

200942008B

厚生労働科学研究費補助金
健康安全・危機管理対策総合研究事業

飲料水の水質リスク管理に関する統合的研究

平成19～21年度 総合研究報告書

研究代表者 松井 佳彦（北海道大学）

平成22（2010）年 3月

厚生労働科学研究費補助金

健康安全・危機管理対策総合研究事業

飲料水の水質リスク管理に関する統合的研究

平成19～21年度 総合研究報告書

研究代表者 松井 佳彦

平成22(2010)年 3月

総合研究報告書目次

目 次

I. 総合研究報告

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

(資料) 1. 無機物質に関する研究 ----- 20

2. 一般有機物に関する研究 ----- 26

3. 微生物に関する研究 ----- 33

4. 消毒副生成物に関する研究 ----- 53

5. 農薬に関する研究 ----- 74

6. 水道水質管理に関する研究 ----- 88

7. リスク評価に関する研究 ----- 93

II. 研究成果の刊行に関する一覧表 ----- 102

III. 研究成果の刊行物・別刷 ----- 115

飲料水の水質リスク管理に関する統合的研究

研究代表者 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。

主要な知見は以下のようである。可溶性ケーキろ過による捕集濃縮法とRT-LAMP法により、検鏡法よりも高感度にクリプトスポリジウム等の原虫を検出することが可能となり、実用試験を開始した。一方、現状のクリプトスポリジウムの全国検出状況は予想以上に低く、試験機関における精度管理の必要性が指摘されるものと判断された。ノロウイルスは凝集沈殿ろ過処理にて3log以上の除去、塩素処理にて3mg/L・minで4log以上の不活化が期待された。インフルエンザウイルスの塩素耐性は特に高くはないことがわかった。化学物質関連では、ニトロソアミン類のうち、NDMAやNMorなどが原水やオゾン処理水等から検出され、NDMAはWHO飲料水水質ガイドライン値0.1μg/Lの1/10を超える場合もあった。さらにNDMA前駆物質として黄ばみ防止剤を同定した。また、NDMAに関して毒性情報を収集し評価値として0.1μg/Lを算定した。河川中PFOSは数10ng/L、PFOAは数ng/Lで検出され、一方、肝臓への影響や発生毒性や発がん性等について多くの情報が得られた。また、水質管理目標設定項目第1群の中でも検出されない農薬や検出される第2群農薬があることから、第1群候補の選定基準と監視のためのプライオリティリスト算定のためのスコア値法の見直しを提案した。低濃度の残留性が求められているアルミニウムについては、凝集剤の塩基度を高めることにより残留濃度を低減化できることが分かってきた。暴露評価に関しては、消毒副生成物やMoなどの金属は水道水を用いた調理により水道水寄与率が高くなることや、THMs, HAAs, HANsの飲用寄与率は現行のデフォルト値20%は必ずしも妥当でないことを示した。また、Nitrobenzeneの非発がん指標及び生殖発生毒性のリスク評価を通じて、BMD法の高い有用性が示された。水道水質管理全般については、諸外国では水道水源保全や情報公開に関して日本に比べてより踏み込んだ規制措置が取られていることがわかった。その他、水質基準に関する約300項目・物質について検討を行った。

これら水道水の水質特性とリスク評価・管理に関する広範な研究成果は、79編の論文と126回の学会発表で公表した。さらに塩素酸、PFOS、PFOA、NDMA等の多くの知見が水道水質リスク管理に関する28の厚生労働省令や告示等に資された。

分担研究者	所属機関	職名	小野 敦 (平成21年度)	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 禎彦	京都大学 大学院地球環境学堂	教授	伊藤 雅喜	国立保健医療科学院 水道工学部	室長
遠藤 卓郎 (平成20年度まで)	国立感染症研究所 寄生動物部	部長	秋葉 道宏	国立保健医療科学院 水道工学部	部長
国包 章一	静岡県立大学 環境科学研究所	教授	安藤 正典 (平成20年度まで)	武蔵野大学薬学部 薬学研究所	教授
西野 二郎	日本水道協会 工務部水質課	課長	相澤 貴子	(財)水道技術研究センター	技術顧問
江馬 眞 (平成19年度まで)	国立医薬品食品衛生研究所総合評価研究室	室長	浅見 真理	国立保健医療科学院 水道工学部	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	西村 哲治	国立医薬品食品衛生研究所環境衛生化学部	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	室長	松下 拓	北海道大学 大学院工学研究科	准教授
平田 睦子 (平成20年度まで)	国立医薬品食品衛生研究所総合評価研究室	主任 研究官	泉山 信司 (平成21年度)	国立感染症研究所 寄生動物部	主任 研究官

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、水道水や食品からの摂取状況、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。特に、水道水と食品由来の有害元素の暴露量とTDIに占める割合・ミネラルの推奨量に対する割合について調査し、飲料水からの暴露の寄与率を算定する。また、水道用資機材等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する。特に凝集剤由来のアルミニウムの残留性を検討し、アルミニウム濃度の制御の可能性について検討する。その他、レアメタルに関する現状についても明らかにする。

消毒副生成物と農薬以外の有機物質については、全有機炭素(TOC)、同化性有機炭素(AOC)、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する。TOCについては、基準化後の消毒副生成物などの関連水質への影響等の情報を調査検討する。また、塩素消費量低減化および微生物の潜在的増殖量の指標となるAOCの低減化のために、浄水処理諸条件の検討を行う。さらに、かび臭被害の発生状況及びその低減化対策等についても明らかにする。加えて、ピコプランクトンの浄水処理工程における障害性や、パーフルオロカルボン酸(PFOA)やパーフルオロスルホン酸(PFOS)などの水道原水中の存在実態を明らかにする。

微生物関連については、水道の微生物汚染に係る諸問題、すなわち従属栄養細菌と腸管系ウイルス、耐塩素性病原微生物を包括的に検討し、水道の微生物学的な安全性確保と向上を目指すことが求められている。平成20年度より従属栄養細菌数の測定が水質管理目標設定項目に追加されたが、一般細菌に代わる指標として活用するには従属栄養細菌の検査実態を明らかにし、活用方法の整理が必要と考える。腸管系ウイルスでは現行の浄水処理によって十分に不活化されることを示すことが、安全・安心につながる。ヒトノロウイルスは、効率的な細胞培養系が確立されていないため、培養可能なマウスノロウイルスとの比較から現行の処理による除去性能を求める。トリインフルエンザウイルスは腸管で増

殖して鳥間での水を介した糞口感染が指摘されることから、水道におけるインフルエンザウイルスの処理性について検討する。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、モニタリングシステムの拡充に向けた濃縮方法と検出方法の開発検討を進めてた。平成19年度に適用となった指針では、浄水を毎日採水し試料水あるいはそのろ過物を14日間保存することが推奨されている。そこで、水試料の濃縮とその保存方法について提案する。現行の指針には顕微鏡を主体とするクリプトスポリジウム等検査法が紹介されているが、複数の試料を一括して処理が可能となる遺伝子検査法に期待が寄せられている。クリプトスポリジウム等に関しては排出源対策が重要であることから、検出されたクリプトスポリジウムの型別判定を行い、併せて、畜産施設からのオーシストの排出状況を調査する。

