

200 ppt のアクリロニトリル水溶液を精製水で調製し、5 mL に対しジクロロメタン 2 mL を加えて、室温で 5 分間振とうした。10 分間静置後、水層を除去し、ジクロロメタン層に無水硫酸ナトリウムを加えて脱水した。ジクロロメタンで 2 mL に定容し、試験溶液とした。GC/MS の SIM モードで測定した結果、回収率は 103.1% (n=3 の RSD 3.1%) であった。これらの結果から、水試料からのアクリロニトリル抽出には固相抽出法ではなく、液-液抽出法が適していることが明らかとなった。溶媒抽出後の試料を窒素ガス気流下で乾固直前まで濃縮し、再びジクロロメタンで定容した結果、アクリロニトリルのピーク面積は 1/5 まで減少した。したがって、アクリロニトリルの固相抽出の際において、通気乾燥および濃縮の工程で気散していた可能性が示唆された。

0.5~25 ppb の濃度範囲における回収検量線は相関係数 0.9994 の良好な直線性が得られ、それぞれの濃度における回収率は 80% 以上であった。

1 pp~200 ppt の段階的な濃度のアクリロニトリル水溶液を精製水で調製し、10 mL に対しジクロロメタンを 1 mL または 2 mL 加えて、室温で 5 分間振とうした。10 分間静置後、水層を除去し、ジクロロメタン層に無水硫酸ナトリウムを加えて脱水した。ジクロロメタンで定容し、ジクロロメタンの抽出量が 1 mL または 2 mL、それぞれについて 0.5, 1, 2, 5, 10, 20, 50 ppb の試験溶液を調製した。GC/MS の SIM モードで測定した結果、0.5, 1, 2 ppb の濃度では検出限界値以下となり、回収できなかった。5, 10, 20, 50 ppb においてはジクロロメタン 1 mL (10 倍濃縮) の場合ではそれぞれ 32.5, 41.8, 40.1, 40.7% と 40% 前後、2 mL (5 倍濃縮) の場合ではそれぞれ 62.9, 75.1, 63.0, 60.8% と 60% 前後の回収率が得られた。これらの結果から、試料水 5 mL に対してジクロロメタン 1 mL とする 5 倍濃縮が最適であることが明らかとなった。

③河川水におけるアクリロニトリルの回収率

河川水 5 mL に対する溶媒抽出による添加回収率を求めた結果、0.1, 0.2, 0.5, 1 ppt (5 倍濃縮時、0.5, 1, 2.5, 5 ppb) においてそれぞれ 83.6% (n=3 の RSD 28.1%), 66.9% (5.4%), 116.1% (7.6%), 102.8% (0.7%) であった。この結果から、低濃度では変動係数が大きい、本検討試料水では妨害ピークは認められず、0.1 ppt 程度の濃度においては十分定量可能であることが示唆された。

(6) 塩素によるアクリロニトリルの反応性

40 ppb のアクリロニトリル水溶液を精製水で調製し、次亜塩素酸ナトリウムを初期遊離塩素濃度が 1 ppm となるように添加し、30, 60, 120, 240 分後におけるアクリロニトリルの残存率を測定した。反応終了時に 5 mL を正確に分取し、アスコルビン酸ナトリウムを 50 mg/L に添加して塩素反応を停止させ、上述の比率でジクロロメタンによる溶媒抽出を行った。塩素反応 240 分後に、アクリロニトリルは 94.3% (RSD 3.5%) が残存していた。

(7) アクリロニトリルの活性炭による吸着性

40 ppb のアクリロニトリル水溶液を精製水で調製し、粉末活性炭を 20 mg/L 添加し、30 分および 16 時間における粉末活性炭への吸着率を測定した。ろ紙でろ過し、ろ液から上述の比率でジクロロメタンによる溶媒抽出を行った。ろ液からの回収率は 30 分後で 99.5% (RSD 1.7%)、

16 時間後で 103.1% (RSD 4.2%) であり、粉末活性炭への吸着性は低いことが明らかとなった。

C-3 キャリブレーションロックングデータベース法を利用した GC/MS による分析

(1) はじめに

迅速で簡便に多成分を対象として一斉にモニタリングすることができれば、化学物質による水質汚染の発生を早期に把握でき、かつ、水質汚染による影響を最小限にとどめる予防的措置をとることができる。さらに、常時の水質監視と水質管理に有益な情報が提供されるものである。

GC/MS による検出および定量は、標準物質の測定結果に基づく検量線を作成して行うのが通例である。しかしながら、測定対象成分が極めて多岐に渡る場合あるいは目的成分が不明確な測定などでは、検量線を使用する手法（以下検量線法）には限界があると考えられる。そこで近年では、検量線法を補う手法としてデータベースを用いたスクリーニング的測定法（以下データベース法）が考案されている。

キャリブレーションロックングデータベース法 (Calibration Locking Database Method, 以下 CLD 法) は、データベースに登録された化合物情報を利用して検出と定量を行うデータベース法の一つである。本手法では、一度データベース化された化合物であれば、日常的な測定において標準物質の測定を省略することが可能である。検量線法に比べて定量精度は劣るものの、多数の化合物の迅速・簡便な測定が期待され、河川水の総括的なモニタリングあるいは緊急時の迅速な原因物質の特定などに特に有効と考えられる。ここでは、CLD 法の技術的背景と模擬試料および実試料を用いた評価例について、ソフトの一例を参考に概略する。

(2) 技術的背景

GC/MS 測定において、化合物の検出は保持時間、定量は特徴的なイオンのマスプロファイルもしくは SIM クロマトグラムのシグナル強度（ピーク面積または高さ、以下 MS 応答）に基づき行われているのは良く知られている。保持時間および MS 応答は化合物に特徴的である一方で、測定条件、測定に使用する装置、測定日などが異なると変動するのが通例となっており、普遍性に乏しい。このため、試料測定に際して、標準物質も同条件・同装置で測定し、これらの情報を把握しなければならない。しかしながら、同時に測定する成分が多くなると、保持時間および MS 応答の浮動性は、検量線の更新などの分析メソッドのメンテナンスを困難とする。また、多数の標準品もしくは標準溶液の入手、管理、および調製に関する労力も無視しえなくなる。さらに、測定対象とする成分およびその数は標準品入手の可否に制約される。

最近の GC/MS の普及にともない、そのハードウェアおよびソフトウェアも一段と進歩し、例えばシステムとしての安定性は大きく向上している。このような背景を受けて、いくつかの前提条件のもと、従来は困難と考えられていた保持時間ならびに MS 応答を固定化する方法が実用化されつつある。両情報の固定化ができれば、これらを化合物ごとにデータベース化することが可能となる。以下に CLD 法における保持時間および MS 応答の固定化手法について述べる。

①保持時間

保持時間のデータベース化については、以前より直鎖炭化水素との相対保持値を利用するリテンションインデックスがよく知られている。これに対して、最近では絶対保持時間を常に同じにできるリテンションタイムロッキング (Retention Time Locking, 以下 RTL) が考案されている。両者には一長一短があるが、CLD 法では RTL を採用している。

RTL では、カラムの仕様および昇温条件を一定にすれば、装置または測定時期が異なっても保持時間を固定できるとされている。

i) 任意の条件下で適当な化合物 (基準化合物) についてカラムヘッド圧と保持時間の関係 (較正曲線) を作成する。

ii) オリジナルメソッドを作成する。具体的は、較正曲線から基準化合物の保持時間が設定したい値になるようなカラムヘッド圧を算出する。

iii) オリジナルメソッドを用いて基準化合物を測定した結果、保持時間が所定の値からずれていた場合には、較正曲線を用いて保持時間の差分をカラムヘッド圧に換算する。これに基づきカラムヘッド圧を変更することにより、基準化合物の保持時間を元に戻す。この操作を、「再ロック」と称している。

4 台の GC/MS 装置に、それぞれロット番号の異なる同一製品コード番号のカラムを取り付けて測定した結果、装置間における保持時間の相対的変動 (最大値と最小値の差を平均値で除して 100 をかけた値) は、ほとんどの成分で 0.3% 程度もしくはそれ以下と、一致再現性が高いことが示された。ただし、保持時間の早い化学物質の場合は、他の成分に比べて一致精度が若干劣っていた。また、保持時間の遅い化学物質についても同様の傾向が認められた。これは、保持時間が基準化合物 (本検討ではクロルピリホスメチルを使用した) から離れた成分については、原理的にその一致精度が若干劣るとされている RTL の性質を裏書するものと思われる。なお、メタミドホス、アセフェートあるいはトリクロルホンのように、カラム液相への溶解度が低く、その結果、該当カラムにおける分離能が悪いとされる化学物質もこの傾向を助長していると推定された。

