

2007 38034A

厚生労働科学研究費補助金
地域健康危機管理研究事業

飲料水の水質リスク管理に関する統合的研究

平成19年度 総括・分担研究報告書

主任研究者 松井 佳彦（北海道大学）

平成20（2008）年 3月

目 次

I. 総括研究報告	
飲料水の水質リスク管理に関する統合的研究	1
松井 佳彦	
II. 分担研究報告	
1. 無機物質に関する研究	18
伊藤 雅喜, 国包 章一	
2. 一般有機物に関する研究	28
安藤 正典, 秋葉 道宏, 西村 哲治	
3. 微生物に関する研究	51
遠藤 卓郎	
4. 消毒副生成物に関する研究	60
伊藤 偵彦	
5. 農薬に関する研究	69
相澤 貴子, 西村 哲治	
6. 水道水質管理に関する研究	79
国包 章一, 西野 二郎	
7. リスク評価に関する研究	109
江間 眞, 長谷川 隆一, 広瀬 明彦	
III. 研究成果の刊行に関する一覧表	128
IV. 研究成果の刊行物・別刷	132

平成 19 年度厚生労働科学研究（地域健康危機管理研究事業）

総括研究報告書

飲料水の水質リスク管理に関する総合的研究

主任研究者 松井 佳彦 北海道大学大学院工学研究科 教授

研究要旨

水道水質基準の逐次見直し等に関して着目すべき項目に関してそれらの存在状況、監視、低減化技術、暴露評価とリスク評価に関する研究を行った。その結果、カルシウム、マグネシウムなどの無機物質、THM、ハロ酢酸などの消毒副生成物の摂取量に対する水道水寄与率が、必ずしもリスク評価で用いられているデフォルト値に近くないとデータも得られ、今後も継続した調査が必要であることが分かった。PFOS 及び PFOA などの未規制物質や、新たな消毒副生成物 NDMA について調査した結果、濃度が高いデータも得られた。PFOS、PFOA については毒性情報も整理しつつあり、今後も継続的に情報収集に努める予定である。農薬についてはその酸化物や第 2, 3 群に分類されているものでも高濃度で検出され、地域性を考慮した流域ごとの農薬使用量とプライオリティーリストを構築する必要が示された。微生物関連では、クリプトスポリジウム等の原虫の検出系として可溶性ケーキろ過による捕集装置の開発と、RT-LAMP 法による検出感度の向上を図ると共に、ノロウイルスの浄水処理性について実験を開始した。さらに、凝集剤・活性炭に含まれる重金属類、希土類元素、TOC 基準値設定の背景（TOC と塩素消費量、消毒副生成物の関連）、カルシウム・マグネシウム・pH・腐食性とランゲリア指数の関連、臭素酸、塩素酸など多数の水質項目について検討すると共に、Nitrobenzene の一般毒性及び生殖発生毒性指標の評価をベンチマークドース手法により行った。水道水質管理全般については、水安全計画作成や水道水源保護区域の設定など諸外国では日本に比べてより踏み込んだ規制的措置が取られていることが示された。

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	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ー	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	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
松下 拓	北海道大学大学院工学研究科	准教授

A. 研究目的

本研究の目的は、水道水質基準の逐次見直し等に資すべき化学物質や消毒副生成物、病原生物等を調査し、着目すべき項目に関してそれらの存在状況、監視、低減化技術、暴露評価とリスク評価に関する研究を行い、水道水質基準の逐次改正等に資するとともに、水源から給水栓に至るまでの水道システム全体のリスク管理のあり方に関して提言を行うことにある。

無機物質に関しては、水道水に含まれる無機物質等のうち水質基準項目、水質管理目標設定項目として設定されている物質を主な対象とし、さらに水道用資機材からの無機物質の溶出による水質汚染のおそれについても検討対象とした。さらに WHO 飲料水水質ガイドラインの改訂項目となる可能性のある無機物質に関しては水質基準改定も視野に入れ、存在状況、処理性等、水質基準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。このほか今後問題となる可能性のある物質群としてレアメタルに関する現状についても明らかにする。

塩素及びオゾン処理の副生成物については、トリハロメタン、臭素酸イオン、NDMA (N-ニトロジメチルアミン)、ハロ酢酸、塩素酸イオン等を対象に、制御技術、分析技術、生成実態及び曝露量について、水質基準の逐次改正に関する検討に重要と考えられる事項を中心に調査を行った。特に今年度は、トリハロメタン及びハロ酢酸の複数経路を考慮した曝露量評価、NDMA の生成実態調査、及び市販飲料中の塩素酸イオン及び過塩素酸イオンの生成実態に力点を置いて調査を進めた。

農薬については、その使用実態が年度及び地域によって異なるため、これらを的確に把握することが課題である。そこで、新たに監視が必要となる農薬の存在状況等の検討を含め、水質管理目標設定項目で現在示されている101種類に、平成20年4月より追加されるフィプロニルを加えた102種類の農薬を中心とした実態調査を行うとともに、検査対象プライオリティリストの改編を合理的に行うことのできるデータベースを確立することを目的に設定した。また、農薬は多種多様にわたることから、デー

タ解析やモデル解析を用いた優先監視すべき農薬の評価、あるいは優先的に監視すべき農薬の選定を目指した農薬流出解析を行う。さらに、有機リン系農薬について、塩素処理やオゾン処理によって生成するオキソン体が遅発性神経毒性を有するとの報告がなされていることから、オキソン体が入手可能なものについては分析法を確立し、その存在状況について調査を行う。

消毒副生成物と農薬以外の有機物質については、TOC、ピコプランクトン、臭気物質、有機フッ素化合物を検討対象とした。TOCはTTHM、ハロゲン化酢酸、KMnO₄消費量などの関連性・相関性の調査し、基準項目TOC値5mg/Lの低減の可能性と特にその意義を検討する。かび臭被害の水道水源での発生状況・存在実態、その低減化対策等、さらには、ろ過水中への漏出による濁度上昇など浄水処理工程で障害となるピコプランクトンの貯水池における最大出現数とその時期、季節変動を把握する。環境中や生物体内での残留性が高く、発がん性などの毒性も疑われ、広範囲な汚染が懸念されているパーフルオロカルボン酸やパーフルオロスルホン酸など有機フッ素化合物(PFCs)の水道原水や水道水中の存在実態、浄水工程における除去性、経口からの摂取量における水道水の寄与率を明らかとするため、PFCsの一斉分析法の開発と実態調査を試みる。

微生物関連については、従属栄養細菌、耐塩素性病原微生物、ならびに腸管性ウイルスを包括的に検討し、微生物学的な安全性の向上・確保を目指すこととした。平成20年4月より従属栄養細菌数測定は水質管理目標設定項目に追加され、実際的な調査が実施される。一般細菌に替わる指標細菌として、従属栄養細菌の検査方法ならびにガイドライン値の設定に資すべき資料の整理が必要と考える。クリプトスポリジウム等の耐塩素性病原微生物対策では、新たなモニタリングシステムの構築に向けて検討が進められている。その中で、これまでの形態学的検査とは別に迅速・高感度な遺伝子検査による試験方法の検討を行なっている。

また、腸管性ウイルス汚染のモニタリングの重要性が指摘されることから、新たな指標生物の検討がなされた。

以上のような水質項目別の検討に加えて、水道水の安全性を確保するための集水域管理及び水質管理について、制度の現状等を含めて諸外国の優れた点を整理し、水源から給水栓に至るまでの水道システム全体のリスク低減方策を検討した。また、水道水の塩素酸濃度の低減対策について明らかにするため、水道事業体における次亜塩素酸ナトリウム溶液の購入や保管の実態調査と、それらと塩素酸濃度との関連についても検討を加えた。

また、水質基準設定に関するリスク評価に関して、本年度は近年その環境汚染濃度の上昇が懸念されているパーフルオロカルボン酸(perfluorooctanoic acid, PFOA)やなど及びパーフルオロスルホン酸(perfluorooctane sulfonate, PFOS)の毒性情報収集・整理を行うとともに、WHO が新たな評価対象物質として選択した nitrobenzene について水道水質基準のための健康影響評価値設定の観点から安全性評価手法を検討した。

B. 研究方法

原水や水道水質の状況、浄水技術について調査研究を行うため、研究分担者 13 名の他に 33 もの水道事業体などから 66 名の研究協力者の参画を得て、各研究分担者所属の施設のみならず様々な浄水場などのフィールドにおける実態調査を行った。水質項目は多岐にわたるため、これらを上述の研究目的に沿って 7 課題群に分けて、研究分科会を構成し、全体会議などを通じて相互に連携をとりながら並行的に研究を実施している。研究分科会名は、無機物質分科会（研究分担者 2 名、研究協力者 12 名）、一般有機物（研究分担者 4 名、研究協力者 9 名）、微生物（研究分担者 2 名、研究協力者 7 名）、消毒副生成物（研究分担者 1 名、研究協力者 12 名）、農薬（研究分担者 2 名、研究協力者 15 名）、水道水質管理（研究分担者 2 名、研究協力者 8 名）、リスク評価（研究分担者 3 名、研究協力者 4 名）である。