消毒副生成物については、塩素処理およびオゾン処理による副生成物のうちN-ニトロソジメチルアミン(NDMA)、トリハロメタン(THMs)、ハロ酢酸(HAAs)、ハロアセトニトリル(HANs)、抱水クロラール、臭素酸イオン、塩素酸イオン等を対象に、生成実態、制御技術および曝露量について、水質基準の逐次改正に関して重要と考えられる事項を中心に調査を行う。特に、THMs、HAAsおよびHANsの複数経路を考慮した曝露量評価、NDMAの生成実態・生成特性調査、塩素酸イオン、過塩素酸イオンの摂取量の推定、ジクロロアセトニトリル(DCAN)および抱水クロラールの生成実態に力点をおいて調査を行う。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・保管状況について調査し、水道水中の塩素酸濃度の低減対策について検討する。

農薬は年度、地域、季節等によって使用される種類や量が大きく異なることから、水道で対応するためには全国的な検出実態調査が必要である。また、水道事業体が検査対象農薬を合理的に選定する手法や、選定に必要な情報を整理する必要がある。そこで、農薬の流出性や危険性を評価するための合理的に高精度のスコア表を作成し、優先的に監視すべき農薬を選定し、評価に寄与する事を目指す。また、優先的に監視すべき農薬でありながら測定法が確立していない農薬や、塩素処理によって生成される反応生成物についても測定法を検討し、それらの存在状況を調査する。農薬原体についてはADIなど有害性情報が公表されているが、塩素処理による分解物や反応生成物については有害性情報が乏しいことから有害影響評価を行う。

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する。

さらに、飲料水中の化学物質の基準値設定及び改定に資するために、食品安全委員会やWHOが新たに健康影響を評価した化学物質や、新たに健康影響が懸念される化学物質の毒性情報を収集し整理すると共に、化学物質の安全性評価手法に関する最新知見の動向調査を行い、得られた知見の基準値設定等へ適用の妥当性について検証することを目的とした。

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17名の他に45もの水道事業体や研究機関などから89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た。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16名)、一般有機物(研究分担者2名、研究協力者19名)、微生物(研究分担者4名、研究協力者9名)、消毒副生成物(研究分担者2名、研究協力者18名)、農薬(研究分担者3名、研究協力者18名)、水道水質管理(研究分担者2名、研究協力者9名)、リスク評価(研究分担者5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、マグネシウムの濃度や測定方法等に関して、513の水道事業体等を調査対象としたアンケート調査を実施した。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ヨーロッパや米国の鉄系凝集剤の規格情報を調査し、日本で使用されている鉄系凝集剤との比較を行った。活性炭からの初期溶出に関する調査、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および実態調査を行った。飲料水と食品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の分析方法を検討し、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実施した。一方、ポリ塩化アルミニウムの塩基度と凝集処理後のアルミニウムの残留性について、様々な原水を用いたジャーテストと浄水プラントを用いて調べた。

一般有機物質分科会では、TOCと有機物指標

との相関性、平成15年のTOC基準化以降の浄水におけるTOCの推移についてアンケート調査し、整理・解析した。オゾン注入率、活性炭接触時間および新しい活性炭の効果等の浄水処理諸条件とAOCの推移の関係を調査した。溶存有機物の性質と塩素消費量の関係を調べるために、河川水と水源池水を対象として、凝集沈殿処理水後の水の塩素消費量、DOCおよびUV254の測定を行った。かび臭被害に関して、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。神戸市水道局千苧浄水場の原水や様々な水深からの水をサンプリングし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。PFOAs(炭素数4~14)とPFOSs(炭素数4, 6, 7, 8及び10)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る固相抽出-LC/MS/MS法を確立し、利根川水系と多摩川水系の実態濃度を調査した。

微生物分科会では、平成20年度より水質管理目標設定項目に加えられた従属栄養細菌の測定値をインターネット上の公表資料から集計し、低濃度残留塩素存在下で従属栄養細菌のリグロースの実験検討を行った。また、ノロウイルスの凝集沈殿砂ろ過と塩素消毒の処理性を実験的に検討した。インフルエンザウイルスについてはヒトインフルエンザ(H1N1季節性)ならびにトリインフルエンザ(H5N3)を使用した。耐塩索性病原微生物をろ過保存する方法として新規に開発した酸溶解性ハイドロキシアパタイト粒子のケーキろ過法のろ過性能を、ろ過量、粒子の保持率、回収方法等について評価した。RT-LAMP法他のクリプトスポリジウムの高感度迅速遺伝子検査法と適切な試料調製方法を開発し、検出感度、実試料での顕微鏡検査との比較、反応特異性の確認等を行った。実態調査として、相模川水系においてクリプトスポリジウムの検出と得られたオーシストの遺伝子解析、畜産施設の畜産施設の排水処理評価を実施した。

消毒副生物分科会では、THMs, HAAsおよびHANsを対象とした水道水、室内空気(各物質群について一般家庭(それぞれ59, 22, 29軒における実地調査))および代表食品中濃度(マーケットバスケット方式)の実態調査を実施し、経口、吸入、経皮膚といった複数経路からの曝露量を推定するとともに、日本における飲用寄与率または水道水寄与率の評価を行った。さらに、水道水および食品(提供された全国6ヶ所のトータルダイエット(TD)調査試料を使用)・市販飲料・粉

ミルクに含まれる塩素酸イオンや過塩素酸イオン濃度や各経路からの摂取量について調査した。また、NDMA代表されるニトロソアミン類に関して、LC/MS/MSによる分析法を整備した上で、水道水、水道原水等の環境水、さらには下水処理水などの排水中の濃度やこれらの試料を化学酸化処理(塩素処理、クロラミン処理、オゾン処理)した場合の生成能について調査を行った。その他、オゾン処理における臭素酸イオン低減化についてはオゾン濃度管理の効果とその限界に関する評価を、HAAs・HANsその他副生成物については生成実態および低減化技術に関する調査検討を、実施設等で評価した。さらに、塩素酸に関しては、新たに定められた水道水質基準及び薬品基準の平成20年4月1日付施行前から施行後現在に至るまでの、全国の水道事業体における次亜塩素酸ナトリウム溶液の購入・保管状況、並びに、それらと水道水中の塩素酸濃度との関連について調査した。

農薬分科会では、全国の水道事業体の中から13水道事業体を選出し、第一群(102農薬)、ならびに各々が監視の優先度が高いと判断した農薬を中心に水源域、原水、浄水の検出実態調査を実施し、同時に調査する農薬の選定方法や調査結果の反映などについて聞き取り調査を行った。第一群農薬には農薬取締法で登録抹消されたものや、検出実態が無くなっているものなど監視の必要性が問われ農薬があることから第一群から除外する農薬候補の選別について検討を行った。また、近年、出荷量が増加傾向にある農薬の中からネオニコチノイド系農薬に対する監視の必要性の有無を判断するための基礎情報の集積・評価を行った。合理的な農薬監視方法の開発研究では、水源流域で検出される可能性のある農薬を絞り込む方法として、各流域の土地利用や農薬要覧等の既存のデータベースを活用して流域別農薬原体使用量を算出し、簡易GISとして可視化する手法を検討した。また、農薬の散布量、土壌中分解係数、土壌有機炭素吸着定数が河川中濃度へ及ぼす影響について感度解析を行い、監視農薬選定のためのスコア値を改良した。監視の優先度が高いと推定されるが測定法が未確立の農薬とその分解物についてLC/MS法などを検討した。有機リン系農薬、ならびにその塩素処理分解物と反応生成物の有害性評価はコリンエステラーゼ活性(ChE)阻害で評価した。また、河川水のChE活性阻害と農薬類の検出の関係についても検討した。