このような結果は、保持時間が基準化合物から大きく離れている成分あるいはカラム液相への溶解度が低く、その結果、該当カラムにおける分離能が悪いとされる成分には若干注意を要するものの、ほとんどの成分については保持時間が良好に一致しており、RTL の実効性を示唆しているものと考えられる。

②MS 応答

MS 応答の絶対値の固定化は現段階では困難と考えられる。そこで、CLD 法では適当な内部標準物質 (以下内標) との相対シグナル強度 (以下 MS 相対応答) の固定化を行っている。MS 相対応答の固定化に際して重要な点は、測定に使用する MS 間におけるマススペクトルパターン (以下 MS スペクトル) のイオン強度バランスの均一性を維持することである。内標と測定対象成分では定量に使用するイオン (以下定量イオン) が異なっているため、MS 間で MS スペクトルのバランスが変動すると、内標と測定対象成分との濃度比が同じであっても MS 相対

応答に差が生じる。一般的に行われているオートチューニングではイオン強度のバランス調整はそれほど厳密ではなく、装置個々の特徴が出る場合が多い。そこで、CLD 法ではイオン強度バランスをより厳密に調整する DFTPP チューニングアルゴリズム、例えば EPA メソッド 625 を用いて行っている。

DFTPP チューニングにおけるベースイオン m/z 69 に対する各イオンの強度比設定と、10 台の装置でのチューニング結果では、各イオン強度比の相対標準偏差 (RSD) は、 m/z 50 が 8%、 m/z 131 が 3%、 m/z 219 が 4%、 m/z 414 が 4%、および m/z 502 が 5%であった。各イオンにおける強度比の RSD は概して 5%程度と推定される。 m/z 50 に関しては m/z 69 に対する強度比が 1%と小さく、RSD を大きくしたものである。CLD 法で使用している内標と DFTPP チューニングの組み合わせでは、少なくともこの強度比の RSD 分が内標を用いた検量線法に由来する RSD に上乗せされることになる。したがって、CLD 法は、通常の内標法による検量線法に比べて精度上不利になるのは原理的に不可避である。

例えば、CLD 法では内標として複数の重水素ラベル化多環系炭化水素 (例えば、ナフタレン d_8 、アセナフテン d_{10} 、フェナントレン d_{10} 、フルオランテン d_{10} 、およびクリセン d_{12} など) を用い、各化合物に対してどの内標化合物を割り当てるかは原則的に保持時間の近さに基づいて行っている。CLD 法を用いて 1 週間おきに測定した農薬 0.5ppm 溶液の定量結果では、標準溶液中における分解が認められた農薬を除き、調製濃度に対して 0.5 から 1.5 倍の範囲内に収まっており、より高い精度が必要な場合には検出された成分を検量線法によって再測定するなどの方策を講ずることにより、おおまかな定量には適用可能であると考えられた。

③GC/MS システム状態の把握と管理

原理的には上記 2 項目で CLD 法は成立する。しかしながら、MS 相対応答に関しては GC/MS システムの状態についても考慮する必要がある。これは、システムの汚染あるいは劣化 (以下劣化等) による影響の受け方が化合物ごとに差があるためである。なかには内標と挙動が大きく異なるものもあり、劣化がはなはだしい場合には通常は検出に十分な化合物量が存在しながらピークとして出現しないこともある。さらに、システム中劣化等のある箇所の違いによって影響を受ける化合物は異なり、劣化等の度合いによっても影響の出方にも差がある。日常的には標準品測定を行わない CLD 法ではこのような状態の差を補正する術が無いので、GC/MS システム状態の把握と一定レベルの維持が重要となる。

上記の目的のために、CLD 法ではシステムを評価するための試料 (以下クライテリアサンプル) とその測定結果の自動評価プログラムを策定している。GC/MS システムで、試料が通過していくのは、上流側から、注入口、カラムの入口、カラムの出口、および検出器である。クライテリアサンプルは、原則的にこれらの各箇所についてその劣化等に鋭敏な化合物を混合したものである。「良好な」システムによるクライテリアサンプルの各化合物の MS 相対応答および保持時間をデータベース化しておき、これと測定に使用するシステムで得られた結果を比較することにより、そのシステム状態を把握することができる。また、劣化箇所と影響を受ける化合物の関係から、メンテナンスを必要とする箇所の推定が容易になっている。注入口およびカ

ラムの出口側についてはMS 相対強度 (定量値), カラムの入口側に関してはピークのテーリングファクター, MS についてはMS スペクトル (イオン強度比) によりチェックする。

(3) CLD 法による測定手順と試料による評価例

CLD 法の具体的な操作手順と模擬試料ならびに実試料を用いた同手法の評価例について述べる。

①操作手順

データベース化に使用した技術はSIMにも適用可能であるが, SIMでは一度に測定できる化合物数に制約がある関係で, CLD法における測定は基本的にTIMにより行う。手法の性格上測定手順は単純で, ①クライテリアサンプルの測定と結果の評価, ②試料溶液への内標添加, ③試料測定, ④自動/マニュアル解析, である。

ソフトウェアによる自動解析は, データベース中の保持時間の前後0.5分程度の範囲で特徴的なイオンのマスクロマトグラムを抽出し, 当該保持時間にピークが存在する場合にはやはりデータベース中の相対強度比と照合して定量を行う。この解析の流れは通常の検量線法と同様である。これをデータベースに登録された全化合物について順次行う。データベース中の化合物数あるいはデータ処理装置 (コンピュータ) の性能にもよるが, 500化合物程度でおおよそ2~3分で終了する。

GC/MS分析, 特に微量分析では, マニュアル解析によるマスクロマトグラムからのデータ確認が重要である。多数の化合物を扱うCLD法では, 化合物ごとにマスクロマトグラムを簡単に表示できるようなデータブラウザ機能が不可欠と考えられる。

②擬似試料による評価

河川水1Lをジクロロメタンで抽出し1mLとする(1000倍濃縮)。これに水道水で規制されている農薬(トリクロロホンとクロロニトロフェンアミノ体を除く67成分, 68ピーク)を1ppm(河川水として1ppb)になるように添加して試験溶液とした。これに内標を1ppmになるように添加して, クライテリアサンプルでシステム状態を確認したGC/MSにより測定した結果を評価した。

保持時間については, いずれの化合物も相対差分, ($| \text{データベースの保持時間} - \text{測定値} | / \text{データベースの保持時間}) \times 100$ が0.5%以下となり, 検出は容易であった。また, ここで使用しているソフトウェアでは検出したピークについてMSスペクトルなどからその「確度」を判定する機能を有しているが, 添加した化合物で保持時間が重なる4成分(モリネート/イソプロカルブ, ペンシクロン/トリフルラリン, シメトリン/トルクロホスメチル, ジチオピル/フェニトロチオン)を除いてライブラリサーチのヒット率(表中MS Hit: 最高99)が70以上となっており, 確認も容易であった。

定量値に関しては, キャプタンの0.83ppm以外は添加濃度の1ppmを超えていた。先の標準溶液の測定結果に比べて総じて高めに出る成分が多いが, これはマトリックス効果(試料由来成分が共存すると見かけ上感度が上昇する現象)によるものと思われる。いずれの成分も添加濃度の0.5から2倍の範囲内に収まっており, スクリーニング分析としては十分な実用性を有

していること、およびより高精度の定量が必要な場合の検量線法による補完は先に標準溶液の項で述べた通りである。

③実試料による評価例

福岡市内で黄砂飛来時期に採取した雨水を試料として適切に前処理を行い、粒子態および溶存態についてそれぞれ CLD 法により検出された多環系炭化水素について、検量線法 (SIM) により定量を行い、CLD 法の定量値と比較した。

溶存態に関しては、傾きが 0.91、相関係数が 0.97 となり両手法が非常に良く一致していた。これに対して、粒子態では相関係数は 0.91 であったが傾きが 0.78 となり、総じて CLD 法の定量値が検量線法の 1.3 倍程度 ($1/0.78$) であった。