無機物質分科会では、カルシウム、マグネ

シウムに関して、国認可の水道事業体 427、水道用水供給事業体 86 の計 513 事業体を調査対象としたアンケート調査を実施し、測定方法、カルシウム、マグネシウムの分別測定の実施の有無、カルシウム濃度及びマグネシウム濃度を調査した。また、水道統計による pH に関する現状調査、鉄系凝集剤が使用されている諸外国（ヨーロッパ、USA）の鉄系凝集剤（水道用薬品）の規格情報、活性炭からの初期溶出に関する調査、鉄系凝集剤を使用したナノろ過処理水と膜面付着物質量の小型並列平膜用セルを用いた定量、レアメタルの年間消費量や用途など概要について文献調査を行った。さらに、食品と飲料水からの無機物質摂取量調査として、食品試料中の無機物質（ICP/MS で 14 元素、ICP/AES で 3 元素の計 17 元素）の前処理・分解・分析方法を検討し、マーケットバスケット法により調製した食品試料の分析を試みた。

一般有機物分科会では、浄水・原水・処理水等における TOC と消毒副生成物や有機物指標の関連性を検討した。また、かび臭原因物質 2-メチルイソボルネオール（2-MIB）及びジェオスミンの水質基準値がそれぞれ 0.00001mg/L 以下に強化されたことに伴う水道事業体等の対応、対応上の問題点等を把握するために、日本水道協会水道技術管理者協議会メンバー都市の 51 事業体及び工務常設調査委員会の 16 事業体の合計 67 事業体に対してアンケート調査を実施した。さらに、衛生性・快適性の指標としての微小生物と貯水池におけるかび臭物質実態を調査するために、神戸市水道局の千苺浄水場の原水や、千苺貯水池の様々な水深からの水をサンプリングし、落射型蛍光顕微鏡の G 励起光観察によりピコプランクトンを計数するとともに、2-MIB 濃度を測定した。また、水道原水及び水道水中の有機フッ素化合物の一斉分析法として、安定同位体標識体を内標準物質として用いた SPE-LC/MS/MS 法を検討し、水道原水及び水道水中のパーフルオロカルボン酸（炭素数 4~14）とパーフルオロスルホン酸（炭素数 4, 6, 7, 8 及び 10）を対象とし実態調査を行った。

微生物分科会では、耐塩素性病原微生物に係る研究として、水道水試料の保存を目的に、簡便かつ多量の浄水をろ過・保存するための粒状ハイドロキシアパタイトを用いたケーキろ過装置を構築し、実際的水道水蛇口の水道のろ過性能試験を実施し、蛍光ビーズとホルマリン固定オーシストの添加・回収実験を行い捕集率を評価した。また、保存中のケーキろ過層内での微生物の繁殖の有無を調べた。また、東京都内及び神奈川県内の環境水17検体について、鏡検法と Lamp 法を用いてクリプトスポリジウムとジアルジアの検査を行ない、さらに、これまでに開発したクリプトスポリジウム検出用の Lamp 法を改良し、RT-Lamp 法を開発した。現在、最も有力なノロウイルス代替指標とされているマウスノロウイルスを用いてノロウイルスの塩素消毒耐性について調べるために、PFU 法と PCR 法による定量法を検討するとともに、ノロウイルス VLP と大腸菌ファージの浄水処理性を実験的に比較検討した。また、従属栄養細菌の存在状況を調査した。

消毒副生成物分科会では、トリハロメタン及びハロ酢酸の曝露量評価として、これまでの室内環境中のトリハロメタン濃度に関する知見と食品中のトリハロメタン濃度等の文献値を統合し、トリハロメタンの曝露量の把握を試みた。ハロ酢酸の曝露量に関しては「国民健康・栄養調査報告」を参考に、マーケットバスケット方式により食品由来を実測し、浴室を含む室内環境中濃度についてもインピンジャー型の捕集装置を用いて実測を行った。ハロ酢酸の分析は液液抽出後、メチルエステル化を行い、GC/ECD により定量を行った。また、LC/MS/MS による NDMA の分析方法を整備し、全国31ヶ所の水道における浄水、原水、水源河川、下水処理場放流水やオゾン・活性炭処理を有する国内6浄水場の工程水の濃度実態調査を行った。さらに、市販飲料に含まれる塩素酸イオンや過塩素酸イオン濃度、水道水や次亜塩素酸ナトリウムの保存による塩素酸・過塩素酸の挙動について調査を行った。オゾン処理における臭素酸イオン低減化法として、オゾン注入率制御、溶存

オゾン濃度制御の効果を実施で評価するとともに、ハロ酢酸等その他副生成物についても生成実態及び低減化技術に関する調査検討を行った。

農薬分科会では、全国9水道事業体において、農薬使用量調査等により測定優先度が高いと考えられる農薬類を選定し、実態調査を行った。併せて、4水道事業体から農薬実態調査結果の提供を受け、調査結果及び検出指標値（各農薬類の目標値で除した農薬類検出値の総和；Σ値）の集計を行い、存在状況等についての把握を行った。さらに、予測前年または予測2年前までに利用可能なデータを用い指数平滑化と移動平均法により農薬出荷量を予測し、河川濃度予測シミュレーションを行った。河川濃度予測モデルを用いた感度解析を行い、散布量・散布時期・水田灌漑日程・降雨時期・土壌中分解係数・水中分解係数・土壌有機炭素吸着定数・水溶解度・排水口の高さが河川中農薬濃度に及ぼす影響を評価した。農薬の毒性に関しては、P=S 結合を有する有機リン系農薬であるブタミホスの塩素処理生成物の一つである4-クロロ-5-メチル-2-ニトロフェノールのS9mix存在下で変異原性を有する代謝物の同定を試みた。代謝物の同定・定量は、HPLC 法、LC/MS 法及びGC/MS 法により、変異原性評価は Ames 試験により行った。

水道水質管理分科会では、オーストラリア、カナダ、ヨーロッパ連合（EU）、フランス、ドイツ、イギリス、韓国、マレーシア、オランダ、ニュージーランド、スイス及びアメリカ合衆国のインターネット情報等により、水道水質基準、施設基準、資機材・薬品基準、維持管理基準給水装置に関する基準、消毒に関する規制、残留塩素保持に関する規制、水道水質のサーベイランスシステム、水質検査結果（基準適合状況など）の公表に関する規制、水安全計画の導入状況、水道事業体の公衆衛生面からの格付けの実施状況、水道原水水質基準、水道水源保護区域の指定又は集水域における立地・土地利用規制、流域の水質保全に関する

る経済的インセンティブ、水域への汚濁負荷に関する総量規制、危機管理に関する取り組みについて、情報源情報の収集を中心として検討し、次年度以降の本格的な調査事項を整理した。また、塩素酸の水質基準化前及び薬品基準強化前の状況を把握するため、大規模の水道事業体及び水道用水供給事業体の 22 箇所・22 施設と厚生労働大臣認可以外の中小規模水道事業体 10 箇所・10 施設における次亜塩素酸ナトリウムの購入実態、保管方法等について調査を実施した。

リスク評価分科会では、Medline 及び Toxlin の検索情報と UK COT (2006); US EPA (2005)に加え、OECD (2002)の評価文書の未公表情報も参考とし、近年その環境汚染濃度の上昇が懸念されている PFOA 及び PFOS の毒性情報の収集及び整理を行い、水質基準策定への適用性などを検討した。さらに、nitrobenzene の長期暴露による一般毒性（非発がん性）指標の評価、及び生殖・発生毒性の評価を目的に、ベンチマークドーズ (Benchmark Dose; BMD)を用いて、BMD Lower-bound Confidence Limit (BMDL)の算出を試みた。モデル選択の際には、Akaike's Information Criteria (AIC)の最も小さい値を中心に反応率 10%付近の適合性を目視評価し、95%信頼限界、10%反応率の BMDL を求めた。

C. 研究結果と考察

(1) 無機物質

カルシウム、マグネシウムに関しては、調査対象の半数以上の事業体で水質基準では硬度として基準化されているカルシウム、マグネシウムがそれぞれ個別に定量されていることが分かった。また、日本の水道水はカルシウム、マグネシウムともに低い濃度レベルにあり、調査対象とした水道水のうち飲料水中の濃度が WHO のレポートにある推奨最低値を超えるものは、カルシウムで 20%弱、マグネシウムでは 2%程度であることが明らかとなった。pH については、伏流水や井水を水源としている浄水場では浄水 pH が高いまたは低いことが明らかとなり、特別な処理施設を持たない小規模浄