水質管理分科会は、オーストラリア、カナダ、フランス、ドイツ、イギリス、韓国、オランダ、ニュー

ジーランド、スイス、米国及びEUにおける水源管理及び水道水質管理の制度等に関する情報を収集・整理した。注目した点は、①水道水質基準又はガイドライン、②資機材・浄水薬品、③給水装置、④消毒及び残留塩素保持、⑤水道水質のサーベイランス、⑥水質検査結果(基準適合状況など)の公表、⑦水安全計画策定の制度化、⑧公衆衛生面からの格付け、⑨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、⑩流域の水質保全に関する経済的インセンティブ等である。さらに、これらの国々の優れた制度等の日本への適用可能性について検討した。

リスク分科会では、①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: Perfluoroalkyl -carboxylic acid (PFAC)類, perfluoroalkyl -sulfonic acid (PFAS)類及びアルミニウム化合物について毒性情報を収集し、整理した。②健康影響評価値の算出: 我が国の水道水質基準における要検討項目として新たに追加されたNDMAについて健康影響評価値を算出した。③最新の安全性評価手法に関する研究: 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、水質基準設定のためのリスク評価において最近採用されるケースが増えたベンチマークドース (BMD)アプローチを適用し、長期暴露による一般毒性(非発がん性指標)及び生殖・発生毒性の評価を行った。また、最新の実験データを用い、確率論的アプローチによる新規不確実係数(UF)の導出、並びにそれらを体内動態(PK)と毒性強度(PD)に分割する試みを実施した。さらに、化学物質のリスク評価に関して総合的な手法開発や情報発信を行っている米国のTERA (Toxicology Excellence for Risk Assessment)より、用量反応評価手法に関する最新動向を調査した。

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が高いまたは低いという傾向にあり、低pHの施設の実態調査では、浅井戸及び深井戸を水源とし、消毒のみを行なう施設で浄水pH値が低い傾向があることがわかった。鉄系凝集剤は水道用薬品としての規格がなく、不純物のマンガン濃

度は通常想定される注入率において水道用薬品の評価基準値を満たさない恐れがあった。日本国内の鉄系凝集剤はヨーロッパ規格のマンガンについて分類すると、5製品中1製品のみがグレード1であった。水道用粒状・粉末活性炭からの溶出物に関する試験では、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、コンディショニング時間の短い粒状活性炭の浸出試験において数種類の重金属が検出されたことなどを勘案すると、不良品の納入防止には、自己検査の実施や品質に関する仕様の変更などを行う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、モリブデンなどの順であり、調査の優先順位度が高い項目としてコバルト、ゲルマニウム、ストロンチウム等が挙げられた。特にストロンチウムについては、今後の調査により検出率及び検出濃度が高い結果となる可能性があり現在実態調査を継続実施中である。

調査した無機物質の水道水中濃度は水質基準より低いいため、摂取量に占める水道寄与率は2%以下と非常に小さく、かつ、セレンとモリブデンを除いては食品と水からの摂取量はTDIの50%以下であった。しかし、モリブデンの摂取量はTDIの50%以上であり、水道水の濃度によっては食品経由の水道水間接摂取量を考慮した飲用寄与率が高くなる可能性が認められた。推奨量(RDA)または目安量(AI)が与えられているカルシウム、マグネシウム、鉄等の9元素の一日摂取量をRDA等と比較すると、飲料水の摂取はこれら元素の摂取にあまり寄与していないことが明らかになった。

高塩基度PACの濁度、色度の処理効果は従来のPACと同等以上であったが、残留アルミニウム濃度は従来のPACより低い傾向があり、塩基度調整により残留アルミニウム濃度の制御が容易になる可能性が示された。プラント実験においても、高塩基度PACを使用すると最終ろ過水の残留アルミニウム濃度が低くなることが示され、さらに砂ろ過においては懸濁態のアルミニウムもほぼ完全に除去されることが明らかになった。

(2) 一般有機物

平成19年度調査の水道事業体において、平成15年の基準化時と比較すると、TOCは低減化し、浄水で2 mg/Lを超えることはなかった。TOCとハロ酢酸生成能(原水:0.58, 浄水:0.53)および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、通常の浄水処理された配水系統でのTOCと総トリハロメタンの相関係数は0.65であり、総トリハロメタンの基準値0.1 mg/Lに対応するTOCを信頼限界99%危険率の上限値で計算すると3.2 mg/Lとなった。高度浄水処理された配水系では相関係数が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となり、TOC水質基準値3mg/Lは総トリハロメタン濃度を0.1 mg/L以下にするための指標数値とも考えられた。しかしながら、塩素消費量を初期のDOCやUV254では予測できないことも明らかとなり、残留塩素濃度の減少を予測するためには新たな指標の導入が必要であることが明らかとなった。一方、凝集沈殿では、塩素を消費しやすい有機物質を選択的に除去している可能性が示唆された。AOCは、オゾン酸化後に増加し、生物処理で低下するが、次亜塩素酸ナトリウムの酸化作用により送配水において僅かに増加傾向にあった。原水からオゾン処理水まではAOC濃度変動は大きいですが、活性炭処理以降は年間を通して一定の水質を示していた。AOCは、全有機炭素の約6%に相当した。活性炭全量を新炭に交換した通水開始後、AOCが上昇し、安定するのに2週間程度を要した。AOCの増減挙動は、有機酸と類似しており、有機酸が影響していると思われた。通水に伴い生物が増殖し有機物がシュウ酸、酢酸を経てギ酸に分解されることが示唆された。

調査対象の全国67事業体中、かび臭被害は34浄水場(50.7%)で発生し、水源は全て表流水であった。かび臭被害の発生割合は地域によって異なるものの、地域特異性は見られなかった。神戸市の千苺貯水池及び千苺浄水場原水では、6~9月にかけてピコプランクトンの最高濃度が 5.9×10^5 cell/mLに達し、主として、水深5 mまでの範囲において分布していた。粒状活性炭処理において*Phormidium tenue*の細胞内の2-MIBは完全には除去されないことが分かった。

PFOAsとPFOSsの定量下限値が0.03~0.2 ng/Lと感度が良く、再現性の高い分析方法を確立した。冬季の多摩川水系及び利根川水系において、最高値としてPFOAで1.2 ng/L、PFOSで22.8 ng/Lが検出された。2008年1月から12月にかけて、多摩川水系上流域の羽村堰付近の濃度は比較的lowく、PFCAs(ペルフルオロ脂肪酸)0.7~5.1ng/L、PFCSs(ペルフルオロアルキルスルホン酸)0.2~30.4ng/Lであったが、中流域の濃度はPFCAsが14~59.9ng/L、PFCSsが17~167.7ng/Lと上流域に比べ高く、下水処理場の

下水処理水が負荷源となっていると推定された。多摩川中流域のPFCAsの存在比はPFNA(パーフルオロノナン酸43%) > PFOA(32%) > PFHxA(パーフロロヘキサン酸9%)の順に高く、PFOAよりも炭素鎖が長いPFCAsも検出された。PFCsの存在比はPFOS(77%) > PFHxS(パーフルオロヘキサンスルホン酸18%) > PFBS(パーフルオロブタンスルホン酸4%)の順であった。利根川水系の中川三郷付近の濃度はPFCAsが14.5~40.9ng/L, PFCsが10.5~50.9ng/Lであり、有機フッ素化合物の存在比は多摩川中流域の存在比と同様な結果であった。