現時点でこの原因は不明であるが、フェナントレンでの両手法の乖離が大きくこれの影響が一因であると考えられた。しかしながら、模擬試料による評価結果と同様、両結果ともスクリーニング分析には十分な実用性を示唆していた。

(4) キャリブレーションロックングデータベース法に関する参考資料

1) 有害化学物質一斉分析用ガスクロマトグラフィー/質量分析法データベースの開発, 門上希和夫, 棚田京子, 種田克行, 中川勝博, 分析化学, 53, pp581-588, 2004

2) Novel gas chromatography-mass spectrometry database for automatic identification and quantification of micropollutants, Kiwao Kadokami, Kyoko Tanada, Katsuyuki Taneda, Katsuhiro Nakagawa, J.Chromatogr A, 1089 pp219-226, 2005

3) Rapid diagnosis of drug intoxication using novel NAGINATATM gas chromatography/mass spectrometry software, Tomomi Ishida, Keiko Kudo, Satoko Naka, Kenichi Toubou, Toshimichi Noguchi and Noriaki Ikeda, Rapid Commun. Mass Spectrom, 21, pp3129-3138, 2007

4) GC/MS による水源水質の迅速スクリーニング手法の開発, 小野由紀子, 小川義謙, 中島晋也, 山上 仰, 瀧川義澄, 第 58 回全国水道研究発表会講演集, pp634-635, 2007

5) データベースを用いた有機化合物の迅速な定性分析手法の検討, 園山雅幸, 石原正彦, 第 58 回全国水道研究発表会講演集, pp636-637, 2007

6) GC/MS データベース法による網羅的迅速検出および定量法の開発, 山上 仰, 小野由紀子, 小川義謙, 中島晋也, 東房健一, 中 聡子, 瀧川義澄, 門上希和夫, 陣矢大助, 第 16 回環境化学討論会講演要旨集, pp268-269, 2007

7) GC/MS 一斉分析データベースによる汚染物質の解析, 鎌田憲光, 伊藤朋子, 高橋 悟, 佐々木和明, 齊藤憲光, 第 16 回環境化学討論会講演要旨集, pp626-627, 2007

8) GC/MS 一斉分析データベースを用いた土壌/底質中の化学物質包括分析, 宮崎照美, 園田裕一, 中原世志樹, 門上希和夫, 陣矢大助, 東房健一, 第 16 回環境化学討論会講演要旨集, pp632-633, 2007

9) 連続スターバー抽出と GC-MS データベースによる水中農薬のスクリーニング, 落合伸夫, 笹本喜久男, 石塚雄貴, 神田広興, 小野由紀子, 中島晋也, 小川義謙, 山上 仰, 陣矢大助, 門上希和夫, 第 10 回日本水環境学会シンポジウム講演集, pp114-115, 2007

D. 考察

未規制物質でリスクが上位の化学物質の中からアクリロニトリル、1, 2-エポキシプロパンおよび ϵ -カプロラクタムの3物質を選択し、分析方法の検討を行った。

LC/MSにおいては3物質のピークは検出できなかった。よって、水試料からの測定はGC/MSを用いて検討した。

アクリロニトリルのジクロロメタン溶液を、DB-WAX MS 溶融シリカキャピラリーカラム(0.320 mm i.d.×30 m, 0.50 μ m)を用い、注入口温度 240°C, スプリットレス注入モード, 昇温プログラムを 30°C (5 min)→10°C/min→160°C, イオン源温度 230°C, キャリヤーガス流量 1.2 mL/min の条件で, GC/MS に注入した結果, 保持時間 5.7 分に分子イオン 53 のピークが検出できた。0.1~20 ppb の濃度範囲では, 相関係数 0.999 の良好な直線性がある検量線が作成できた。アクリロニトリルで最適だった注入口温度, 注入モード, 昇温プログラム, イオン源温度, キャリヤーガス流量の条件を用い, 1, 2-エポキシプロパンおよび ϵ -カプロラクタムを, DB-5 および DB-WAX の2種類のカラムを用い, マスクロマトグラフ法で解析した結果, DB-5 を用いた場合には1, 2-エポキシプロパンは分子イオン 58, ϵ -カプロラクタムは 113 のピークが検出された。しかし, ϵ -カプロラクタムは, 感度もピーク形状も悪く, テーリングが認められた。DB-WAX を用いた場合には, 両物質ともピークを同定することができなかった。

水試料からの固相抽出法を検討するため, 固相カートリッジ Oasis HLB Plus, Sep-Pak Plus PS-2 および Sep-Pak Plus C18 (Waters)を用いて, 0.2 ppb (500 倍濃縮時, 検出下限値の 10 倍) と 2 ppb (500 倍濃縮時, 検出下限値の 10 倍) の試料水を精製水で調製し, 500 mL から 500 倍濃縮を行ったが, いずれの固相カートリッジを用いても, 2 ppb の試料水を濃縮した抽出液からはアクリロニトリルのピークを検出することはできなかった。

通水後の固相カートリッジの通気乾燥時間を, 空気による 15 分間とし, 固相カートリッジ吸着成分をアセトンで抽出して, 窒素ガス気流下での濃縮を行わずに無水硫酸ナトリウムによる脱水後, 脱離溶液をそのまま試験溶液とした。固相カートリッジ Oasis HLB Plus および Bond Elut Jr. (VARIAN)を用い, 試料溶液濃度が 10 ppb となるように想定して濃縮を行ったが, アクリロニトリルのピークは検出できなかった。

200 ppt のアクリロニトリル水溶液を精製水で調製し, 5 mL に対しジクロロメタン 2 mL を加えて, 室温で 5 分間振とうした抽出溶液の回収率は, 103.1% (n=3 の RSD 3.1%) となり, 水試料からのアクリロニトリル抽出には固相抽出法ではなく, 液-液抽出法が適していることが明らかとなった。溶媒抽出後の試料を窒素ガス気流下で濃縮した結果, アクリロニトリルのピーク面積は 1/5 まで減少した。したがって, アクリロニトリルの固相抽出の際において, 通気乾燥および濃縮の工程で気散していた可能性が示唆された。

0.5~25 ppb の濃度範囲における回収検量線は相関係数 0.9994 の良好な直線性が得られ, それぞれの濃度における回収率は 80%以上であった。

1 pp~200 ppt の段階的な濃度のアクリロニトリル水溶液を精製水で調製し, 10 mL に対しジ

クロロメタンを1 mLまたは2 mL加えて、室温で5分間振とうした結果、ジクロロメタン1 mL (10倍濃縮) の場合では40%前後、2 mL (5倍濃縮) の場合では60%前後の回収率となり、抽出条件は試料水5 mLに対してジクロロメタン1 mLとする5倍濃縮が最適であることが明らかとなった。

河川水5 mLに対する溶媒抽出による添加回収率は、0.1~1 ppt (5倍濃縮時、0.5~5 ppb) の範囲では、低濃度では変動係数が大きいですが、本検討試料水では妨害ピークは認められず、0.1 ppt程度の濃度においては十分定量可能であることが示唆された。

40 ppbのアクリロニトリル精製水水溶液に対する初期遊離塩素濃度1 ppmの影響を検討した結果、塩素反応240分後においてもアクリロニトリルは94.3% (RSD 3.5%) が残存していた。

40 ppbのアクリロニトリル精製水水溶液に粉末活性炭を20 mg/L添加した場合の吸着性を検討した結果、16時間後であっても水溶液からの回収率は103.1% (RSD 4.2%) であり、粉末活性炭への吸着性は低いことが明らかとなった。

迅速で簡便に多成分を対象として一斉にモニタリングすることができれば、化学物質による水質汚染の発生を早期に把握でき、かつ、水質汚染による影響を最小限にとどめる予防的措置をとることができる。さらに、常時の水質監視と水質管理に有益な情報が提供されるものである。

GC/MSによる検出および定量は、標準物質の測定結果に基づく検量線を作成して行うのが通例である。しかしながら、測定対象成分が極めて多岐に渡る場合あるいは目的成分が不明確な測定などでは、検量線法には限界があると考えられる。そこで近年では、検量線法を補う手法としてデータベースを用いたスクリーニング的測定法が考案されている。