水場で原水の pH に依存する傾向があると思われた。鉄系凝集剤は PAC と同等の処理性能を有し一定の評価を受けているが、水道用薬品としての規格が定められておらず、市販品は不純物濃度が高く、特にマンガンの濃度は通常想定される注入率において「水道施設の技術的基準を定める省令」の評価基準値を満たさない恐れがあった。鉄系凝集剤が水道用に使用されている諸外国の規格について調査したが、マンガンについてはオランダ KIWA 規格が 2%としている以外は見当たらなかった。今後、日本での規格化の参考のために、諸外国の規格についてさらなる情報収集、蓄積が必要である。水道用粒状活性炭、粉末活性炭からの溶出物に関する試験では特に問題となる溶出は認められなかったが、粉末活性炭で定量下限値以下の鉛の検出事例があったこと、過去に粒状活性炭でヒ素の溶出事例があったことなどを考えると、さらに検討する必要があると考えられた。

レアメタルを含有する製品が生活で多用されるようになってきているが、国内使用量はチタン、マンガン、クロム、ニッケル、ジルコニウム、モリブデン、希土類、アンチモン、コバルト、バナジウム、タングステンなどの順であった。食品と飲料水からの無機物質摂取量調査のための分析法の確認のため標準試料の測定を行った。多くの元素において回収率は 60%~150%の間にあったが、As, Se, B は回収率が 100%から大きく離れていた。次いで、マーケットバスケット法による食品と飲料水からの無機物質摂取量の予備調査を行い、B, Mn, Ni, Cu, Zn, As, Se, Mo, Cd, Sb, Pb, U の 12 元素については、TDI に対する飲料水比が 10%以下であったが、B, Sb は飲料水経路の暴露が TDI の 10%を越えた。食品全体の摂取量については、Mn, Ni, As, Mo の摂取量が TDI よりも大きかった。必須ミネラルの推奨量等に対する摂取量比については、8 元素のうち Ca, Mg, Fe の 3 元素で摂取量が推奨量等を下回った。塩化第二鉄を用いたナノろ過のファウリング実験では、カルシウムが高濃度側の状況での主要因であることが示され、適切な pH 制御である程度抑制可能であることが示された。

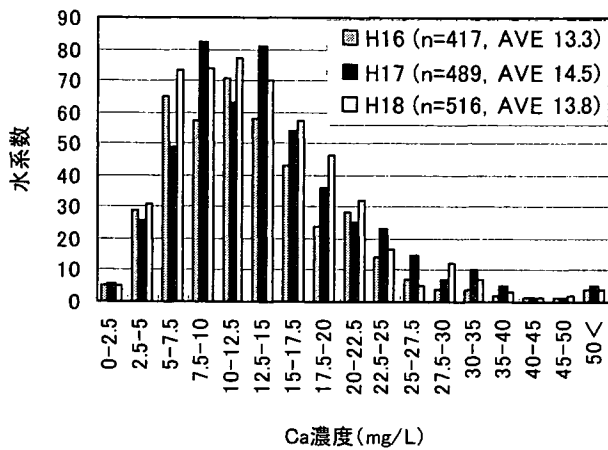


図-1 全国におけるCa濃度の分布

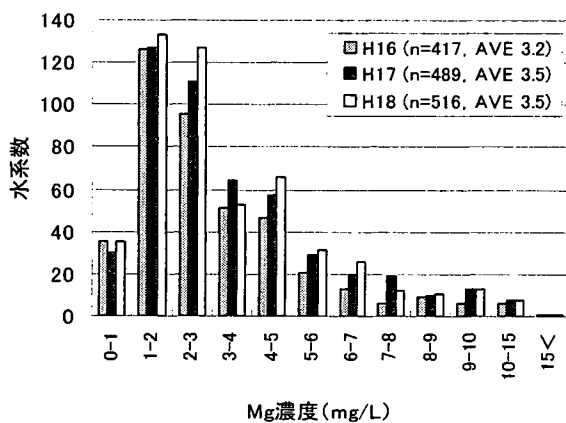


図-2 全国におけるMg濃度の分布

(2) 一般有機物

全国水道事業体に対するアンケートを実施し、67事業体中、58事業体(98の浄水場)の86.6%から回答が得られた。水道原水のTOCの最大値、最小値、平均値、中央値はそれぞれ4.10、0.00、1.21、1.10 mg/L、浄水の最大値、最小値、平均値、中央値はそれぞれ1.80、0.00、0.68、0.60 mg/Lであった。TOCと他の水質指標の相関を見たところ、ハロ酢酸生成能(原水:0.58, 浄水 0.53)、トリハロメタン生成能(原水:0.48, 浄水 0.49)は、過マンガン酸カリウム消費量(原水:0.64, 浄水 0.22)と同レベルの相関係数であった。また、市内給水栓水についてTOCと総トリハロメタンとの相関を調べたところ、通常の浄水処理された配水系統では相関係数が0.65で、信頼限界99%危険率

の上限値で計算した総トリハロメタンの基準値0.1 mg/Lに対応するTOCは3.2 mg/Lとなった(この式からの予測値と実測値の関係を図1に示す)。高度浄水処理された配水系統では相関係数が0.2と低いものの、信頼限界99%危険率の上限値で対応するTOCは2.9 mg/Lとなった。

ピコプランクトンの存在実態調査(神戸市水道局の千苺貯水池及び千苺浄水場原水)で、6~9月にかけて増殖が観察された。特に9月18日には最高濃度 5.9×10^5 cell/mLに達した。ピコプランクトンは表面から水深5 mの範囲において多く分布したが、それよりも水深が深くなると急激に減少することが観察された。4月~6月初旬において原水中の2-MIB濃度も高い状況にあるが、粒状活性炭処理において*Phormidium tenue*の細胞内に含まれる2-MIBは完全には除去されず、粒状活性炭処理水及び浄水中の2-MIBの最高濃度はそれぞれ8及び6 ng/Lであった。かび臭に関するアンケートの結果、かび臭の発生原因としては藍藻類(シアノバクテリア)が67.5%であったが、放線菌も10.0%を占めた。パーフルオロカルボン酸(炭素数4~14)とパーフルオロスルホン酸(炭素数4, 6, 7, 8及び10)の分析法を検討し、定量下限値が0.03~0.2 ng/Lの感度の良い、再現性の高い方法を確立した。冬季の多摩川水系及び利根川水系において、それぞれで最高値としてPFOAで1.2 ng/L, PFOSで22.8 ng/Lが検出された。測定対象物質の総計として、多摩川水系及び利根川水系それぞれで、約4 ng/L, 約50 ng/Lであった。

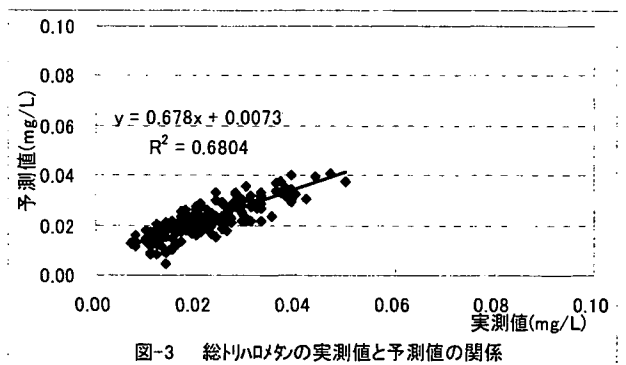


図-3 総トリハロメタンの実測値と予測値の関係

(3) 微生物

クリプトスポリジウム等の耐塩素性病原微生物対策として汚染状況のモニタリングシステムの構築に向けて、使い捨て容器を用いた小型でかつ簡便な粉体(アパタイト)ケーキろ過濃縮装置を開発している。浄水通水試験では40分で20Lがろ過でき、400L程度までのろ過であれば0.2L/min程度以上の流量が確保された。したがって、本法で前日17:00にろ過を開始すれば、翌日9:00には概ね350L程度のろ過が可能であった。また、クリプトスポリジウムオーシストを用いた添加回収実験を行った結果、92~102%の高い回収率が確認された。しかし、現行のアパタイト粉体は粉体由来の濁質が多く、改良の必要性があった。粉体ケーキろ過法により十分なる過量の確保、易収納・保存性、高回収率等が保証されており実用性に富んだ濃縮方法として迅速検査への利用が期待される。また、クリプトスポリジウムのDNA検査法では鋳型DNA抽出時の液量が問題となっていた。逆転写反応によって大幅な感度向上が可能であることが確認されたことから、クリプトスポリジウムを対象とした核酸試験法(RT-Lamp法)の実用化が期待される。LAMP法はジアルジアでの結果を見る限り鏡検法より

も高感度であることが示された。浄水処理工程において大腸菌ファージ Q β (3 log 除去)は、MS2 (2 log 除去)に比べ除去率が高い傾向が示された。その理由として、凝集処理過程での不活化が原因しているものと推察された。また、ノロウイルス VLP の浄水処理過程における除去率は、大腸菌ファージに比べて低い値(1 log 除去)に留まった。マウスノロウイルスはヒトノロウイルスに近縁で培養系が確立されていることから、新たな指標として期待される。今後は、塩素消毒等の実験への利用を考えている。