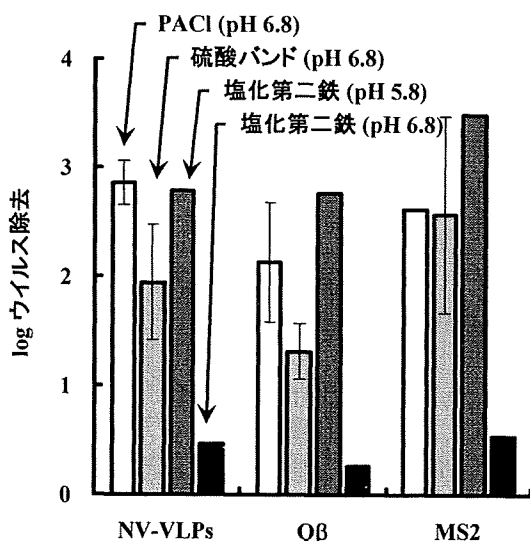


図1. 凝集沈澱-砂ろ過処理後のウイルスの除去率比較, いずれも凝集剤添加濃度は40 μM-Al or Fe

(3) 微生物

従属栄養細菌が水質管理目標設定項目となった平成20年4月以降, 多くの水道事業体で試験が行われている。公開されている結果を集計したところ, 浄水場出口, 給水栓などの浄水系試料では100 cfu/mL未満がその大半を占めるが, 最高値は5900 cfu/mLであった。水質管理目標項目の目標値(2000 cfu/mL)を超えた報告はこの1例のみであった。水道水の残留塩素濃度を下げた状態で保存し, 従属栄養細菌を監視したところ0.05 mg/Lでも残留塩素が存在する場合には, 従属栄養細菌の顕著な増殖は認められなかった。しかし, 濁度0.17度の沈殿処理水を試料として同様の実験を行ったところ, 0.1 mg/Lの残留塩素を含んでいても従属栄養細菌の増殖が認められ, 残留塩素濃度のみで従属栄養細菌増殖を管理することは難しいことが示唆された。

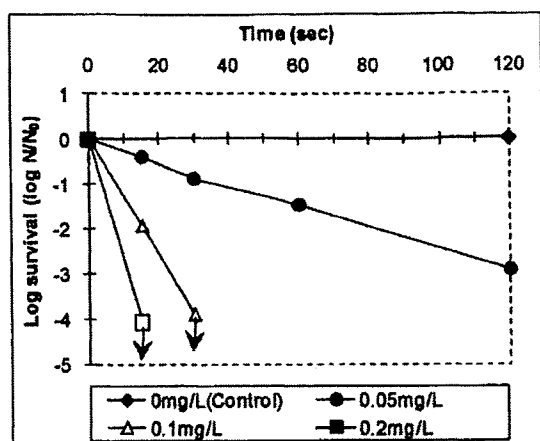
ノロウイルスに近縁のマウスノロウイルスとヒトノロウイルスGIIを用いてウイルスの塩素耐性を評

価した結果, 最低0.1 mg/Lの遊離塩素濃度を保った配水システムにおいては30分間の接触で99.99% (4-log)以上のノロウイルス不活化が期待できるものと評価された。凝集処理におけるrNV-VLPsの除去は, 凝集剤添加濃度40 mM-Al or -Feにおいて, 0.7~1.2 logであり, 凝集剤としてPAC (pH 6.8)および塩化第二鉄 (pH 5.8)を用いた場合に1-log以上の除去が得られ, 硫酸バンド (pH 6.8)を用いた場合の除去よりも高かった。また, 凝集沈澱-急速砂ろ過処理においては, 凝集剤としてPAC (pH 6.8)および塩化第二鉄 (pH 5.8)を用いた場合に約3-log以上の除去が得られた。インフルエンザウイルスH1N1型は, 0.1 mg/Lの30秒間の接触時間で4-log以上の不活化が得られ, 文献のトリインフルエンザの結果と遜色なかった。H1N1型のモノクロラミン消毒では0.4 mg/Lの10分間の接触時間で2-log以上が不活化された。H1N1型ならびにH5N3型の紫外線消毒では, 4 mWs/cm²の線量で2-log以上が不活化された。以上の結果, インフルエンザウイルスが他のウイルスと比較して, 消毒処理に高い耐性を持つことは無かった。

クリプトスポリジウム等の検出のための回収法に関して, ろ過水量の向上と有機溶媒を用いないろ過回収方法として酸溶解性ハイドロキシアパタイト粒子を用いたケーキろ過濃縮方法を開発した。35 mm程のプラスチック製使い捨て容器にアパタイト1 gを充填したケーキろ過で200~600 L程度の水道水を通水することが可能であった。蛍光ビーズやオーシストで90%以上の回収率が得られた。綾瀬浄水場の浄水では400 L程度のろ過が実用的な範囲と思われた。神奈川県内の2つの水道事業体の協力のもとで実施した試験でも期待通りのろ過量を得た。なお, この実地試験では, 浄水水質がろ過流量や回収率に大きく影響するなどの課題も判明した。

クリプトスポリジウム等の迅速遺伝子検査法の開発では, RT-LAMP法, Cycleave法ならびにUniversal Qプローブ法によるRT-PCRの高感度検出系を確立した。RT (逆転写反応)を行わなかった従来のLAMP法検出には1本の反応チューブに全ての試料を使用することが必要であったが, コピー数が多いrRNAを標的としたRTにより, 理論上0.006オーシストからの検出が可能となった。一方, ジアルジアはrDNA遺伝子のコピー数が多かったことから, RT反応無しでも高感度検出が可能であった。実際の河川試料を用いた場合では, さらに, RT-LAMP法により得られた結果の検証として増幅産物の解析を行い, 原虫の遺伝子であることを確認した。

現在、ホームページ上でクリプトスポリジウムの検出状況を公表している水道施設は197事業体に上る。このうちクリプトスポリジウムを検出した事業体は24事業体(13%)に留まり(最大値は37オーシスト/20 L)、報告の事業体が試験に熟練した施設に偏る傾向が伺えることから、改めて外部精度管理システムの必要性を検討する時期にあるものとする。なお、浄水から検出されている事例はなかったことを付記する。相模川水系のクリプトスポリジウムの遺伝子型別では、社家取水口でブタ、ウシ、ヒト型の塩基配列が確認された。畜産廃水処理でクリプトスポリジウムは平均で2~3-log程度除去されることがわかったが、汚泥のバルキングが生じて処理に支障をきたすと、除去が著しく低下することを確認した。家畜密度の高い流域において取水を行う場合、下水同様、畜産由来の原虫汚染について注意を払う必要があることが示された。



※ 白抜きは検出下限未満

図 2. 塩素消毒によるインフルエンザウイルス(H1N1)の不活化

(4) 消毒副生成物

消毒副生成物の曝露量を評価した結果、THMsの場合、吸入・経皮膚曝露量が飲用曝露量に匹敵すること、食品経由の曝露量は最も少ないことがわかった。一方、HAAsの場合、経口曝露(食品(一部TD調査試料を用いた)+飲用)が主要経路であり、吸入・経皮膚曝露量は少ないことを明らかにした。HANsについては、食品経由の曝露量が極めて少ないと推定され、また経皮膚曝露量推定に必要な情報が不十分であったため、飲用および吸入のみを評価した結果、飲用曝露量が圧倒的に高いことが判明した。以上のことから消毒副生成物ごとの複数経路を考慮した曝露評価の重要性を示した。従来の基準値設定方法により得られた飲用寄与率を