データベースを利用したGC/MSによる測定法は、多成分分析あるいは測定対象成分が不明確な分析などにおいて、検量線法を補完する手法である。データベースに登録されている化合物情報に基づき検出と定量を行うCLD法では、日常的な測定には標準品測定を行わないため、極めて迅速・簡単に不特定多数成分の分析が可能である。本手法について、模擬試料などを用いて評価したところ、スクリーニング目的的分析としては十分な実用性を有していることが示唆されている。同法により定量結果が概して高めに出る点については、「見落とし」の可能性を小さくできるメリットもあることから、測定目的を考慮するとそれほど不利な要素ではないとも考えられる。本文中にも述べたように、より精度の高い定量結果が必要な場合には検出された成分について検量線法で再分析することを前提とすれば、十分に有用であると考えられる。逆にときおり認められる低めに出る成分に関しては、その原因も含めて今後検討の余地を残す。また、前処理とも関わる問題ではあるが、検出下限および適用範囲についても今後の重要課題である。検出下限に関しては、大容量注入との組み合わせなどへの発展性が期待できる。

E. 結論

水道水において健康危機被害を生じる恐れのある有害化学物質について、物質名、CAS番号、化学式、分子量、沸点、水溶解度、LogPow、水分解性、光分解性、行政区分、(劇毒物指定等)、

用途および予想汚染源、ADI/TDI、発がん性、ヒトへの曝露における健康影響濃度、体内動態（標的臓器）、中毒症状、中毒に対する処置、水道における処理性（凝集沈殿、ろ過、塩素処理、オゾン処理、粉末活性炭処理、粒状活性炭処理、生物活性炭処理、膜ろ過）検出法、簡易検出法等の項目について国内外の文献、情報を調べ、データベース構築をすすめた。

未規制物質でリスクが上位の化学物質の中からアクリロニトリル、1, 2-エポキシプロパンおよび ϵ -カプロラクタムの3物質を選択し、分析方法の検討を行った結果、LC/MSにおいては3物質のピークは検出できず、LC/MSによる分析は困難であるとの結論を得た。

水試料からの測定をGC/MSにより検討した結果、1, 2-エポキシプロパンは分子イオン58, ϵ -カプロラクタム113のピークが検出されが、感度やピーク形状が悪く、テーリングも見られた。また、 ϵ -カプロラクタムのピークは検出できなかった。したがって、1, 2-エポキシプロパンおよび ϵ -カプロラクタムについては、水に溶解した状態ではモニタリングすることは困難であることがわかった。

アクリロニトリルは、ジクロロメタン標準溶液の0.1~20 ppb範囲で相関係数0.999の良好な直線性が得られ、GC/MSによる分析条件を設定することができた。GC/MSで分析するためには、水試料から抽出する必要があるが、固相抽出をすることはできなかった。

液-液抽出法により抽出することができるが示された。最終検液濃度0.5~25 ppbにおいて回収検量線を作成した結果、それぞれの点が回収率80%以上で相関係数0.9994の良好な直線性が得られた。抽出条件は最終濃度0.5~25 ppbにおいて回収率が80%以上となった精製水5 mLおよびジクロロメタン1 mLによる5倍濃縮が最適であった。

河川水において、最終検液濃度を0.5から5 ppbの範囲では、低濃度においてはばらつきが大きい、河川水中の妨害ピークとも重ならず、十分定量可能であることがわかった。

また、遊離塩素濃度に対する反応性は低く、粉末活性炭に対する吸着性も低いことが明らかとなった。この結果は、浄水処理工程において除去が難しいことを示唆している。

迅速で簡便に多成分を対象として一斉にモニタリングすることができれば、化学物質による水質汚染の発生を早期に把握でき、かつ、水質汚染による影響を最小限にとどめる予防的措置をとることができる。さらに、常時の水質監視と水質管理に有益な情報が提供される。GC/MSによる検出および定量は、標準物質の測定結果に基づく検量線を作成して行うのが通例である。しかしながら、測定対象成分が極めて多岐に渡る場合あるいは目的成分が不明確な測定などでは、検量線法には限界があると考えられる。そこで近年では、検量線法を補う手法としてデータベースを用いたスクリーニング的測定法が考案されている。この方法は、データベースに登録された化合物情報を利用して検出と定量を行うデータベース法の一つである。一度データベース化された化合物であれば、日常的な測定において標準物質の測定を省略することが可能であることが示されている。検量線法に比べて定量精度は劣るものの、多数の化合物の迅速・簡便な測定が期待され、河川水の総括的なモニタリングあるいは緊急時の迅速な原因物質の特定などに特に有効と考えられる。

F. 健康危険情報

該当なし

G. 研究発表

1. 論文発表

1)Maiko Tahara, Reiji Kubota, Hiroyuki Nakazawa, Hiroshi Tokunaga and Tetsuji Nishimura. (2008) The behaviour and cholinesterase inhibitory activity of fenthion and its products by light and chlorination, Journal of Water Supply: Research and Technology - AQUA, 57(3), 143-151.

2)田原麻衣子, 久保田領志, 中澤裕之, 徳永裕司, 西村哲治. (2008) 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, 用水と廃水, 50 (6), 39-4

2. 学会発表

1)田原麻衣子, 田中美穂, 久保田領志, 中澤裕之, 徳永祐司, 西村哲治. (2008) 塩素反応試料における挙動解析と生理作用への影響評価の重要性, 第59回全国水道研究発表会講演集, 574-575.

2)西村哲治. (2008) 水道水質管理におけるバイオアッセイの適用—有機リン系農薬のための水道水の安全性評価手法—, 第14回バイオアッセイ研究会・日本環境毒性学会合同研究発表会講演集, 3-6.

3)田原麻衣子, 久保田領志, 中澤裕之, 西村哲治. (2008) 利根川水系(中川)における河川水中コリンエステラーゼ阻害物質の存在実態, 第45回全国衛生化学技術協議会年会, 141-142.

H. 知的財産権の出願・登録状況(予定を含む)

1. 特許取得

なし.

2. 実用新案登録

なし.

3. その他

なし.

地理情報システムを活用した飲料水危機管理手法の開発

研究代表者	秋葉	道宏
研究分担者	山田	俊郎
研究協力者	増田	貴則

地理情報システムを活用した飲料水危機管理手法の開発

研究代表者： 秋葉 道宏 国立保健医療科学院水道工学部長
研究分担者： 山田 俊郎 国立保健医療科学院水道工学部主任研究官
研究協力者： 増田 貴則 鳥取大学大学院工学研究科社会基盤工学専攻准教授

A. 研究目的

水道水に起因する健康被害の未然防止のために WHO により水安全計画の考え方が提唱されている。水安全計画の策定では、水源から給水栓までの水道システム全体を通して各過程での危険要因の同定と発生し得る危険の重要性評価に基づき、水道事業者がそれらリスク要因を重点的かつ総合的に管理する計画を立てることが求められている。飲料水の汚染リスク要因の抽出・把握には、過去の健康危機事例を分析するとともに、水源流域の汚染リスク要因について抽出・把握する必要があると考えられるが、リスク要因情報が一元的に管理されていないことから、水道事業者や小規模水道管理者自らがリスクを主体的に評価することは技術面・費用面で困難と思われる。

そこで、水道および小規模水道を対象に、水道水源流域におけるリスク要因に関する情報を一元的に管理する手段として地理情報システム (GIS) を用いることとし、一般に利用可能な統計やデータベース、電話帳、地図データ等を情報源として、病原微生物による飲料水汚染リスク要因の把握と地図上への可視化を行う手法を開発することを目的とした研究を行ってきた。

平成 19 年度に行った研究では、病原微生物による水道原水汚染の汚染状況を示す水質情報やその汚染要因となる流域情報に対して、全国規模で調査されており、かつ、一般に手に入りやすい統計やデータベース、地図データに関する情報の整理を行った。また、鳥取県をモデル地域とし、GIS の同心円解析機能を用いて水道、飲用井戸等の小規模水道の飲料原水の病原微生物汚染要因の情報抽出と可視化手法を検討した。

本年度の研究では、他地域への適用の容易性、操作の簡便性を維持しつつ、GIS を用いて新たに水源上流の汚染要因を抽出し、可視化する方法を開発する。また、平成 19 年度に開発したシステムに、飲料水健康危機データベースから抽出した事例を結合し、施設の周辺地域の汚染要因の可視化や情報抽出を行い、危機事例地域の状況を分析するとともに、汚染源に関する詳細な数値情報を得られる地域を対象とした場合の汚染要因抽出結果の評価精度についても検討を加える。これらを通じて、簡便に汚染要因情報を抽出するための情報と手法を明らかにするとともに、汚染源情報の空間精度や集計精度が汚染要因の抽出に与える影響を明らかにすることを目的としている。