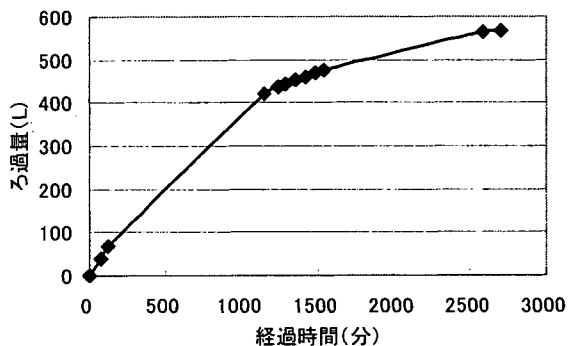


図4 経過時間とろ過量の関係(綾瀬浄水場浄水)

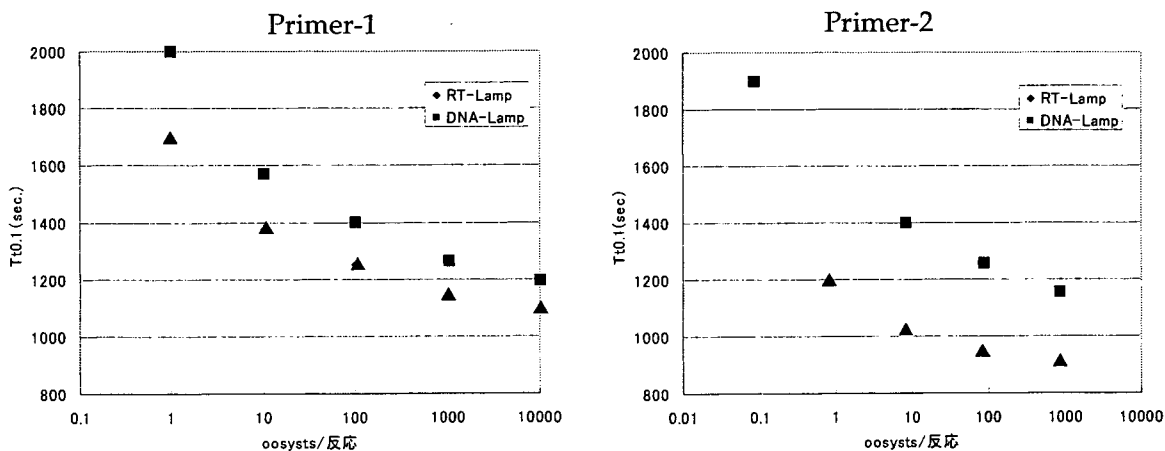


図5. Lamp法とRT-Lampによる検量線の比較

逆転写プライマーの設計により、Lamp法によるDNA増幅効率に差が見られ鋳型DNAの増幅が確認された。Primer-2を使用することでオーシストあたり100~1,000倍量の鋳型DNAが得られているものと算定される。

(4) 消毒副生成物

複数経路を考慮したトリハロメタン及びハロ

酢酸の曝露量評価を行った。その結果、トリハロメタンについては吸入経路の寄与が大きいことを示した。また、この結果、クロロホルムの

飲用寄与率は 17%程度で、それ以外のトリハロメタンでは 20~30%であった。加えて、水道水に由来する暴露量が 80%近いがそれ以上ことを示した。例えば、クロロホルムの総暴露量は 36.2 $\mu\text{g/day}$ であり、そのうち水道水に由来するものは 28.8 $\mu\text{g/day}$ と 80%近くを占めた(ここで水道水に由来するものとは①水道水の直接的な飲用、②水道水を使用して調理した食事の摂取、③入浴時の吸入曝露、④調理時の吸入曝露、⑤居間における吸入曝露、⑥入浴時の経皮曝露の 6 経路を指す)。上述の平均的な曝露シナリオに加えて、プールにおける水泳及び循環式浴槽施設の公衆浴場の利用の影響について評価を行ったところ、これらの利用がクロロホルムなどの曝露形態に大きく影響し、暴露量が数倍に増加する可能性が分かった。これらのことは、トリハロメタンについては、水道水の曝露量を直接飲用のみに限定して考えることは不十分で、直接飲用の 3~5 倍程度の影響があることを考慮し、水道水の水質管理を行うことが必要であることを意味する。

ハロ酢酸については、室内空气中濃度及び食品中濃度の実測を行い、吸入、飲用、経皮膚及び食品経由の評価結果をあわせて、飲用寄与率を試算すると、DCAA で中央値 19%、TCAA で中央値 15%という現行の水質基準算定に際し仮定されている飲用寄与率 20%を下回る結果となった。また、最小値でみるとジクロロ酢酸及びトリクロロ酢酸の飲用寄与率は 10%を下回っており、プロモジクロロ酢酸及びジプロモ酢酸に関しても 20%を下回った。これらの値は試算値であることに注意が必要ではあるが、寄与率の見直しを示唆する結果と取らえることもできる。今後さらにデータの集積を進める必要があるといえる。

水道水の保存による塩素酸・過塩素酸イオン濃度の変化はなかった。水道ボトル水の場合、全ての試料から塩素酸イオンが検出され、その濃度範囲は 25~120 $\mu\text{g/L}$ で一部から比較的高濃度の塩素酸イオンを検出した。この結果は、水道ボトル水は塩素処理後の浄水であるためと考えられた。一方、水道ボトル水以外の場合、塩素酸濃度は、ほとんどの試料で数

$\mu\text{g/L}$ 以下であったが、幾つかの試料でも、水道ボトル水中の塩素酸濃度と同程度の値を示した。この理由は、水道水を利用したか次亜等の塩素化合物を添加したためと考えられた。

日本の主たる水系を含む全国 28ヶ所の水道の NDMA の原水中濃度(平成 19 年秋)は最高 2.6 ng/L 、浄水中濃度は最高 1.6 ng/L で 10^{-5} の生涯発がんリスク相当値よりも低かった。ただし、1月調査では 10 ng/L の箇所も存在した。また、高度処理を行っている浄水場では、オゾン処理により、濃度が上昇する場合と減少する場合があった。この原因は原水の特性によるものと考えられた。さらに、ある種の下水処理放流水等の影響を受ける地域では、原水中あるいはオゾン処理流出水中の濃度が高くなる可能性を示した。

臭素酸イオンの抑制に関するオゾン処理の管理強化事例を調査したところ、臭素酸濃度の低減はほぼ限界に近づきつつあると推定され、さらに臭化物イオン濃度の影響に関する室内実験から、臭素酸イオン濃度の水質基準値が強化された場合には基準の遵守が困難になることが予想された。

クロロホルムや TTHM, プロモジクロロメタンなどを適切に選択し、制御指標とすることで未規制ハロ酢酸やその他の消毒副生成物を概ね低濃度に制御できることを示した。

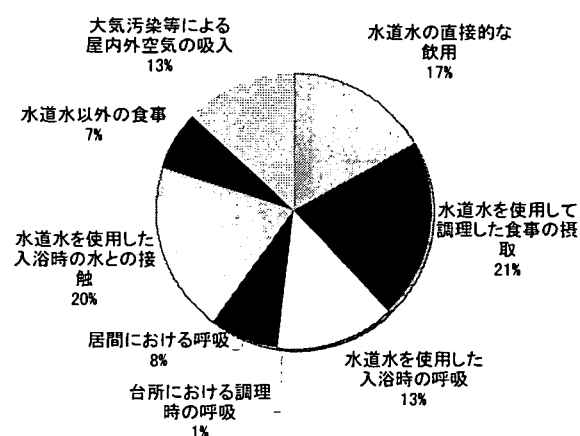


図 6 クロロホルム曝露量の経路別割合

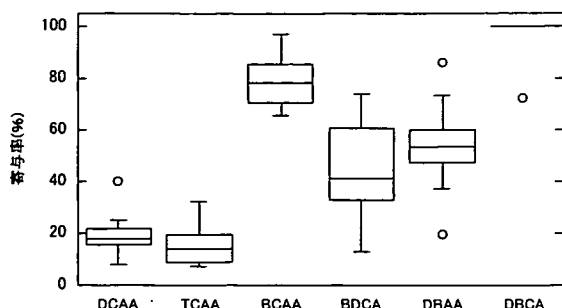


図7 ハロ酢酸の曝露量に占める水道水直接飲用の割合

表1 高度浄水処理工程におけるNDMAの挙動

浄水場	NDMA濃度(ng/L)				浄水場出口水	オゾン注入率 (mg/L)	備考
	原水	オゾン処理流入水	オゾン処理流出水	活性炭流出水			
P1	1.3	1.9	2.6	1.4	1.1	0.38	前塩素4.5 mg/L
P2	1.5	7	3.5	2.5	1.8	1.8	
P3	1.9	2.1	20	1.5		0.79	
P4	<0.8	<0.8	-	<0.8	<0.8	-	採水時O3停止
P5	1	0.8	1.8	<0.8	1	1.2	
P6	0.9	1.2	17	1.3	2.2	0.95	前塩素6.0 mg/L