図3に示す。トリクロロメタン(TCM)とジブロモクロロメタン(DBCM)の場合、得られた飲用寄与率に対数正規分布に従うと仮定すると、5~10パーセンタイル値が飲用寄与率0.1に対応し、トリブロモメタン(TBM)に関しては、飲用寄与率の中央値が0.1付近となり、いずれの場合も現行の飲用寄与率(0.2)よりも低い値が望ましいと考えられた。また、ブロモジクロロメタン(BDCM)については食品経由の水道水間接摂取量を考慮した飲用寄与率による評価が望ましいことを示した。クロロ酢酸(MCA)・ブロモ酢酸(MBA)・トリブロモ酢酸(TBA)を除く6種のHAAsについても、飲用寄与率に対数正規分布に従うと仮定した場合、DCAを除く5物質については、5~10パーセンタイル値に相当する値として飲用寄与率0.05または0.1がより妥当であるとした。また仮にDCAについてTDI法を用いる場合、現行の飲用寄与率0.2は6パーセンタイル値に相当し、妥当であると考えられた。HANsについては、いずれの中央値も1.00付近であったことから、WHOが提唱する飲用寄与率0.8が妥当であると考えられた。なお、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および循環式浴槽施設の公衆浴場の利用の影響も無視できないことを示した。

塩素酸イオンと過塩素酸イオンについてTD調査試料を利用して摂取量調査を行ったところ、塩素酸イオンの場合、水道水の寄与率が50~80%程度と高く、また、食品からの摂取量の中でも水道水由来の塩素酸イオンを有するもの(米類の炊飯調理等)と考えられる食品群もあった。食品および水道水の摂取量の合計値を成人1人あたりのTDIと比較すると、30%以下であった。また、個別の調査により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。一方、過塩素酸イオンの一日摂取量の推定値は、6地点で2.9~84 µg/dayの範囲であり、調査地点によって摂取量に差が見られ、体重50 kgの成人における参照用量35 µg/dayを上回る地点もあった。摂取量のうち食品の寄与率が水道水の寄与率と比べ高かった(水道水寄与率は最大22%)。

NDMAについて、全国の約30ヶ所の水道における実態調査を行った結果、原水中のNDMA濃度は最高2.6 ng/L、浄水中の濃度も概ね2 ng/Lであった。しかし、一部の浄水において10 ng/Lを超過することもあった(最高31.8ng/L)。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(100ng/Lを超過する場合あり)と減少する場合があり、ある種の下水処理場放流水がその一因であると考えられた。さらに、この結果を踏まえ、下水流入水か

らオゾン処理によるNDMA前駆物質として黄ばみ防止剤であるHDMSとTMDSの2物質を同定した。河川(原水)のNDMA生成能を調査したところ、遊離塩素処理でのNDMA生成能は見られなかったが、原水の水質によってはクロラミン処理によってNDMAが生成する場合があることがわかった。NDMA等10種のニトロソアミン類の実態調査では、原水中からはNDMAおよび*N*-ニトロソモルホリン(NMor)が検出され、*N*-ニトロソピロリジン(NPyr)はNDMAと同様に中オゾン処理により増加した。なお、一部の環境水・排水で極端に高濃度のNDMA(最高33000ng/L)が検出された。

の遵守が困難になることが予想され、酸処理その他の対策が必要となると考えられる。

TCMやTTHM、BDCM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。また、抱水クロラールおよびDCANの実態調査では、それぞれ最大で水質管理目標値の50%および35%の濃度が検出された。

平成19年度の調査では、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。平成20年度の調査では、以前に比べて改善が図られているものの、塩素注入率が高い施設などで、依然として問題が認められる場合があった。平成21年度の調査でも一部の施設において問題が残されていた。

(5) 農薬

農薬製剤総出荷量は平成20農薬年度で約26万tであり、この数年間ほぼ横ばいであった。また、登録農薬原体数は530種で、平成12年をピークに減少し、登録農薬製剤数も10年間で約1,000種減少し、4,241種類であった。

全国13水道事業者の約140箇所の実態調査を実施した結果、計143種の農薬が検出された。第一群農薬(102農薬)は2007~2009年の調査では河川水で54種、原水で84種、浄水で52種が検出された。最大検出濃度が1 μg/Lを超えた農薬は、河川水で5種、原水で21種であり、フェントロチオン(MEP)、シメリン、イミノクタジン三酢酸塩は10 μg/Lを超過するケースがあった。浄水で0.1 μg/Lを超えた農薬は21種類で、特にピロキロン、グリホサートは1 μg/Lを超過するケースもあった。農薬検出頻度は河川水、原水、浄水共にベンタゾン、プロモブチドなどが高い値を示した。検出指標値は河川水では1を超えるケースがあったが、原水ではすべて1以下で、浄水では最大でも0.12であった。河川水、原水の検出指標値が高い原因にはフェンチオンおよびその酸化物やモリネート、イミノクタジン三酢酸塩等、特定の農薬の検出が寄与していた。また、三年間の全国農薬実態調査結果の解析では、全国的に監視の重要度の高い農薬は、原水では、プロモブチド、モリネート、イミノクタジン三酢酸塩など8農薬、浄水ではベンタゾン、プロモブチド、フェノブカルブ、ピロキロン、トリクロピルなどである事が明らかになった。なお、水道事業者では原水から農薬が検出時には粉末活性炭処理を行うなど対策を採るケースが増え、浄水で検出される農薬は減少傾向にあった。また、ここ数年出荷量が50 tを超えるネオニコチノイド系農薬の実態調

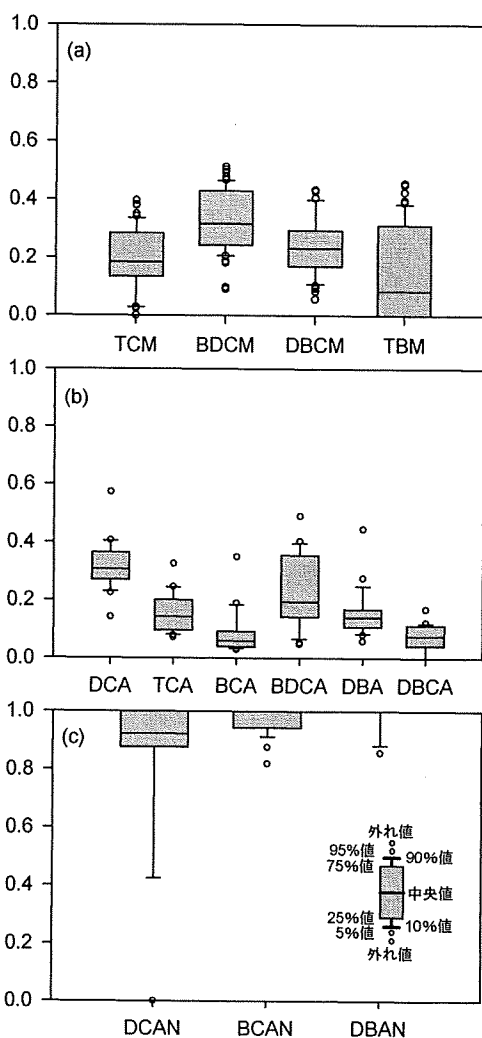


図3. 複数経路の曝露を考慮した消毒副生成物の飲用寄与率 ((a) THMs, (b) HAAs, (c) HANs)

