伊藤らの検討結果をもとに、原水の有機物量との関係から副生成物による健康リスクを評価する方法を検討する。これにより、原水水質→処理系→消毒のシステムの中で化学物質のリスク評価を実施し、DALY 値により病原リスクとの比較を行う。

#### C. 研究結果と考察

##### (1) 配水管網の微生物再増殖モデルについて

- (1-1) シミュレーションのためのモデル



昨年度開発したモデルは管網用であるため、管路に沿った長さ方向と時間の二つの変数による偏微分方程式となっていた。今回対象とするアニュラーリアクターでは、液系は完全混合、かつ、壁面の状況も場所によらず同一であると仮定できるので、空間座標を取り除いた方程式系を作成し、数値計算のコードを作成した。

### (1-2) 実験条件からシミュレーションのための条件への変換

計算には流入水の条件として、BDOC と従属栄養細菌濃度、塩素濃度が必要である。実測の TOC (平均1.3 mg/L) の30%がBDOCに相当するとした。他栄養細菌数は  $1.0 \times 10^2$  個/mLとした。塩素濃度は実験条件である、ゼロ、0.1、0.5mg/Lとした。

### (1-3) 実験結果と計算結果の比較

アニュラーリアクター流出水中の従属栄養細菌濃度について、実測と計算結果の比較を図1に示す。残留塩素が存在しない場合について、20日経過後の菌数のオーダー ( $10^5$ レベル) は実測 (図中: ■) と計算 (破線) は一致している。この計算には、論文等で従来使用されていたパラメータ値を変更すること無しに計算することができた。しかし、実測では約10日~20日経過後に菌数がある程度定常値に達しているのに対し、計算では1日間で定常に達するという結果であった。計算結果は液中の細菌量と同様に壁面の微生物量も短い期間で定常状態となった。また、反応速度に関連するパラメータの変更を行っても計算結果を大きく変えることは難しかった。今回の実験装置の体積が1L、滞留時間が100分、体積に比較して表面積が大きいことも理由と考えられるが、このことから、数値計算コードの精査が必要と考えられる。

次に、残留塩素が存在する場合については検討を行った。モデルでは水中塩素濃度が従属栄養細菌に与える影響を(1)反応速度の低下(係数 $kinact$ )、(2)生菌数の減少(係数 $kcl$ )の二つで表現している。文献では $kinact$ の値は0.05~5.0と報告されているが、本計算では $kinact=3.5$ と報告値の上限付近の値にする必要があった。 $kcl$ については、報告値が $4.6 \times 10^{-6} \sim 4.6 \times 10^{-3}$ であるのに対し、本計算では $kcl=3.0 \times 10^{-2}$ と塩素の影響を大きく見積もらないと、実測結果を表現することができなかつた。このようなパラメータ値とすることで、図1の実線(計算値)と○(実測)、一点鎖線と●の関係の推算ができた。

また、実験で実施された、塩素濃度の増加に対する菌数の変化はほぼ計算できている。塩素濃度の変化に対しては極めて早く応答しており、実験開始時には定常に達するまで10~20日必要であったのとは異なった挙動であると考えられる。すなわち、環境条件の変化に対する応答時間が長いのか、計算のように短いのか、今後検討する必要があると考えられる。