(5) 農薬

今回の実態調査から全国的に特に注意が必要な農薬は、原水では、検出率が特に高いグループとしてプロモブチド、ベンタゾン、検出率が高く最大個別農薬評価値も特に高いグループとしてフェンチオンスルホキシド、モリネート、検出率が高く個別農薬評価値が高いグループとしてフェニトロチオン、イプロベンホス、メフェナッセット、最大個別農薬評価値が比較的高いグループとしてCNP、フェンチオンが挙げられた。浄水では検出率が特に高いグループとしてベンタゾン、検出率が高く最大個別農薬評価も高いグループとしてプロモブチド、ピロキロン、最大個別農薬評価値が比較的高いグループとしてフェニトロチオンとそのオキソン体、ダイアジノンオキソン体、メフェナッセット、イプロベンホス、プレチラクロールが挙げられた。測定毎の検出指標値(Σ値)に関しては、河川水において1を超えるケースが3回認められ、原水においては0.5を超えるケースが6回認められた。これは過去の調査結果と比べても高い値であった。一方、浄水においては最大で0.06であり、大半の測定において、0.02を下回っていた。水道事業体では農薬検出実態を粉末活性炭注入量に反映させるなど浄水処理工

程における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。

国土交通省、農林水産省等のデータベースを活用し、汎用性の高い表計算ソフトにより、流域別農薬使用量の算出し、併せて簡易GISとして視覚的に表現することも可能となった。相模川、酒匂川に適応し、農薬原体出荷量と実態調査における検出実態と比較したところ、未測定 of 農薬が多く認められ、今年度の本研究の実態調査で検出されていないD-Dが上位にランクしていることから、水系への流出、作物別の使用量を考慮し、測定農薬を検討する必要があることが示された。指数平滑化法や移動平均法を用いて予測年度前年まであるいは2年前までのデータを使用して農薬出荷量を予測し、農薬流出解析モデルによる河川中農薬濃度予測シミュレーションを行ったところ、濃度ランキングも一致していることからモデルの有効性が示された。また、同じ流出モデルを用いて感度解析を行い、殺菌剤インプロチオランは散布時期と落水との期間が短いため流出の影響が大きく、一方、除草剤プレチラクロールは散布時期と落水との期間が長く長期間に渡って流出するため、土壤中分解係数の影響が大きいことが示された。

農薬測定法の開発として新規に対象としたピリダフェンチオン、ピリダフェンチオンオキソン、クロルピリホスメチルでは、固相抽出にGC/MS法あるいはLC/MS法を組み合わせることで測定可能であることが示された。また、ピリダフェンチオン、クロルピリホスは、いずれも塩素処理によって速やかに分解され、主要な塩素処理生成物はオキソン体であると考えられた。さらに、オキソン体のChE活性阻害は非常に強かった。これらの結果から、ピリダフェンチオン及びクロルピリホスメチルは、チオノ型有機リン系農薬と同様に、原体に加えて反応生成物についても挙動を監視し制御の対象にすべきことが明らかとなった。

(6) 水質管理分科会

ニュージーランドにおける水安全計画作成の義務付けと水道事業体の公衆衛生面からの格付けの実施、韓国における四大河川流域の統合的水質管理政策の実施、ドイツにおける水

水道水源保護区域の設定(2004年現在, 設定区域数は13,428ヶ所, 総面積は43,100 km²で, 国土面積の約12%)等が注目に値すると考えられた。特に, 水道水源の保全に関しては, 英国, ドイツ, 韓国, ニュージーランド, スイス等, 多くの国においてわが国に比べてより踏み込んだ規制的措置が取られていることが示された。また, 水道事業体における次亜塩素酸ナト

リウム溶液の購入状況や保管状況, 塩素酸等の濃度の実態を明らかにするため, 全国の水道事業体32ヶ所(大規模22ヶ所, 中小規模10ヶ所)を対象に調査を実施した。次亜塩素酸ナトリウム溶液の管理は, 大規模事業体ではほぼ良好であったが, 中小規模事業体では改善を要する事例がいくつか認められた。

表-2 大規模水道事業体の状況 (2007.6.11~10.24)

n=22 大規模 水道事業体	次亜塩素酸ナトリウム(薬品)					水道水(浄水)					年間 配水量 (m ³ /日 換算)
	購入 サイクル (日間)	有効塩素 (wt%)	塩素酸 (mg/kg)	臭素酸 (mg/kg)	比重	年間 使用量 (L/日 換算)	塩素 注入率 (ppm)	残留塩素 (mg/L)	塩素酸 (mg/L)	臭素酸 (mg/L)	
最大値	60	13.3	8,922	74	1.15	13104.1	4.2	0.97	0.17	0.004	1,181,900
最小値	2	11.0	511	3	1.11	217.0	0.9	0.40	0.01	0.000	30,190
平均値	12	12.2	4,473	19	1.13	3418.4	1.7	0.77	0.08	0.001	274,338

表-3 中小規模水道事業体の状況 (2007.8.24~9.6)

n=10 中小規模 水道事業体	次亜塩素酸ナトリウム(薬品)					水道水(浄水)					年間 配水量 (m ³ /日 換算)
	購入 サイクル (日間)	有効塩素 (wt%)	塩素酸 (mg/kg)	臭素酸 (mg/kg)	比重	年間 使用量 (L/日 換算)	塩素 注入率 計算値 (ppm)	残留塩素 (mg/L)	塩素酸 (mg/L)	臭素酸 (mg/L)	
最大値	280	12.6	25,000	37	—	234.6	29.0	0.52	1.10	0.005	14,458
最小値	14	7.1	3,700	3	—	1.0	0.3	0.02	0.08	0.000	100
平均値	79	10.0	13,910	18	—	49.5	4.9	0.31	0.35	0.001	3,863

(7) リスク評価

環境汚染濃度の上昇が懸念されているPFOA及びPFOSの毒性情報収集・整理を行うとともに, WHOにおいて新たに評価対象物質として選択されたnitrobenzeneについて水道水質基準査定の観点から安全性評価手法を検討した。

PFOA及びPFOSについては多くの毒性情報を入手することが出来た。ラットを用いた反復投与毒性試験では主に肝臓への影響が報告された。両物質共にペルオキシソーム増殖作用を示すことが知られているが, PPAR α 欠損型マウスやサルを用いた試験の結果からPPAR α を介さないメカニズムの関与が示唆さ

れている。生殖発生毒性に関しては, ラット及びマウスにおいて, 外表・内臓奇形, 骨格変異, 児の生存率低下等が報告されている。ラットを用いた発がん性試験では, PFOAは肝臓, 膵臓及び精巣に, PFOSは肝臓及び甲状腺に腫瘍性病変を引き起こすことが明らかになっており, 非遺伝毒性メカニズムが関与していると考えられた。PFOA及びPFOSの毒性には顕著な性差及び種差が見られるが, その要因の一つとして尿中排泄速度の違いを示唆する報告があった。

Nitrobenzeneの毒性評価では, 一般毒性及び生殖発生毒性指標の評価をベンチマークドース(BMD)手法を用いて行った。一般毒性指

標についてはラットを用いた吸入発がん性試験で観察された肝臓病変(塩基性病巣及び海綿状変性)に BMD 手法を適用した結果、BMDL は 1.1 mg/kg/day となり(表4)、用量反応性を加味した無毒性量相当値を得ることができた。生殖発生毒性指標については、最も

感受性の高い影響(ラット: 新生児の体重低値)について NOAEL が求まっていなかったため、連続値に関する BMD モデルを適用した結果、BMDL は 27 mg/kg/day となり、BMD 手法の有用性が示された。

表4 F-344 ラットの非発がん性毒性変化の BMD, BMDL, NOAEL

	雄ラット			雌ラット		
	BMD	BMDL	NOAEL	BMD	BMDL	NOAEL
	(mg/kg BW/day)					
肝						
塩基性病巣	1.44	1.05	0.74	13.1	6.66	3.7
小葉中心性肝肥大	3.66	2.57	0.74			
海綿状変性	2.21	1.11	3.7	18.8	15.5	3.7
腎						
尿細管過形成	17.3	8.35	3.7			

BMD モデルは Weibull を使用。

D. 結論

無機物質:カルシウム, マグネシウム, pH の実態調査, 希少金属類の工業使用に関する調査, 無機物質の食品を含むトータル摂取量に関する予備的検討, ナノろ過における凝集剤と運転性に関する検討を行った。調査対象の半数以上の事業体で水質基準では硬度として測定されているカルシウム, マグネシウムが個別に定量されていることと, それらの濃度は近年の疫学調査で必要と推奨されている値より低いことが分かった。無機物質の摂取量調査に向けて測定方法の予備的検討を行い, カルシウム, マグネシウムの摂取量に対する水道水の寄与が低いことなどが示された。

一般有機物:基準項目 TOC 値の改訂後の情報収集, 衛生性・快適性の指標としての微小生物指標と有機物指標との関連性, 臭気物質やPFOS及びPFOAの実態調査, 要監視項目の見直しに関して検討した。冬季の多摩川水系及び利根川水系において, それぞれで最高値としてPFNAで1.2 ng/L, PFOSで22.8 ng/Lが検出された。測定対象物質の総計として, 多摩川水系及び利根川水系それぞれで, 約4 ng/L, 約50 ng/Lであった。