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、オゾン注入率・溶存オゾン濃度による臭素酸濃度の制御はほぼ限界に近づきつつあると推定された。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

査を鶴見川流域で行ったが、対象としたイミダクロプリドなど3農薬すべてが検出されたが、濃度は比較的low、水質管理上問題となるレベルではなかった。

水道において監視の優先度が高いとして選定された第一群農薬の中にも高頻度、高濃度で検出される農薬と逆に検出実態がない農薬があり、イミダクロプリド、ベンゾフェナップは第二群農薬であるが検出されている。今後、水道で効率的な農薬監視を行うためには長年にわたり検出実態のない農薬を測定する意義はないと考え、第一群(102農薬)から除外する候補の選定について①浄水で検出されない(検出率が0%)、②原水で検出されない(検出率が0%)の2つの条件で選別したところ102農薬中16農薬が該当した。モデル地域として相模川、酒匂川、筑後川、利根川、太田川、馬淵川の農薬用途別使用量を簡易的なGISとにより視覚的に表示することが可能となった。農薬流出解析モデルを用いて河川中農薬濃度の感度解析を行い、農薬の散布量が河川中農薬濃度に最も大きく影響を与えており、その次に農薬の土壌に対する吸着性、その次に分解性という順に影響力が小さくなる結果を得た。その結果をもとに農薬濃度監視プラオリティースト作成のためのスコア表を改良した結果、これまでのスコア表を用いた場合に比べて相関性が向上し、新スコア表の有効性が示された。

新たな農薬測定法として、ネオニコチノイド系農薬については固相抽出-LC/MS法を、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、ピリミホスメチルについては固相抽出後にGC/MS法あるいはLC/MS法により測定する方法を確立した。また、これらの農薬は、いずれも塩素によって速やかに反応し、主要な塩素処理生成物としてオキソン体を生成した。クロルピリホスメチルオキシソンのChE阻害活性は非常に強く、クロルピリホスオキソンなどと同程度であった。ピリミホスメチル原体とその塩素付加体とでは後者の方が高い細胞毒性を示した。これらの結果から、有機リン系農薬は、原体に加えて塩素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。また、河川水中にはChE活性を阻害する物質が含まれていることが明らかとなり、同時にMPP及びカルボフランが検出された。

(6) 水質管理分科会

諸外国の水源管理及び水道水質管理の制度等に関しては、以下のようなことを明らかにした。

カナダでは、水道事業者(給水戸数6戸以上の小規模を含む)及び水質検査機関を対象に毎

年監査を行っており、違反には改善を命令したり、課徴金を課したりするなど措置が取られている。ドイツでは、地下水と貯水池を対象に国土面積の約12%の水道水源保護区域を指定して、水道水源の保全に努めている。また、公共用水域への排水に対して賦課金を課し、これによる資金を水環境保全に再投資しており、フランスやオランダでも同様の制度を採用している。このほか、ドイツでは地下水質保全目的に農業との協働による窒素肥料施用量の削減の取り組みも行っている。イギリスにおいても水源保全区域を指定するとともに、イングランド及びウエールズの約55%もの広範な地域を硝酸塩監視区域として指定し、地下水の硝酸塩による汚染の防止を図っている。韓国では、四大河川流域の統合的水質管理政策を実施して、水道水源等水環境の保全を図っているほか、水道管路の定期検査を義務付け、全浄水場を対象に管理・運営実態を評価してその結果を公表している。オランダでは、水道水の微生物学的リスクの定量評価(QMRA)を水道事業体に義務付けているほか、通常の基準項目の他に、浄水処理の管理に関する項目及び原水監視のための項目を定めている。ニュージーランドでは、水道水質基準を柔軟に運用しており、水安全計画の作成を水道事業体に義務付けるとともに、水道水評価官(Drinking-Water Assessor)が水道事業者をきめ細かに指導し、公衆衛生面から格付けしてその結果を公表している。米国では、水道水質管理の面で広範かつ包括的な取り組みを以前から行ってきており、中でも水道事業者から水道利用者への情報伝達に関しては、消費者信頼報告書(Consumer Confidence Report)の作成を義務付けるなど先進的に取り組んでいる。以上のほか、EUでは、水枠組み指令(Water Framework Directive)を定めて加盟各国における水環境改善への取り組みを促すと同時に、ポータルサイト欧州水情報システム(Water Information System for Europe, WISE)を設けて、水質関連情報の収集と蓄積に取り組んでいる。

(7) リスク評価

PFAC/PFAS類の中でPFOA及びPFOSについては多くの情報が得られた。その他のPFAC/PFAS類については十分な情報が得られなかったものの、げっ歯類において共通して肝臓への影響や発生毒性が報告されており、これらの影響は炭素数の長いPFAC/PFAS類で強い傾向が見られた。炭素鎖の長いPFAC/PFAS類は強い影響が懸念され、さらなる研究や試験の実施が望まれる。毒性の差の要因として、

PFAC/PFAS類の血清/血漿排出半減期が炭素数に依存して長くなる傾向があることが明らかになっている。PFOA及びPFOSに関しては、ラットにおいて肝臓等に腫瘍性病変を引き起こすことが報告された。アルミニウム化合物の毒性に関しては、現在、情報整理中であるが、特に神経毒性及び神経発生毒性について多くの情報が得られている。

NDMAの毒性情報を収集したところ、発がん性以外の慢性影響に関する評価はほとんど行われておらず、生殖発生毒性に関する情報も限られていた。WHOや米国EPA等での安全性評価法を検証した結果、低用量外挿に適したモデルの選択という観点からすると、WHOで採用された評価手法がより適切であり、NDMAの水道水中の健康影響評価値は、現時点では0.1 µg/Lとし、当面、引き続き要検討項目として、その存在状況や生成機構等について知見の集積を図ることが適当であると考えられる。

Nitrobenzeneの毒性評価では、一般毒性指標について、ラットを用いた吸入発がん性試験で観察された肝病変を評価した結果、BMD Lower-bound Confidence Limit (BMDL)は1.1 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。生殖発生毒性指標については、最も感受性の高い影響について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アプローチの有用性が示された。新規UFを提案するための検討では、種差と個体差それぞれに関する、最も適切な対数正規分布データに対して確率論的アプローチを用い、動物種毎のUFを算出した。その結果、種差×個体差に関するUFはラットでは100、マウスでは150となった。しかし、これらのUFにおける種差と個体差の関与は動物種で異なることから、それらの関与をそれぞれラットでは種差:24、個体差:4として、マウスでは種差:37.5、個体差:4とした。さらに、これらのUFをWHO/IPCSの基本的考え方に基づいてPKとPDに分割した場合の係数を導き出した。化学物質の定量的リスク評価手法に関する最新動向調査として、UF及び化学物質特異的調整係数の適用法やBMD手法について最新の情報を収集し、整理中である。化学物質の安全性評価手法に関しては、近年、BMDアプローチや確率論的アプローチなどの手法が導入され、科学的な根拠に基づいた評価が可能になりつつあることから、これらの新しい評価手法を積極的に取り入れた、基準値等の設定を推進していくことが望ましいと考えられる。