B. 研究方法

水道水源流域における汚染リスク要因に関する情報を一元的に管理する手段として地理情報システム（GIS）を用いることを前提とし、水道水源流域の汚染状況、汚染の発生源（生活排水処理施設、畜舎等）の情報のうち、特に病原微生物による水道原水汚染の要因把握を GIS 上で行う際に利用可能と考えられる統計情報やデータベース、地図データ等に関する情報（メタデータ）を昨年度に引き続き再度、収集・整理するとともに、GIS で活用する際の取り込み方法や元情報の問題点について整理した。さらに、これらの情報と水道地図情報を元に、GIS の空間解析機能を組み合わせて病原微生物による水源汚染要因を抽出する手法を開発するとともに、個々の汚染要因に関して汚染危険度の高い水源を抽出し地図上に可視化する手法を開発した。

また、元情報の空間データ精度が汚染要因抽出結果に与える影響を検討するために、同一汚染要因種（例えば浄化槽など）に関して、空間精度の異なる複数の情報を準備し、開発した手法により抽出される水源汚染要因の比較を行った。

これに加え、汚染要因抽出結果の評価精度について検討を行うために、飲料水健康危機管理実施要領に基づく事故事例の情報や水道原水の汚染状況、公共用水域の汚染状況の情報と汚染要因抽出結果とを結合し、危機発生事例や原水水質と水源周辺地域の汚染要因との関係の分析を行った。

C. 結果及び考察

C-1 飲料水危機管理手法としての地理情報システム活用に関する情報源情報の調査

病原微生物による原水汚染リスク要因の把握を GIS 上で行う際に利用可能と考えられる統計やデータベースに関する情報（メタデータ）と GIS への取り込み方法を整理した。汎用的な利用、簡易な手続きで利用することを念頭に、全国規模で調査されており、かつ、一般に入手しやすく、地理情報として GIS に取り込み・整備が可能なものを対象に整理を行った。本研究で情報源整理の対象とした原水汚染リスク要因を表 1 に示す。病原微生物に対する過去の汚染事例、水源管理事例を参考に、水源の汚染要因を整理したものである。病原微生物の排出源としては、主に家庭排水の処理施設である下水道終末処理場、農業集落排水処理施設、し尿処理施設、コミュニティプラント、家庭用し尿浄化槽などがある。また、牛・豚などの家畜飼育施設、病院、動物園、ペットショップなども排出源として注目する必要がある（金子 2006）。それに加えて、過去に感染事例のあるキャンプ場やプール、災害発生後の濁水の影響も考慮し、これらの要因を水源汚染要因とした。対象とした原水汚染リスク要因は、「し尿起因」、「畜産・動物起因」、「医療起因」、「レクリエーション起因」、「災害起因」に「水量・水質の実測値」を加えた 6 項目 30 種類以上となった。これら要因を「点源」と「面源」に分類するとともに、水源に常に影響を及ぼすと思われる要因を顕在要因とし、天災や管理不十分による事故など様々な起因が重なって水源に影響を及ぼすと思われる要因を潜在要因として分類している。

また、これらの情報の元データの状態でこれらを GIS に取り込む方法、取り込んだ後のフィーチャー種類、属性値、元データの更新頻度、価格などの情報を整理した。整理した情報を表 2 に示す。

整理の結果、これらの情報の更新頻度は毎年～5 年に 1 回程度であり、流域の状況に応じてデータを差し替える必要があると考えられた。また、大半の情報がポイント情報であり、住所を入力しアドレスマッチングを行うことで容易に GIS に取り込むことができることが判明した。ただし、下水処理場や集落排水処理施設などについては、一般に利用可能な統計情報では住所不明であったため、施設の位置を特定し GIS に取り込むことに多大な時間を要した。これらについては統計作成段階での改善が必要と考えられた。浄化槽やし尿汲取り槽、畜産頭数については、集計単位が市町村または農業集落単位と粗く、原水汚染リスク要因の判定に用いるには空間精度の面で不十分と考えられる。牧場やサファリパークについては、本来は面源であるのに、面的なデータ整備がなされていないためポイント情報として取り扱わざるを得ない。また、本システムの中心的な情報となる水道地図や水道統計については、これら双方の情報の整合性に欠けており、情報の整合をとるために水道台帳を確認する労力が必要であった。各都道府県が水道地図を作成するに当たっては、厚生労働省から「平成 17 年度版水道地図作成要領」が示されているが、GIS やその他データベースソフトなどとの連携利用を前提としたものになっていないため、紙地図上に ID 番号を附すこととなっていない。そのため地図上の水源と水道統計や水道台帳のデータとの間で相互参照ができないという問題点がある。水道地図と水道統計の整備に際しては、連携を図る必要があると考えられた。

表 1 対象とした原水汚染リスク要因
(GIS に取り込み可能なデータが存在するリスク要因)

要因種別		要因			
顕在要因	点源	し尿起因	△下水処理場 ○し尿処理施設	△農業集落排水処理施設 ○コミュニティプラント ×CSO	△漁業集落排水処理施設 ×CSO
		畜産・動物起因	△家畜、畜産農家	×畜産糞尿処理施設	○動物園
		レクリエーション起因	○温泉、公衆浴場	○プール	
	面源	し尿起因	△浄化槽	×し尿・濃縮汚泥還元農地	
		畜産・動物起因	△牧場	×家畜糞尿還元農地	△サファリパーク
		レクリエーション起因	△キャンプ場		
潜在要因	点源	し尿起因	○下水汚泥処理施設・コンポスト施設	○し尿等堆肥化施設	×汚水・汚泥中継施設
		畜産・動物起因	○ペットショップ		
		医療起因	○病院 ○動物病院・獣医師・家畜保健衛生所	○診療所 ○医療研究機関、病原微生物を扱う研究施設等	○保健所・衛生検査所 ×感染性廃棄物処理・処分施設
	面源	し尿起因	△し尿汲み取り槽	×汚水・汚泥中継施設	
		災害起因	○地滑り地域・地滑り危険地域	○活断層	
		実測値情報 (汚染要因抽出、精度評価に 用いることができる)	○公共用水域水質 ×簡易水道原水水質	○河川水質 ×飲用井戸水質	△上水道原水水質 ×飲料水健康危機情報
	△下水道等放流水水質、放流量	×集落排水処理施設放流水水質	○雨量・流量		
	△上水取水量	△工業用水・発電用水取水量	△農業用水取水量		
	○ダム・貯水池・湖沼	×ため池	×堰・頭首工		