微生物:耐塩素性病原性微生物に対する水

道水の安全性の担保のため, 小型で多量のろ過能力を有し, オーシスト等の遊離が容易な可溶性粒子を用いたケーキろ過装置を開発し, 実処理場での適用を試みた。クリプトスポリジウムオーシストを用いた添加回収実験で良好な回収率が確認された。検出感度はRT-LAMP法を用いることにより2桁程度向上させうる。ヒトノロウイルスの外套タンパク粒子(VLPs)やマウスノロウイルスを用いた処理実験を開始した。ヒトノロウイルスVLPsを用いた凝集沈澱ろ過実験では, 除去率が1 log程度に留まることが分かり, 同時添加したバクテリオファージの除去率(2 log程度)を下回ることが示された。マウスノロウイルスは, ブラック形成法とPCR法での検出系が確立された。

消毒副生成物:トリハロメタンの曝露量については吸入経路の寄与が大きく, クロロホルムの飲用寄与率試算値は17%程度で, それ以外のトリハロメタンでは20~30%であった。しかし, 水道水に由来する曝露量は80%近いがそれ以上ことを示した。ハロ酢酸に関してはジクロロ酢酸とトリクロロ酢酸では直接飲用の寄与率は20%を下回った。市販飲料の一部から比較的高濃度の塩素酸イオンを検出した。次亜塩素酸ナトリウム溶液の管理は, 大規模事業

体ではほぼ良好であったが、中小規模事業体では改善を要する事例がいくつか認められた。未規制消毒副生成物の実態調査では、NDMA の浄水中濃度(平成 19 年秋)は最高 1.6 ng/L で 10^{-5} の生涯発がんリスク相当値よりも低いことを示した(ただしその後の調査で 10 ng/L の事例がありさらなる調査を要する)。加えて、臭素酸イオンの抑制に関する注入率・溶存オゾン濃度制御併用の効果及びクロロホルムなどを制御指標とした未規制消毒副生成物の制御の有効性を示した。

農薬: 個別の農薬としては、フェンチオン及び酸化物、モリネート、プロモブチド及び脱臭素体、イプロベンホスが Σ 値への寄与が高いことが示され、農薬原体のみならず分解物の監視の必要性が示された。優先検討対象リスト策定の基礎となる農薬使用量に関しては、土地利用実態や集水域情報を活用することで、流域単位の農薬使用量を簡便に算出することが可能となった。また、農薬出荷量などの過去の情報から原水中の農薬濃度を予測することが一定の精度で可能となった。農薬の塩素反応物の毒性に関しては、ピリダフェンチオン、クロロピロホスメチルが塩素処理により容易にオキソン体が生成し、これらは原体より高いコリンエステラーゼ活性阻害を持つことが示された。

水質管理: ニュージーランドにおける水安全計画作成の義務付けと水道事業体の公衆衛生面からの格付けの実施、韓国における四大河川流域の統合的水質管理政策の実施、特にドイツにおける水道水源保護区域の設定など諸外国では水道水源の保全に関しては日本に比べてより踏み込んだ規制的措施が取られていることが示された。

リスク評価: PFOA 及び PFOS については肝毒性及び生殖発生毒性について多くの報告があった。ラット発がん性試験では、肝細胞腺腫に加え、PFOA は膵臓及び精巣、PFOS は甲状腺にも腫瘍性病変を引き起こすことが明らかになっている。Nitrobenzene の毒性評価では、一般毒性及び生殖発生毒性指標の評価をベンチマークドース(BMD)手法を用いて行った。その結果、BMDL はそれぞれ 1.1

mg/kg/day 及び 27 mg/kg/day となり、用量反応性を加味した無毒性量相当値を得ることができた。

今後の研究計画としては、現在の研究課題群—研究分科会体制を継続するとともに、化学物質の摂取量と水道水由来の寄与率の検討方法については分科会間で情報の共有化を図る。無機物質に関してはカルシウム・マグネシウムやカドミウムなどの微量元素の水道における存在状況及び水道由来の摂取量と寄与率、鉄系凝集剤や活性炭に含まれる無機系不純物、希少金属類の環境中放出量について調査を継続する。一般有機物質については消毒副生成物濃度、塩素要求量などの観点から TOC 削減効果について、2-MIB、ジオスミンその他の臭気物質の実態調査や浄水処理性を調査し水質基準強化に伴う課題を整理するとともに、PFOS、PFOA について濃度定量試験法を設定し、実態調査等、毒性・リスク評価を通じて、水質基準改定の必要性を明らかにする。消毒副生成物については、塩素酸・過塩素酸、亜塩素酸、臭素酸、ハロ酢酸、NDMA 等について、飲用寄与率の評価、浄水中実態、分析方法、浄水処理系における変化と制御に関して検討するとともに、国内外で検出されている新規消毒副生成物も合わせて文献等で調査を継続する。また、次亜塩素酸の購入状況や保管状況についても調査を継続する。農薬については、水道原水及び水道水中の農薬濃度の実態調査と農薬の塩素処理反応生成物の毒性評価を継続し、特に地域性を考慮したプライオリティーリストの構築と濃度実態調査を行う。さらに水質管理に関する諸外国の制度と最新のリスク評価のための毒性情報収集及び安全性評価に関して検討を継続する。

E. 健康危険情報

なし

F. 研究発表

1. 論文発表

Shirasaki, N., Matsushita, T., Matsui, Y. and Ohno, K., Effects of reversible and irreversible

membrane fouling on virus removal by a coagulation-microfiltration system, *Journal of Water Supply: Research and Technology-AQUA*, accepted.

Shirasaki, N., Matsushita, T., Matsui, Y., Ohno, K. and Kobuke, M., Virus removal in a hybrid coagulation-microfiltration system—Investigating mechanisms of virus removal by a combination of PCR and PFU methods, *Water Science and Technology: Water Supply*, 7 (5-6), 1-8, 2007.

Quan, D., Muto, T., Yanagubashi, Y., Itoh, S., Echigo, S., Ohkouchi, Y., and Jinno, H.: Exposure assessment of trihalomethanes in households for estimating allocation to drinking water, *Advances in Asian Environmental Engineering*, Vol.6, No.1, pp.43-48, 2007.

Echigo, S., Itoh, S., and Kuwahara, M.: Bromide removal by hydrotalcite-like compounds in a continuous system, *Water Sci. Technol.*, Vol.56, No.11, pp.117-122, 2007.

越後信哉, 矢野雄一, 徐育子, 伊藤禎彦: 溶存有機物を構成する化学構造からのハロ酢酸生成特性, *環境工学研究論文集*, Vol.44, pp.265-273, 2007.

Kosaka K., Asami M., Matsuoka Y., Kamoshita M. and Kunikane S.: Occurrence of perchlorate in drinking water sources of metropolitan area in Japan, *Water Res.*, Vol.41, No. 15, pp. 3474-3482, 2007.

小坂浩司, 浅見真理, 松岡雪子, 鴨志田公洋, 国包章一: 利根川流域の浄水場における過塩素酸イオンの実態調査, *水環境学会誌*, Vol.30, No.7, pp.361-367, 2007.

浅見真理, 小坂浩司, 松岡雪子, 鴨志田公洋: IC/MS/MS法を用いた環境水及び水道水中のハロゲン酸分析法と過塩素酸の検出, *環境化学*, Vol.17, No.3, pp.363-376, 2007.

浅見真理, 小坂浩司, 吉田伸江, 松岡雪子, 国包章一: 水環境, 水道水及び次亜塩素酸ナトリウム溶液における塩素酸と過塩素酸の存

在状況と相互関係, *水道協会雑誌*, Vol.77, No. 4, 2008

Echigo, S., Itoh, S. and Ando R.: Contribution of organic to the genotoxicity of chlorinated water, In *Occurrence, Formation, Health Effects and Control of Disinfection By-Products in Drinking Water* (T. Karanfil, S.W. Krasner, P. Westerhoff, Y. Xie, eds.), ACS Symposium Series, American Chemical Society

大谷真巳, 林田武志, 高橋俊介, 松岡雪, 浅見真理: 水道用次亜塩素酸ナトリウム中の臭素酸に関する調査, *水道協会雑誌*, Vol.76, No.8, pp.14-17, 2007

Matsui, Y., Narita, K., Inoue, T. and Matsushita, T.: Using precise data sets on farming and pesticide properties to verify a diffuse pollution hydrological model for predicting pesticide concentration, *Water Science and Technology*, 56(1), 71-80, 2007.

Ohno, K., Minami, T., Matsui, Y. and Magara, Y.: Effects of chlorine on organophosphorus pesticides adsorbed on activated carbon: Desorption and oxon formation, *Water Research*.

Tahara, M., Kubota, R., Nakazawa, H., Tokunaga, H. and Nishimura, T.: The behaviour and cholinesterase inhibitory activity of fenthion and its products by light and chlorination, *J. Water Suppl. Tech.*

池貝隆広: フガシティモデルを利用した流出農薬プライオリティの評価, *環境情報科学論文集*, 21, 585~590, 2007.