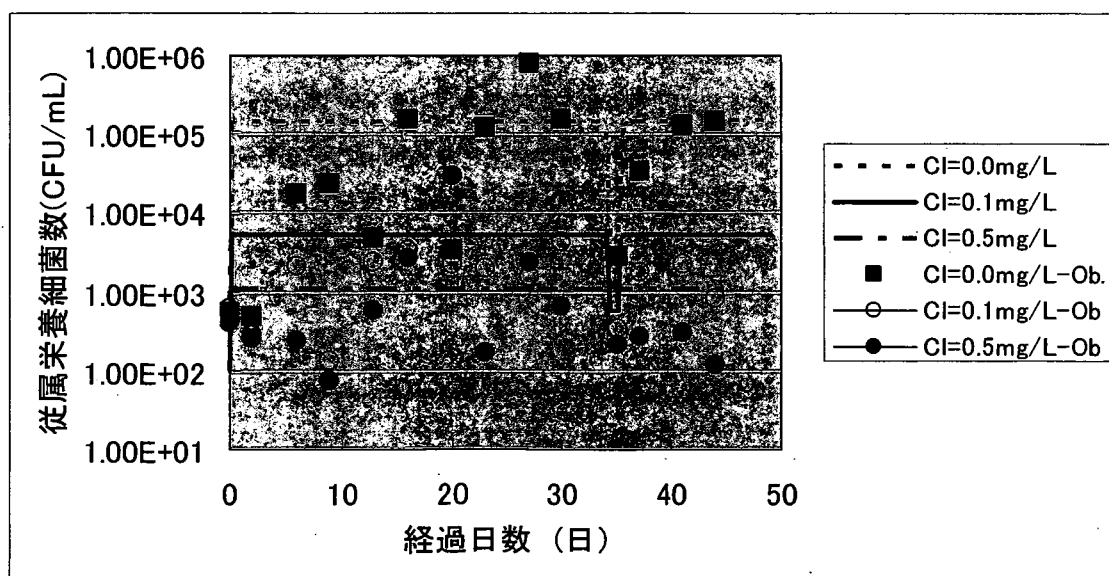


図1 アニュラーリアクター実測結果と計算結果の比較

## (2) 消毒副生成物のリスク評価

### (2-1) 原水有機物量から副生成物によるリスクの推算法

塩素処理水の毒性について、伊藤先生の研究成果の中からリスク評価に関連するものを書き出すと以下のようになる:

1. SRNOM 塩素処理水に対する染色体異常試験、形質転換試験結果より、水質基準に設定されている個別物質の寄与は高く見積もっても数%。
2. 消毒副生成物全体として毒性把握が必要
3. 消毒副生成物全体の毒性はジクロロ酢酸と同程度。すなわち、TOX中のClがすべてジクロロ酢酸中のClとみなして、毒性推定できる。

以上の整理をもとに、次のような塩素消毒に伴う副生成物の発ガンリスク推定法を用意した。

1. 原水中の有機物量を過マンガン酸カリウム消費量(類型ごとに平均値、標準偏差が決まる)により定める
2. 類型ごとの処理プロセスについて、過マンガン酸カリウム消費量に関する処理効率とその変動幅をもとに処理水の過マンガン酸カリウム消費量を計算
3. 過マンガン酸カリウム消費量とTOCの相関関係を用いてTOC濃度に換算
4. 伊藤先生によるTOCとTOX生成量に関する文献調査結果(表1)をもとに、TOX量を推算
5. TOX濃度からジクロロ酢酸濃度に換算
6. ジクロロ酢酸の発ガンに関わる Slope Factor 値 =  $5 \times 10^{-2}$  per mg/Kg-day を用いて、年間の発ガンリスクを推算
7. Havelaar, 2003の結果を用い、DALY の値を1 ケースあたり 10 年として発ガンに伴う DALY 損失を計算。

表1 TOX 生成量の例

実験方法	対象種別	μg/mg C 出典
TOXFP	フミン酸	277 Krasner, 1999
TOXFP	フルボ酸	193 Reckhow and Singer, 1999
TOXFP	DOM 画分	117-268 Croue et al., 2000
TOX	フルボ酸	189 Zhang et al., 2000
TOX	琵琶湖水	140-170 Echigo et al., 2007
TOXFP	親水性酸	101 Krasner, 1999
TOXFP	フルボ酸	140 Krasner, 1999
TOXFP	疎水性中性画分	40 Krasner, 1999
TOXFP	河川水	161 Croue et al., 1999

注: より厳密に経時変化や塩素濃度の影響を検討する場合には、Urano and Takemasa (1986) による経験式が参考になるかもしれない:  $TOX = 0.053 TOC [Cl_2]_0^{0.28} t^{0.13}$   
 ただし、この式はフミン酸に関するものなので、半定量的なものと理解すべきである。すなわち、表1の結果を考えれば、実際の水道原水からの TOX 生成量を高く見積もる可能性もあることに注意が必要である。

内外の文献を調査したが、速度論的情報を含めた体系的な検討例はほとんどなかった。これは、TOX の生成反応が比較的速く、TOX 生成能(TOXFP)として報告されることが多いためと考えられる。表1にいくつかの例を示す。フミン酸で 200 μg/ mg C を超える他はおおむね百数十 μg/ mg C であることがわかる。