○: データソースあり, △: データソースはあるが、場所の特定に問題のあるもの, ×: 一般に利用可能なデータソースが存在しない。

表2 元データ・GISへの取り込み方法に関する情報

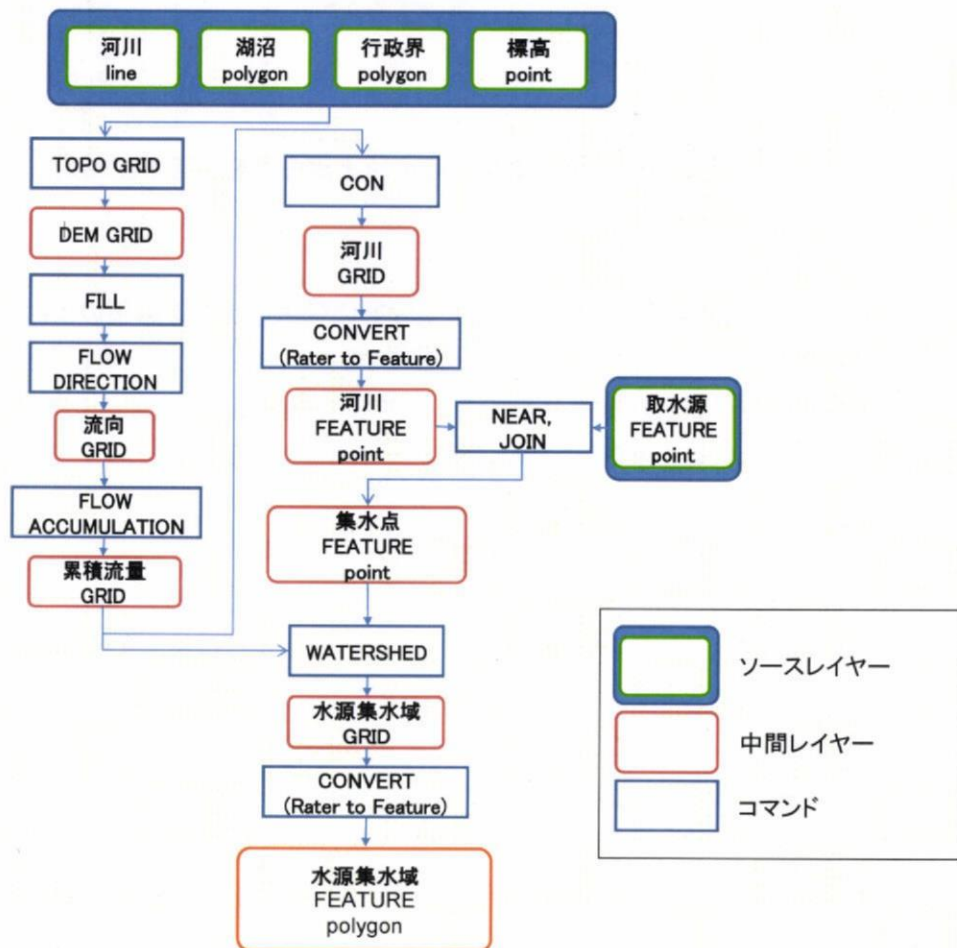
要因種別	要因	元データの情報			GISへの収録方法・収録後の情報			課題・注意点
		データ状態	集計単位 収録単位	更新頻度 (最新)	GISへ収録する ためのステップ	フィーチャー 種類	使用する属性 汚染要因に利用する属性	
し尿 起因	下水処理場	デジタル	施設別	毎年更新 2005	住所調査→住所入力 →アドレスマッチング	ポイント	処理方式、処理人口、 処理水量、放流先	住所が収録されていないため、要件 所調査
	農業集落排水処理施設	紙	施設別	毎年更新	地区名入力 →アドレスマッチング	ポイント	処理方式、人口、戸数	・地区名までしか収録されていないた め、マッチング率が低い ・実績値ではなく計画人口である
	漁業集落排水処理施設	紙	施設別	毎年更新	地区名入力 →アドレスマッチング	ポイント	処理方式、計画人口	・地区名までしか収録されていないた め、マッチング率が低い ・実績値ではなく計画人口である
	し尿処理施設 ・コミュニティプラント	紙	施設別	毎年更新	データ・住所入力 →アドレスマッチング	ポイント	処理方式、規模(能力)	
	浄化槽	デジタル	市町村別	毎年更新 2006	市町村地区図と結合	ポリゴン	人口	空間精度が粗い
	下水汚泥コンポスト施設	紙	施設別	更新なし 2001	データ・住所入力 →アドレスマッチング	ポイント	処理方式、施設能力、 実績値	42施設が掲載。全国の全施設を網羅 しているか不明
	し尿等堆肥化施設	紙	施設別	毎年更新	データ・住所入力 →アドレスマッチング	ポイント	処理内容、規模(能力)	
畜産・動物 起因	し尿汲み取り槽	デジタル	市町村別	毎年更新 2006	市町村地区図と結合	ポリゴン	人口	空間精度が粗い
	家畜、畜産農家	デジタル	農業集落	5年更新 2000、05	地区データ +テーブル結合	ポリゴン	家畜種別頭羽数	秘匿が問題、空間精度が粗い
	牧場	紙	施設別	毎年更新	住所入力 →アドレスマッチング	ポイント	無し	面的データでない
	動物園、サファリパーク	紙	施設別	毎年更新	住所入力 →アドレスマッチング	ポイント	無し	面的データでない
	ペットショップ等	紙	施設別	毎年更新	住所入力 →アドレスマッチング	ポイント	無し	
医療 起因	病院	紙	施設別	2年に1回 2003-2004 が最終	データ・住所入力 →アドレスマッチング	ポイント	診療科目、病床数	絶版、情報が更新されない
	診療所	紙	施設別	毎年更新	住所入力 →アドレスマッチング	ポイント	無し	
	保健所・衛生検査所	紙	施設別	毎年更新	住所入力 →アドレスマッチング	ポイント	無し	
	動物病院・獣医師・ 家畜保健衛生所	紙	施設別	毎年更新	住所入力 →アドレスマッチング	ポイント	無し	
レクリエーション 起因	医療研究機関、 病原微生物を扱う研究施設 等	紙	施設別	2年に1回 2003-2004 が最終	データ・住所入力 →アドレスマッチング	ポイント	無し	絶版、情報が更新されない
	温泉・公衆浴場	紙	施設別	毎年更新	住所入力 →アドレスマッチング	ポイント	無し	
	プール	紙	施設別	毎年更新	住所入力 →アドレスマッチング	ポイント	無し	
災害 要因	キャンプ場	紙	施設別	毎年更新	住所入力 →アドレスマッチング	ポイント	無し	
	地滑り危険地域	デジタル	地すべり 地形別	行われてい ない	ネットからダウンロード →そのまま取込可能 →インターセクト +テーブル結合	移動体:ポリゴン 滑降層:ライン 移動方向:ポイン ト	移動体の 輪郭構造、構造区分	・情報を利用した時はその旨を明示 ・学術論文等が出版・発行された場合 は、別添のコピーを送付 ・コトバンクファイルの属性を管理 ・未刊行地域あり
	活断層	デジタル	セグメント 別	2002	そのまま取込可能 →インターセクト	ライン	無し	位置情報のみ
実測値	地形・傾斜	デジタル	1km メッシュ別	2005	そのまま取込可能 →インターセクト	1kmメッシュ ポリゴン	地形分類、表層地質、 起伏量、標高	
	水道原水水質	デジタル	水源別	毎年更新 2006	位置不明なため 収録困難	ポイント	水質	位置不明なため 収録困難
	公共用水域水質	デジタル	測定点別	1971-2001	そのまま利用可能 +テーブル結合	ポイント	水質	1990-2001年版は52500円
水道	下水道等放流水質、 放流量	デジタル	施設別	毎年更新 2005	住所調査→住所入力 →アドレスマッチング →テーブル結合	ポイント	放流水水質・放流量 (大腸菌群数等)	住所が収録されていないため、要件 所調査
	上水道、簡易水道、専用 水道、その他小規模水 道(飲料水供給施設等) の取水位置、給水区域	紙地図 or デジタル	施設別	5年更新 2006	デジタル +属性手入力	取水:ポイント 給水区:ポリゴン	水道区分、水源の種類	・紙地図を参照している ・地図上に目印が振られていない ・水源と水道区域の対応が不明瞭

C-2 GISを用いた飲料水水源汚染要因の抽出手法および可視化手法の検討

(1) 水源上流解析による汚染要因の抽出・可視化

鳥取県を対象に、前項で述べた各汚染リスク要因に関する情報をGISに取り込み、各要因を別々のレイヤーとして整備し、汚染リスク要因を抽出・視覚化するためのGISデータベースを作成した。これら一般に利用可能な汚染源情報と水道地図情報を元に、GISの同心円解析機能(バッファリング機能)、および、上流解析機能にオーバーレイ解析機能を組み合わせて病原微生物による水源汚染要因を抽出する手法を開発するとともに、個々の汚染要因に関して汚染危険度の高い水源を抽出し地図上に可視化する手法を検討した。

昨年度までに、同心円解析機能を適用し水源から同心円距離内に存在する汚染要因を抽出する機能を開発し終えていたため、本年度は、上流解析の機能を検討し、水源上流域の汚染要因を抽出する手法を開発した。水源上流解析の手続きフローを図1に示す。図1に示す手順で、河川、湖沼、標高、取水源のレイヤーより、一連の手続きを経て水源上流の集水域を同定することができた。さらに、GISの標準的機能であるオーバーレイ解析機能を用いて、同定した集水域内の汚染リスク要因を抽出することができた。



鳥取県をモデル地域として本手法を適用した結果、地域内の上水道、簡易水道、専用水道および飲用井戸等 508 箇所の水源のうち、表流水と伏流水を水源とする 92 の水源に対して上流解析が行われ、各水源上流域の汚染要因を抽出することができた。

図2に鳥取県東部のある水源に対して上流解析を行った結果を示す。この解析機能を実行すると、その結果、例えば、ある水源に対して水源上流に存在する汚染源すべてを地図上に示し、汚染源の情報を確認することができる。また、水源毎にさらされている汚染リスク要因の種類とその要因の大きさを地図および表形式で示すことができる。