田原麻衣子, 久保田領志, 中澤裕之, 徳永裕司, 西村哲治: 塩素反応生成物を含めた有機リン系農薬のための水道水の安全性評価, *用水と排水*.

Ema M, Fukunishi K, Hirose A, Hirata-Koizumi M, Matsumoto M, Kamata E. Repeated dose and reproductive toxicity of the ultraviolet absorber 2-(3',5'-di-*tert*-butyl-2'-hydroxyphenyl)

- 5-chlorobenzotriazole in rats. *Drug Chem Toxicol*.
- Ema M, Fujii S, Matsumoto M, Hirata-Koizumi M, Hirose A, Kamata E (2008) Two-generation reproductive toxicity study of the rubber accelerator N,N-dicyclohexyl-2-benzothiazolesulfenamide in rats. *Reprod Toxicol*, 25, 21-38.
- Ema M, Fujii S, Matsumoto M, Hirata-Koizumi M Two-generation reproductive toxicity study of the flame retardant hexabromocyclododecane in rats. *Reprod Toxicol*, 25 (3)
- Ema M, Fujii S, Yabe K, Matsumoto M, Hirata-Koizumi M. (2007) Evaluation of reproductive and developmental toxicity of the rubber accelerator N,N-dicyclohexyl-2-benzothiazole sulfenamide in rats. *Congenit Anom Kyoto*, 49, 149-155.
- Ema M, Hara H, Matsumoto M, Hirata-Koizumi M, Hirose A, Kamata E. (2008) Evaluation of developmental neurotoxicity of polysorbate 80 in rats. *Reprod Toxicol* 25, 89-99.
- Hirata-Koizumi M, Watari N, Mukai D, Imai T, Hirose A, Kamata E, Ema M (2007) A 28-day repeated dose toxicity study of ultraviolet absorber 2-(2'-hydroxy-3',5'-di-tert-butylphenyl)benzotriazole in rats, *Drug Chem Toxicol*, 30, 327-341.
- Hirata-Koizumi M, Ogata H, Imai T, Hirose A, Kamata E, Ema M. (2008) A 52-week repeated dose toxicity study of ultraviolet absorber 2-(2'-hydroxy-3',5'-di-tert-butylphenyl) benzotriazole in rats. *Drug Chem Toxicol*, 31, 81-96.
- Hirata-Koizumi M, Matsuyama T, Imai T, Hirose A, Kamata E, Ema M. (2008) Gonadal influence of 2-(2'-hydroxy-3',5'-di-tert-butylphenyl)benzotriazole in rats. *Drug Chem Toxicol*, 31, 115-126.
- Hirata-Koizumi M, Noda A, Hirose A, Kamata E, Ema M. (2008) Reproductive and developmental toxicity screening test of tetrahydrofurfuryl alcohol in rats. *Reprod Toxicol*, 25, 231-238.
- Hirata-Koizumi M, Matsuyama T, Imai T, Hirose A, Kamata E, Ema M. Lack of Gender-related difference in the toxicity of 2-(2'-hydroxy-3',5'-di-tert-butylphenyl) benzotriazole in preweaning rats. *Drug Chem Toxicol*.
- Matsumoto M, Hirata-Koizumi M, Ema M. (2008) Potential adverse effects of phthalic acid esters on human health: a review of recent studies on reproduction. *Regulat Toxicol Pharmacol*, 50, 37-49.
- Matsumoto M, Furuhashi T, Poncipe C, Ema M. Combined repeated dose and reproductive/developmental toxicity screening test of the nitrophenolic herbicide dinoseb, 2-sec-butyl-4,6-dinitrophenol, in rats. *Environ Toxicol*.
- 江馬 眞 (2007) 有機スズ化合物の生殖発生毒性、国立医薬品食品衛生研究所報告. 125, 35-50.
- 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 (2007) OECD 化学物質対策の動向 (第12報) - 第20回、第21回 OECD 高生産量化学物質初期評価会議 (2005年パリ、ワシントン DC)、化学生物総合管理学会雑誌, 3, 43-55.
- 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 (2007) OECD 化学物質対策の動向 (第13報) - 第22回 OECD 高生産量化学物質初期評価会議 (2006年パリ)、国立医薬品食品衛生研究所報告. 125, 101-106.
- 松本真理子、大井恒宏、宮地繁樹、菅谷芳雄、江馬 眞 (2007) OECD 高生産量化学物質点検プログラム - 第23回初期評価会議概要、化学生物総合管理学会誌, 3, 56-65.

松本真理子、山本展裕、宮地繁樹、菅谷芳雄、江馬 眞 (2007) OECD 高生産量化学物質点検プログラム—第 24 回初期評価会議概要, 化学生物総合管理学会誌, 3, 180-189.

2. 学会発表

松田康孝、伊藤雅喜 「ナノろ過膜ファウリングの前処理（凝集沈殿・膜処理）及び原水濃度との関係」 第 58 回全国水道研究発表会；2007.5.23-25; 釧路. 同講演集 P206-207

鹿島田浩二、松井佳彦、大野浩一、伊藤雅喜他 「ナノろ過による浄水処理についての研究 (I)」. 第 58 回全国水道研究発表会；2007.5.23-25; 釧路. 同講演集 P210-211

泉山信司、大内一敏、遠藤卓郎、粉体ろ過によるクリプトスポリジウム濃縮保存法の開発、第 59 回全国水道研究発表会発表予定、平成 20 年仙台市

猪又明子、保坂三継、泉山信司、百田隆祥、大谷喜一郎、遠藤卓郎、環境水中の原虫類検出を目的とした LAMP 法の検討、第 59 回全国水道研究発表会発表予定、平成 20 年仙台市

Shirasaki, N., Matsushita, T., Matsui, Y. and Ohno, K., Effects of reversible and irreversible membrane fouling on virus removal by a coagulation–microfiltration system, Proceedings of IWA International Conference on Particle Separation (PS 2007), Toulouse, France, 9-12 July 2007.

Shirasaki, N., Matsushita, T., Matsui, Y., Ohno, K. and Kobuke, M., Virus removal in a hybrid coagulation–microfiltration system—Investigating mechanisms of virus removal by a combination of PCR and PFU methods, Proceedings of IWA 4th International Conference on Membranes for Water and Wastewater Treatment, Harrogate, UK, 13-16 May 2007.

Matsushita, T., Virus removal by a coagulation–microfiltration hybrid system, Proceedings of International Symposium for Clean Process and Energy, Daegu, Korea, 9-10 March 2007.

小坂浩司、浅見真理、仲里茂彦、二本木秀治、及川富士雄、松岡雪子、鴨志田公洋、国包章一: 浄水プロセス及び次亜塩素酸ナトリウム溶液中の過塩素酸イオンの実態調査, 全国水道研究発表会, pp.546-547, 2007.5.

石橋健二、東田恭明、藤田卓也、東出大輔、森元俊夫、伊佐治知明、木村謙治、浅見真理、安藤正典、イオンクロマトグラフ法による塩素酸及び亜塩素酸の分析方法の検討, 全国水道研究発表会, pp.576-577, 2007.5.

宮田雅典、西村哲治、浅見真理、菊池修一、宇田川富男、天羽孝志、渡部祐介、奥野雅司、橋渡健児、安恒実、安藤正典: ハロ酢酸類 3 物質の LC–MS 法による分析方法の検討, 全国水道研究発表会, pp. 582-583, 2007.5.

Asami, M., Kosaka, K., Kunikane, S., Bromate, chlorate, chlorite and perchlorate in sodium hypochlorite solution used for water supply, Asian Pacific Regional Exhibition, International Water Association, Perth, 2007.10.

越後信哉、伊藤禎彦、丹羽明彦、笹山航、古澤彰太: 臭素酸イオンの制御法としてのイオン交換処理の評価, 全国水道研究発表会, pp.232-233, 2007.5.

Ohno, K., Minami, T. and Matsui, Y.: Reaction of chlorine with organophosphorus pesticides adsorbed on activated carbon surface, *Proc. 5th IWA specialised conference on assessment & control of micropollutants/ hazardous substances in water*, Frankfurt/Main, Germany, p.551, 2007.

Matsui, Y., Ohno, K., Tsuchida, Y., Matsushita, T. and Narita, K.: Creation of agricultural practice data sets by exponential smoothing and Monte Carlo methods for the prediction of pesticide concentrations in river water, *Proc.*

11th International Conference on Diffuse Pollution, Belo Horizonte, Brazil, PAP0093 in CD-ROM, 2007.

Ohno, K., Shiratori, Y., Minami, T., Matsui, Y. and Matsushita, T.: Desorption and oxon formation of organophosphorus pesticides once adsorbed on activated carbon surface as a result of contact with chlorine, *Proc. 2nd IWA-ASPIRE Asia-Pacific Regional Group Conference & Exhibition*, Perth, Australia, #038, 2007.