反応速度が速いので、近似的には残留塩素が存在している条件下では、塩素濃度によらず表1の値に TOC を乗ずればおよそその TOX 値を推定することは可能であると考えられる。

### (2-2) リスクの推算結果と病原リスクとの比較

上記の方法を用いて各類型ごとに年間発ガンリスク、DALY を計算した結果を表2に示す。なお、TOC から TOX への変換は残留塩素が存在している条件とし、塩素濃度と反応時間によらず(管網内の塩素濃度変化、滞留時間

によらず),  $TOX=150(\mu g-Cl/mg-C) \times TOC$  で行った. この仮定は表1下段の注釈にあるように, 反応速度が速いということによっている. 表には昨年度実施した, 病原微生物による年間, 一人あたり失っている DALY 値のうち, 最も高い値を示したクリプトスポリジウムの場合も示した.

表より, 規模の大きなほど, 浄水中の TOC 濃度が高く, 結果として発ガンリスクも高くなっている. 今回想定した 10 年という DALY 値を用いると一人, 一年あたり  $10^{-3}$  レベルの DALY を失っているとの計算結果である. 昨年実施した病原リスクと比較しても大きな DALY である. ちなみに, WHO は  $10^{-6}$  DALY/人/年という値を推奨している.

表2 消毒副生成物による健康リスク, DALY

類型	浄水の平均 TOC(mg/L)	消毒副生成物による年間発ガンリスク	消毒副生成物による DALY (/人/年)	クリプトによる DALY (/人/年)
I(大規模)	2.03	$2.8 \times 10^{-4}$	$3.1 \times 10^{-3}$	$5.6 \times 10^{-7}$
II	1.23	$1.7 \times 10^{-4}$	$1.9 \times 10^{-3}$	$6.3 \times 10^{-8}$
III(小規模)	0.71	$9.7 \times 10^{-5}$	$1.1 \times 10^{-3}$	$2.5 \times 10^{-9}$

表の消毒副生成物に関する結果は病原微生物によるリスクと比較して, 発ガンリスクが相当高いことを示している. しかし, 今回の計算は SRNOM 塩素処理水に対する染色体異常試験, 形質転換試験結果をもとにしたものであり, ヒトの発ガンについてどこまで推測が可能なのか不確定な部分が残っている. また, TOC→TOX→ジクロロ酢酸→発ガンという考え方についても議論が必要である. そのため, 今回の結果については公表を差し控える必要があると判断される.

#### E. まとめにかえて

19年度の研究により, 配水管網内バクテリア再増殖について, その速度については実験結果をうまく表現できなかったものの, 定常状態における微生物量についてはおおよそ再現できることが, アニユレーリアクターによる実験結果をシミュレーション値の比較により確認できた. また, 塩素レベルの違いによる微生物量の差もシミュレーション可能であることが確認された.

消毒副生成物と病原性微生物によるリスクの比較を DALY 値を用いて検討することができた. 特に, 消毒副生成物による発ガンリスクの推算を比較的データのそろっている過マンガン酸カリウム消費量(現在では TOC 値)を用いて簡便に行う方法を提案した. この方法では TOX 量を TOC 値から推算, 加えて伊藤らの研究成果を用いて, TOX 推算量をジクロロ酢酸等価量に変換し, 発ガンリスクを推算するものである. この方法により推算された発ガンリスク値, 10年間の DALY 値は高い値となった. このような推算結果の妥当性については, 今後の検討が必要である.

また, 長期シミュレーションによる残留塩素非依存系の健康リスク評価を達成することができなかった. この点も今後の課題である. 水質事故, 処理系における事故, 給配水系における事故の生起確率を指数分布により近似し, 50 年程度の期間を想定し, 事故, 原水水質の変動, 処理効率の変動をモンテカルロシミュレーションにより再現し, 健康リスク値の確率分布を求めることを試みた. しかし, 事故によってどの程度水質が変化するかと(例えば, 病原微生物や有機物汚染の程度と処理系への影響, 給水栓水質への影響)を定量的に定めることがデータ不足によりシミュレーションに組み込むことができなかった. この点については今後の課題としたい.

#### 参考文献

Havelaar A.H and Melse: Quantifying public health risk in the WHO Guidelines for Drinking-Water Quality, RIVM report 734301022/2003

分担研究報告書 2

消毒副生成物による健康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

分担研究者 伊藤 禎彦  
研究協力者 大河内 由美子