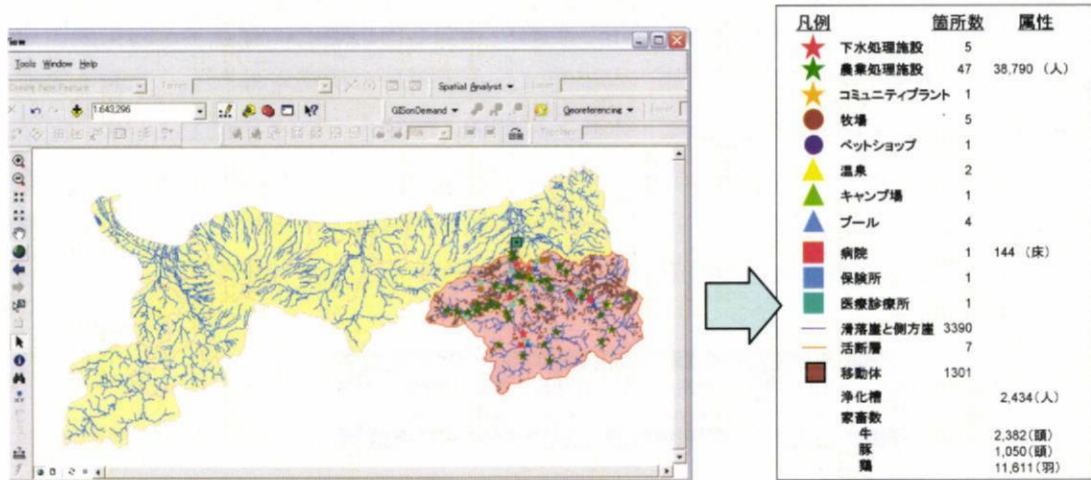


図2 上流解析機能による水源上流の汚染要因抽出結果

C-3 情報の空間精度や集計精度が汚染要因抽出結果に与える影響の検討

浄化槽など生活排水処理施設や畜産、水源位置などについて、一般に利用可能な情報だけでなく各都道府県が独自形式として所有するような詳細情報のように空間精度や集計精度の異なる複数の情報を準備し、情報の精度が汚染要因抽出結果に与える影響を検討した。

(1) 浄化槽分布の推定精度が与える影響についての検討

一般に利用可能な情報を用いた場合と都道府県または市区町村が管理している浄化槽の基数、下水処理区域など詳細情報を用いた場合での汚染要因抽出結果の違いを検討した。表3に、空間精度が異なるデータを組み合わせて浄化槽使用人口の分布を推定した方法の概略を示す。Case1とCase2は全国で一般に利用可能な情報のみを用いた場合の推定方法を示し、Case3～Case6は都道府県が所有する（この場合は鳥取県所有の）詳細情報を用いた場合となっている。Case4～Case5では、集合処理区域には浄化槽がないこととして求めており、Case6では、鳥取県の浄化槽台帳のデータを用いることで集合処理区域内の浄化槽も反映させている。Caseの番号が大きくなるほど、空間的に詳細な推定を行っていることになる。

図3にCase1～Case6までの浄化槽人口分布推定結果を示す。Case1では、フレーム値として字の人口分布を用いたため対象範囲に広く浄化槽が存在してしまう結果となる。一方メッシュの人口分布に基づいたCase2では、浄化槽使用人口0人の箇所が多くなり、空間精度はCase1よりも優れているといえる。しかし、鳥取県が示す浄化槽普及率を使用したCase3～5以降では、Case2と比べても明らかに浄化槽使用人口が減少する。この理由として、集合処理区域には浄化槽がないことを前提としていることに加え、環境省の水洗化率データでは、水洗化人口から公共下水道整備人口を差し引いた値を浄化槽人口としており、戸別浄化槽のみならず集合処理浄化槽もその人口に加えられてしまい、その結果と

して浄化槽使用人口を多く見積もってしまうからである。また、鳥取県の浄化槽台帳を用いた Case6 では、下水処理区域内でも浄化槽を使用している実際の状況を考慮していることより、より詳細な浄化槽使用人口の分布を表すことができたといえる。

表 3 浄化槽人口分布の推定方法

	浄化槽処理人口算出方法	使用データ	データの空間精度
Case1	字単位人口×市町村別水洗化率(浄化槽人口)	H17年国勢調査小地域集計, 環境省廃棄物処理技術情報	字, 市町村
Case2	メッシュ単位人口×市町村別水洗化率(浄化槽人口)	H17年国勢調査地域メッシュ統計, 環境省廃棄物処理技術情報	メッシュ, 市町村
Case3	メッシュ単位人口×市町村別浄化槽普及率	H17年国勢調査地域メッシュ統計, 鳥取県市町村別浄化槽普及率	メッシュ, 市町村
Case4	メッシュ単位人口(集合処理区域を除く) ×市町村別浄化槽普及率	H17年国勢調査地域メッシュ統計, 鳥取県市町村別浄化槽普及率, 主要水系調査利水現況図数値データ	メッシュ, 市町村, 主要水系処理区
Case5	メッシュ単位人口(集合処理区域を除く) ×市町村別浄化槽普及率	H17年国勢調査地域メッシュ統計, 鳥取県市町村別浄化槽普及率, 鳥取県生活排水処理構想図	メッシュ, 市町村, 処理区
Case6	メッシュ単位人口×大字別浄化槽普及率	H17年国勢調査地域メッシュ統計, 鳥取県大字別浄化槽基数	メッシュ, 大字

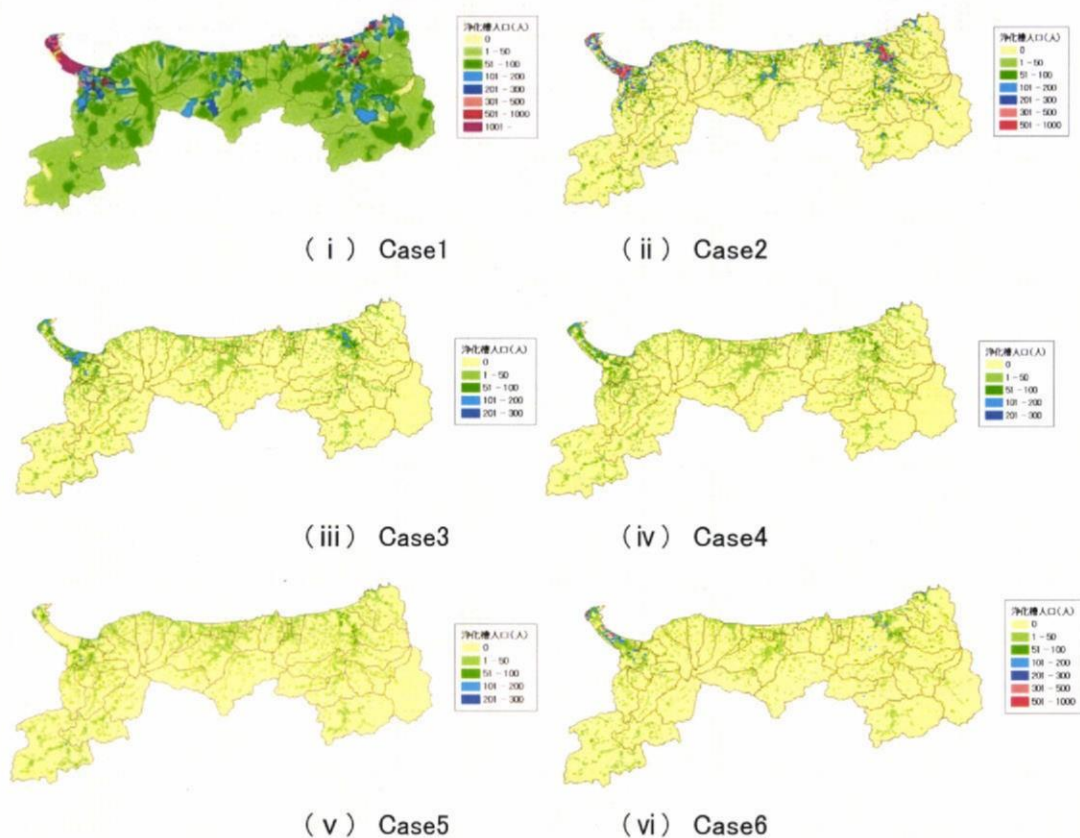


図 3 浄化槽人口分布の推定結果

この Case1～Case6 までの浄化槽人口分布データを用いて、水源同心円解析および水源上流域解析を行った結果を図 4 に示す。Case1 と Case2 を比較すると、水源から 1km 以内または水源上流に存在する浄化槽の総数は増加するのに対して、危険水源数は減少を示している。これは、メッシュを用いたことにより、字より細かい区分で浄化槽の分布を考