Matsui, Y., Tsuchida, Y., Narita, K., Ohno, K. and Matsushita, T.: Predicting pesticides concentrations in a large river basin by exponential smoothing and Monte-Carlo methods, *Proc. 2nd IWA-ASPIRE Asia-Pacific Regional Group Conference & Exhibition*, Perth, Australia, #106, 2007.

Nishimura, T., Tahara, M., Kubota, R., Shimizu, K., Akiba, M. and Tokunaga, H.: The relationship of structures and cholinesterase inhibitory activities of the activated form of organophosphorous pesticides, *The LXth International Meeting on Cholinesterases*, 2007.

Nishimura, T., Tahara, M., Kubota, R., Shimizu, K., Magara, Y. and Tokunaga, H.: Behavior of organo-phosphorus pesticides after chlorination treatment effect of its products on cholinesterase activity, *Proc. 2nd IWA-ASPIRE Asia-Pacific Regional Group Conference & Exhibition*, Perth, Australia, #009, 2007.

Kamata, M., Aizawa, T., Asami, M. and Magara, Y.: The priority list for selecting pesticide on water quality management, *Proc. 2nd IWA-ASPIRE Asia-Pacific Regional Group Conference & Exhibition*, Perth, Australia, #222, 2007.

田原麻衣子, 久保田領志, 中澤裕之, 徳永祐司, 西村哲治: 塩素暴露によるチオノ型有機リン系農薬の反応生成物を含めた評価の水質管理への応用, 第58回全国水道研究発表会講演集, 長崎, pp.534~535, 2007.

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回全国水道研究発表会講演集, 長崎, pp.538~539, 2007.

田原麻衣子, 久保田領志, 中澤裕之, 徳永祐司, 西村哲治: 水質管理に向けたChE阻害物質の総合的評価の考え方について, 第44回全国衛生化学技術協議会年会講演集, pp.149~150, 2007.

八木健太, 津田 宏, 佐田真貴子, 佐藤和男: 相模川・酒匂川の水道原水における農薬類検出状況の特徴, 日本水道協会関東地方支部水質研究発表会講演集, 東京, pp.13~15, 2007.

田原麻衣子, 久保田領志, 中澤裕之, 徳永祐司, 西村哲治: ピリダフェンチオンの塩素処理によるオキソン体の生成. 日本薬学会第128年会, 2008.

津田宏, 佐藤和男, 相模川及び酒匂川水系における水道水源中の農薬検出傾向の特徴, 第42回日本水環境学会年会講演集, 名古屋, 2008.

鎌田素之, 徳田源, 相澤貴子, 池貝隆宏: 簡易GISを用いた監視農薬の選定手法に関する検討, 第42回日本水環境学会年会講演集, 名古屋, 2008.

Ema M, Matsuyama T, Matsumoto M, Hirata-Koizumi M, Hirose A and Kamata E (2007). Toxicity of ultraviolet absorber 2-(2'-hydroxy-3',5'-di-tert-butylphenyl)benzotriazole (HDBB) in pre-weaning rats. *International Congress of Toxicology XI*

Ema M, Fujii S, Hirata-Koizumi M, Matsumoto M, Hirose A. and Kamata E. (2007). Evaluation of two-generation reproductive toxicity of a vulcanization accelerator N,N-dicyclohexyl-2-benzothiazolesulfenamide (DCBS) in rats. 2007 EUROTOX

Ema M, Matsumoto M, Furuhashi T and

Poncipe C (2007). Screening study for repeated dose and reproductive and developmental toxicity of the nitrophenolic herbicide dinoseb in rats. SETAC North America 28th Annual Meeting (11/11-15, Milwaukee)

Ema M, Fujii S, Hirata-Koizumi M, Matsumoto M. (2008) Evaluation of two-generation reproductive toxicity of flame retardant hexabromocyclododecane (HBCD) in rats. The 47th Annual Meeting of the Society of Toxicology.

Harada T, Kimura E, Hirose A, Kamata E. and Ema M. (2007). Reproductive/developmental screening toxicity of 4-aminophenol in rats. 2007 EUROTOX

Hirata-Koizumi M, Hasegawa R, Hirose A, Ema M (2008) Proposal for safety exposure level of nitrobenzene through foods and drinking water. The 47th Annual Meeting of the Society of Toxicology.

Hirose A, Kato H, Ise R, Oneda S, Hirata-Koizumi M, Ihara T, Ema M. (2008) Early response in gene expression profiles in monkey embryos following maternal exposure to thalidomide during the susceptible period for malformations. The 47th Annual Meeting of the Society of Toxicology.

Matsuyama T, Hirata-Koizumi M, Imai T, Hirose A, Kamata E. and Ema M. (2007). Toxicity of ultraviolet absorber 2-(2'-hydroxy-3',5'-di-*tert*-butylphenyl)benzotriazole (HDBB) in castrated rats. International Congress of Toxicology XI

江馬 眞 (2007) 神経発生毒性試験、平成19年度後期「化学・生物総合管理の再教育講座」化学物質リスク評価の基礎2、お茶の水女子大学 10月28日

江馬 眞 (2007) 生殖発生毒性試験、平成19年度後期「化学・生物総合管理の再教育講座」化学物質リスク評価の基礎2、お茶の水女子大学 10月28日

江馬 眞、原 洋明、松本真理子、広瀬明彦、鎌田栄一 (2007) ポリソルベート80のラットにおける発生神経毒性、第34回日本トキシコロジー学会学術集会 (6月27日、東京)

江馬 眞 (2007) OECD Developmental Neurotoxicity Studyガイドライン・ドラフトのその後、第47回日本先天異常学会学術集会 (7月7日、名古屋)

江馬 眞、伊藤義彦、松本真理子、平田睦子、広瀬明彦、鎌田栄一 (2007) 加硫促進剤 N,N-dicyclohexyl-2-benzothiazolesulfenamide のラットにおける反復/生殖発生毒性併合試験、第47回日本先天異常学会学術集会 (7月8日、名古屋)

平田睦子、渡 修明、向井大輔、今井俊夫、広瀬明彦、鎌田栄一、江馬 眞 (2007) 2-(2'-hydroxy-3',5'-di-*tert*-butylphenyl)benzotriazole (HDBB)の28日間反復投与毒性試験、第34回日本トキシコロジー学会学術集会 (6月28日、東京)

平田睦子、松山隆史、今井俊夫、松本真理子、広瀬明彦、鎌田栄一、江馬 眞 (2007) 紫外線吸収剤 2-(2'-hydroxy-3',5'-di-*tert*-butylphenyl)benzotriazole (HDBB)を離乳前ラットに投与したときの影響、第47回日本先天異常学会学術集会 (7月8日、名古屋)

G. 知的財産権の出願・登録状況

1. 特許取得
出願中 (特許出願 2006-211340)
2. 実用新案登録
(該当なし)
3. その他
(該当なし)

飲料水の水質リスク管理に関する総合的研究

—— 無機物質分科会 ——

主任研究者 松井 佳彦 北海道大学大学院 工学研究科 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

水質基準、WHO 飲料水水質ガイドラインの改訂項目の候補となる物質の実態調査、今後問題となる可能性のある物質の使用状態、現状調査、水道用資機材からの溶出等に関連する調査、研究を行った。

カルシウム、マグネシウムに関しては日本の水道水はどちらの濃度とも低いレベルにあり、調査対象とした水道水のうち飲料水中の濃度が WHO のレポートにある推奨最低値を超えるものは、カルシウムで 20%弱、マグネシウムでは 2%程度であることが明らかとなった。

pH の分布は伏流水、井水を水源としている浄水場で値が高 pH または低 pH となることが明らかとなり、特別な処理施設を持たない小規模浄水場で原水の pH に依存する傾向があることが推定された。

鉄系凝集剤は欧米諸国では一般的に使用されており、日本でも将来的なアルミニウムの基準強化を想定すると規格化が望まれる。今後、日本での規格化の参考のために、諸外国の規格についてさらなる情報収集、蓄積が必要である。

水道用粒状活性炭、粉末活性炭からの溶出物に関する試験では特に問題となる溶出は認められなかったが、粉末活性炭で定量下限値以下の鉛の検出事例があったこと、過去に粒状活性炭でヒ素の溶出事例があったことなどを考えると、溶出試験の方法、活性炭使用時の洗浄方法等についてさらに検討する必要があると考えられる。

レアメタルを含有する製品が生活で多用されるようになっているが、各レアメタルの持つ毒性や性質の情報が十分でないため、人体への影響、環境汚染因子となる可能性などは不透明な部分がある。今後の調査では毒性や性質等の情報収集、測定方法の確立、国内使用量等を勘案した調査研究の推進が必要であると考えられる。

マーケットバスケット法による食品と飲料水からの無機物質摂取量の予備調査を行った。今回の結果では年度ごとの摂取量の差が大きい、加工食品からの摂取量の差が大きいことが示唆された。今度の調査では地域差だけでなく年度ごとの差についても検討を行い、水質基準設定に活用できる評価を行うことが重要である。

塩化第二鉄を用いたナノろ過のファウリング実験では、カルシウムが高濃度側の状況での主要因であることが示され、適切な pH 制御である程度抑制可能であることが示された。