慮することができたからであるといえる。また、危険水源数の変化がほとんど見られなかった Case3 以降については、水源から 1km 以内または水源上流に存在する浄化槽の総数には変化が見られ、Case3 から Case5 にかけては徐々に浄化槽の総数が減少していることがわかる。これらは、集合処理区域について考慮したことによりみられる変化であるといえる。しかし、Case6 では、集合処理区域内でも実際には浄化槽が存在している状況を考慮しているため、浄化槽の総数が増加している。Case6 がより現実に近いと考えられるので、Case3~5 では過小に評価してしまうことが明らかとなった。

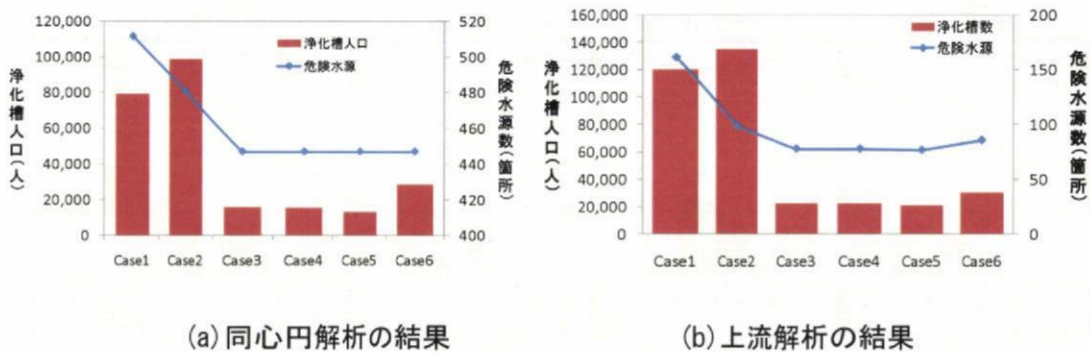


図4 浄化槽が汚染要因として抽出される危険水源の数と抽出された浄化槽人口

(2) 畜産頭数分布の集計精度が与える影響についての検討

ここでは、畜産頭数分布データの集計精度が結果に与える影響を検討するため、畜産頭数の分布を示すデータ源として、一般に利用可能なデータである 2000 年世界農林業センサスのデータを用いた畜産頭数 (Case1) と、家畜排せつ物対象飼養状況個票 (鳥取県畜産課提供情報) をもとに農業集落別に集計した畜産頭数 (Case2) とを用い、水源解析の結果を比較した。Case1 のデータは、世界農林業センサスの結果を農業集落毎に集計した情報であり、経営主体の情報保護の観点から畜産経営主体数が少ない農業集落のデータは秘匿となっている。一方、Case2 のデータは、個票に基づく農業集落毎の集計結果で、全ての畜産経営主体のデータが収録されている。

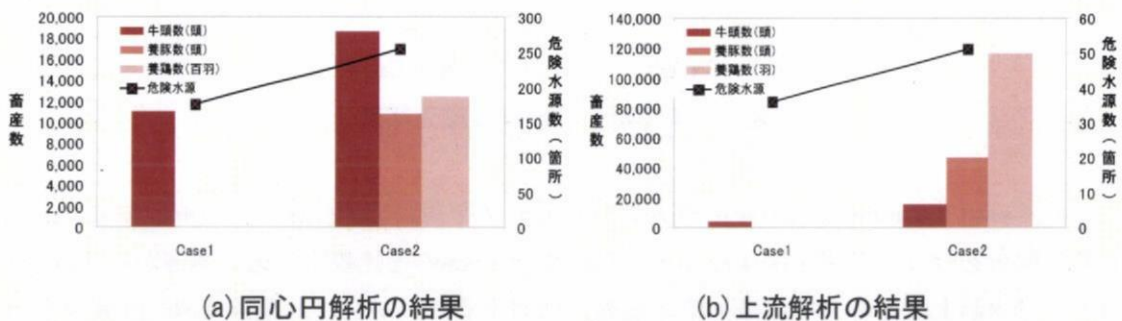


図5 畜産が汚染要因として抽出される危険水源の数と抽出された畜産頭数

畜産頭数分布データに対して、水源同心円解析および水源上流域解析を行った結果を図5に示す。Case1とCase2の家畜数に大きな違いがみられる。Case1では水源周辺または水源上流に、養豚、養鶏ともにほとんど存在していないが、Case2では多くの養豚、養鶏が抽出された。危険水源数もCase2のほうがCase1より多くなっている。これは、一般に利用可能であるCase1のデータでは秘匿とされているデータが多くあり、実際に県が把握している畜産頭数と比べ、過小に公表されているからである。

(3) 情報の空間精度や集計精度が汚染要因抽出結果に与える影響のまとめ

以上の結果から、一般に利用可能な情報のように空間精度や集計精度が劣る情報を用いた場合、汚染要因抽出結果に大きな影響を与えることがわかった。一般に利用可能な情報源を用いるか、詳細な情報を用いるかについては、手間と評価精度のトレードオフの関係として捉えられるため、詳細情報を用いるための手間を低減することや、詳細情報を用いた場合の抽出結果の利用価値を明確にしておくことが重要と考えられる。

C-4 汚染要因抽出結果の評価精度に関する検討

本手法による汚染要因抽出結果の評価精度について検討を行うために、対象地域における危機発生事例や上水道（84水源）および簡易水道（103水源）の過去5～6年分の原水水質と水源周辺地域の汚染要因との関係を水源種類（浅井戸、深井戸、湧水、伏流水）毎に分析した。

(1) 飲料水健康危機事例との比較

鳥取県における飲料水健康危機事例については、計6件の危機事例があったと報告されている（表4）。これら危機事例の内容は、耐塩素性病原微生物の検出が2件、PCBの流出が2件、他は浄水場での処理トラブル、地震後の濁水であった。ここでは、耐塩素性病原微生物の検出、地震後の濁水の計3件の水質事故が起こった取水源を比較対象とした。なお、危機事例No2の簡易水道については、現在は上水道の区域となっており、健康危機が生じた1997年には異なる水源（簡易水道水源）を使用していた。本研究で用いた水源の情報源である平成12、18年度鳥取県水道地図でも上水道区域となっており、水源が存在していない。そこで、飲料水健康危機事例の水源情報より取水源の位置を参考に新たな取水源をGIS内に作成し要因抽出分析を行った。

表4 飲料水健康危機事例（鳥取県）

事例No	年月	種別	水源	原・浄	危害内容	処理方法	対応	被害規模
2	1997年10月	簡易水道	伏流水/浅井戸	原水	原水クリプトスポリジウム及びジアルジア検出。	塩素消毒のみ	給水停止	断水(給水人口106人)
170	2000年9月	上水道	表流水	原水	クリプトによる水道原水汚染。	塩素消毒のみ	なし	
258	2001年4月	上水道	伏流水/浅井戸	浄水	処理トラブルによる濁りの流出で飲用制限 鉄、マンガンの流出による濁り	急速濾過	用途制限	影響人口 3,054人(人口8,245人)
862	2006年2月	上水道	伏流水/浅井戸	原水	採石場で崩壊事故により、PCB入りコンデンサー2個が徳部川へ流出・破損しているのが定期検査で判明	塩素消毒のみ	取水停止	給水人口 5,169人(H15)
973	2006年11月	上水道	伏流水/浅井戸	原水	原水である河川にPCBが流出	塩素消毒のみ	上水道 取水停止 飲用 飲用停止	給水人口 叶水源(伏流水) 149,850人、変田水源(浅井戸) 4,827人、万蔵飲用水供給施設(浅井戸)47人
973	2007年4月	簡易水道	深井戸	浄水	浄水で濁水(住民通報で発覚)	pH調整・消毒	取水停止 飲用停止 浄化装置運転	給水人口 765人(給水戸数215戸)