D. 結論

(1) 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して検討した。無機物質の摂取量に対する水道水の寄与は総じて低いことが示された。水道水中のカルシウム、マグネシウム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く、食品を含む摂取量調査においても、推奨量を下回る傾向が見られたが、水道水由来の摂取量、寄与率は低かった。塩基度を高めたポリ塩化アルミニウム凝集剤(PAC)は、現行のPACに比較して、濁度、色度の除去性は同等以上であり、残留アルミニウム濃度も同等またはそれ以下になることが示された。また、砂ろ過後の残留アルミニウムは溶存態として存在していた。

(2) 一般有機物

TOCは、ハロ酢酸生成能、トリハロメタン生成能、総トリハロメタンとの相関が認められ、総トリハロメタンの基準値0.1 mg/Lに対応するTOCの統計的上限值は3 mg/L程度であった。しかし、実際の水道水のTOCで2 mg/Lを超える値は認められなかった。しかしながら、塩素消費量は初期のDOCやUV254では予測できないことも明らかとなり、残留塩素濃度の減少を予測するためには新たな指標の導入が必要であることが明らかとなった。一方、凝集沈殿では、塩素を消費しやすい有機物質を選択的に除去している可能性が示唆された。AOCはオゾン処理で増加し、生物処理で低下するが、次亜塩素酸ナトリウムの酸化作用により送配水において僅かに増加する傾向にあった。AOCの増減には有機酸が影響してことが示唆された。かび臭被害の発生割合は異なるが、地域特異性はなかった。PFOAとPFOSについて、感度良く再現性の高い分析方法を確立した。冬季の多摩川水系において、最高値としてPFOAが1.2 ng/L、PFOSが22.8 ng/Lで検出された。2008年1月から12月にかけて、多摩川の水中有機フッ素化合物は、中流域の濃度が上流域の濃度比べ高く、下水処理場の処理水が負荷源となっていると推定された。中流域では、PFOAより炭素鎖が長いPFCAも検出された。

(3) 微生物:

従属栄養細菌は一般細菌、水温、濁度との相関が認められた。一般細菌と比較すると、水温との関係は弱く、また菌数も浄水処理工程で多く検出されることから、水温の影響を強く受けない

感度の高い指標と考えられた。全国的な浄水系統料の検出状況は100 cfu/mL未満がその大半を占めたが、最高値は5900 cfu/mLであった。ノロウイルスは凝集沈澱-急速砂ろ過処理において、凝集剤としてPAC(pH 6.8)および塩化第二鉄(pH 5.8)を用いた場合に約3-log以上の除去が得られた。ノロウイルスの塩素消毒では、最低0.1 mg/Lの遊離塩素濃度(水道法)を保った配水システムにおいては30分間の接触で4-log以上の不活化が期待できるものと評価された。インフルエンザウイルスの消毒を、細胞への感染性を指標として評価した結果、インフルエンザウイルスが他のウイルスと比較して、消毒処理に高い耐性を持つことは無かった。簡便で効率的なクリプトスポリジウム等原虫類の試験のためのサンプル濃縮として、ハイドロキシアパタイト粒子のろ過濃縮法を開発し、所定のろ過性能が得られた。免疫磁気ビーズによるオーシストの分離・精製と組み合わせたRT-LAMP法により、検鏡法よりも高感度にクリプトスポリジウムを検出することが可能となり、実用に向けての道が開けた。また、LAMP法とは別に、Cycleave法ならびにUniversal QProbe法を用いた高感度なRT-PCR法を構築した。全国的なクリプトスポリジウム等検出状況を調査した結果、クリプトスポリジウムの検出を報告している事業体は24事業体であり、13%に過ぎなかった。検出状況は予想以上に低く個々の試験機関における精度管理の必要性が指摘されるものと判断された。社家取水口で検出されるクリプトスポリジウムは、人への感染報告が少ないブタ型が多いと推定されたが、同時に人への感染リスクの高いヒト型やウシ型も検出された。畜産排水処理では両原虫が平均で2~3-log程度除去されていたが、汚泥のバルキングが生じると、原虫の除去が著しく低下した。

(4) 消毒副生成物

塩素およびオゾン処理副生成物のうちNDMAやTHMs, HAAs, HANs, 抱水クロラール, 臭素酸イオン, 塩素酸イオンおよびUSEPAで暫定健康勧告濃度が公表された過塩素酸イオンを対象に、生成実態、曝露量等について調査を行った。その結果、THMs, HAAs, HANsの飲用寄与率は現行のデフォルト値20%は必ずしも妥当でないことを示した。また、塩素酸イオンおよび塩素酸イオンの一日摂取量推定値および水道水の寄与率を明らかにした。NDMA等10種のニトロアミン類のうち、NDMA, NMor, NPyrが原水やオゾン処理水等から検出され、NDMAはWHO飲料水水質ガイドライン値の1/10を超える場合もあった。オゾン処理におけるNDMA前駆物質の

一部として、黄ばみ防止剤を同定した。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とその限界およびTCM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。水道水中の塩素酸濃度の低減化に関しては、水道事業体のさらなる努力と併せて、次亜塩素酸ナトリウム溶液の品質向上が期待される。

(5) 農薬

農薬製剤総出荷量はこの数年間ほぼ横ばいであり、登録農薬原体数は530種で平成12年をピークに減少傾向にあった。農薬検出実態調査を全国の主要13水道事業体で実施し、測定データを解析した結果、全国的に監視の重要度の高い農薬は、原水で8農薬、浄水で5農薬が挙げられた。一部の河川水や原水では、フェンチオン分解物のスルホキンド体やオキソン体が検出指標値を高める原因になっていた。さらに、水質管理目標設定項目第1群の中でも検出されない農薬や逆に検出されている第2群農薬があることから、第1群候補の選定法を検討した。ネオニコチノイド系農薬、ピリダフェンチオン、クロルピリホスとその分解物に対する測定法を新たに確立した。現在、監視農薬を選定のためのスコア値算出法を、農薬流出モデルによる感度解析により合理的に見直した。新スコア値を用いることで農薬濃度、検出率との相関が良好になった。水道取水流域を対象に、各種データベースを活用し流域別の農薬使用量を推定し簡易GISとして視覚的に表現した。一部の有機リン系農薬は塩素処理によって容易にオキソン体を生成し、これらは原体より高いコリンエステラーゼ活性阻害を示した。

(6) 水質管理

水源管理及び水道水質管理の制度等に関して、ドイツ、イギリス、韓国等においては、水源保全の面で日本に比べてより踏み込んだ規制措置が取られている。ニュージーランドにおける水道事業体の公衆衛生面からの格付け、韓国における浄水場管理・運営実態の評価等、情報公開を梃子にした現状改善・向上策は、規制を補完する有力な政策手法である。これらの制度や仕組みの多くは、水道水の安全性の確保・向上の面で十分な効果を上げていていると考えられるので、日本においても可能な範囲で実情に合わせて積極的に導入することを検討すべきであろう。

(7) リスク評価:

PFAC/PFAS類の毒性情報を収集・整理した結果、PFOA及びPFOSに関しては、肝臓への影響、

発生毒性や発がん性等について多くの情報が得られたが、その他のPFAC/PFAS類については十分な情報が得られなかった。NDMAに関して毒性情報を収集し、水道水中の健康影響評価値を算出した結果、現時点では0.1 µg/Lとすることが適当であると考えられた。化学物質の安全性評価手法に関する研究として、最新知見の収集及び整理を行うと共に、水道水質基準査定の観点から必要なリスク評価手法の検証を試みた。Nitrobenzeneの非発がん指標及び生殖発生毒性にBMD手法を適用した結果、BMD手法の高い有用性が示された。また、最新の実験データを用いて、確率論的アプローチにより新規UFを導き出し、それらのPKとPDへの分割を試みた。この方法により、科学的な根拠に基づいたより適切な評価が可能になると考えられる。

E. 健康危険情報

なし

F. 研究発表

1. 論文発表

伊藤雅喜, 山田俊郎, 馬場崇, 林田武志, 秋葉道宏, 逆流防止装置の異常検出に関する研究, 環境工学研究論文集, 46, 269-276, 2009

Ohno, K., Matsui, Y., Itoh, M., Oguchi, Y., Kondo, T., Konno, Y., Matsushita, T. and Magara, Y., NF membrane fouling by aluminum and iron coagulant residuals after coagulation-MF pretreatment, *Desalination*, 254, 17-22, 2010

小坂浩司, 伊藤雅喜, 中澤祐貴, 森一晃, 国包章一, 水道におけるポリ塩化ナフタレン及び塩素化多環芳香族炭化水素類の実態調査, 水道協会雑誌, 77(8), 2-12, 2008

Shirasaki, N., Matsushita, T., Matsui, Y., Oshiba, A. and Ohno, K., Estimation of norovirus removal performance in a coagulation-rapid sand filtration process by using recombinant norovirus VLPs, *Water Research*, 44, 1307-1316, 2010

白崎伸隆, 松下拓, 松井佳彦, 大芝淳, 浦崎稔史, 大野浩一, 遺伝子組換えノロウイルス

外套タンパク粒子(rNV-VLPs)を用いたヒトノロウイルスの浄水処理性評価, 環境工学研究論文集, 46, 415-422, 2009

Shirasaki, N., Matsushita, T., Matsui, Y., Urasaki, T. and Ohno, K., Comparison of behaviors of two surrogates for pathogenic waterborne viruses, bacteriophages Q β and MS2, during the aluminum coagulation process, *Water Research*, 43(3), 605-612, 2009

Shirasaki, N., Matsushita, T., Matsui, Y., Kobuke, M. and Ohno, K., Comparison of removal performance of two surrogates for pathogenic waterborne viruses, bacteriophage Q β and MS2, in a coagulation-ceramic microfiltration system, *Journal of Membrane Science*, 326, 564-571, 2009

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*, 57(7), 501-506, 2008

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, 2007

Inomata, A., Kishida, N., Momoda, T., Akiba, M., Izumiyama, S., Yagita, K. and Endo, T., Development and evaluation of a reverse transcription-loop-mediated isothermal amplification assay for rapid and high-sensitive detection of *Cryptosporidium* in water samples, *Water Science and Technology*, 60 (8), 2167-2172, 2009

Kuroki, T., Izumiyama, S., Yagita, K., Une, Y., Hayashidani, H., Kuro-o, M., Mori, A., Moriguchi, H., Toriba, M., Ishibashi, T. and Endo, T., Occurrence of *Cryptosporidium* sp. in snakes in Japan, *Parasitol Res.*, 103(4), 801-805, 2008

- 高木正明, 鳥海宏, 遠藤卓郎, 山本徳栄, 黒木俊郎, プール水を介したクリプトスポリジウム症集団発生事例, 感染症誌, 82, 14-19, 2008
- 柳橋泰生, 権大維, 武藤輝生, 伊藤禎彦, 神野透人, 越後信哉, 大河内由美子, 気相曝露量の実態調査に基づいた水道, 水中トリハロメタンの曝露量と飲用寄与率の評価, 水道協会雑誌, 79(3), 3-15, 2010
- Itoh, S., Yoshimura, Y. and Okada, T., Components of estrogenic effect in chlorinated drinking water, *Adv. Asian Environ. Eng.*, 8(1), 31-38, 2009
- 越後信哉, 伊藤禎彦, 宮川幸雄, 谷田慎也, 琵琶湖・淀川水系における臭気物イオンの発生構造, 土木学会論文集G, 65(4), 218-225, 2009
- 小坂浩司, 浅見真理, 今野裕介, 秋葉道宏, 利根川上・中流域におけるNニトロソジメチルアミンとその前駆物質の実態調査, 環境工学研究論文集, 46, 233-240, 2009
- Asami, M., Kosaka, K. and Yoshida, N., Occurrence of chlorate and perchlorate in bottled beverages in Japan, *Journal of Health Science*, 55(4), 549-553, 2009
- Kosaka, K., Asami, M., Konno, Y., Oya M., and Kunikane, S., Identification of antiyellowing agents as precursors of N-nitrosodimethylamine production on ozonation from sewage treatment plant influent, *Environ. Sci. Technol.*, 43(14), 5236-5241, 2009
- Asami, M., Oya M., and Kosaka, K., A nationwide survey of NDMA in raw and drinking water in Japan, *Sci. Total Environ.*, 407(11), 3540-3545, 2009
- Kamoshita, M., Kosaka, K., Asami, M., and Matsuoka, Y., Analytical method for perchlorate in water by liquid chromatography-mass spectrometry using an ion exchange column, *Anal. Sci.*, 25, 453-456, 2009
- Asami, M., Kosaka, K. and Kunikane, S., Bromate, chlorate, chlorite and perchlorate in sodium hypochlorite solution used in water supply, *Journal of Water Supply: Research and Technology-Aqua*, 58, 107-115, 2009
- 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, 77(4), 7-22, 2008
- Oya, M., Kosaka, K., Asami, M. and Kunikane, S., Formation of N-nitrosodimethylamine (NDMA) by ozonation of dyes and related compounds, *Chemosphere*, 73, 1724-1730, 2008
- Echigo, S., Itoh, S., and Ando, R., Contribution of organic bromines to the genotoxicity of chlorinated water Kranfil, T., Krasner, S. W., Westerhoff, P. and Xie, Y., *Disinfection By-Products in Drinking Water: Occurrence, Formation, Health Effects, and Control*, American Chemical Society, Washington, DC, 65-79, 2008
- 伊藤禎彦, 権大維, 武藤輝生, 岡下亮介, 越後信哉, 大河内由美子, 複数経路の曝露を考慮したハロ酢酸の曝露量評価, 環境工学研究論文集, 45, 553-561, 2008
- 浅見真理, 水道水源および消毒剤中のハロゲン酸の存在状況と動向, 水環境学会誌, 31(9), 508-513, 2008
- 伊藤禎彦, 消毒副生成物に関する国内外の研究動向, 水環境学会誌, 31(9), 502-507, 2008
- 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, *Adv. Asian Environ. Eng.*, 6(1), 43-48, 2007
- Echigo, S., Itoh, S., and Kuwahara, M., Bromide removal by hydrotalcite-like compounds in a continuous system, *Water Sci. Technol.*, 56(11), 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, 44, 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.*, 41(15), 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の実態調査, 水環境学会誌, 30(7), 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, 17(3), 363-376, 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
- 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
- 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*, 42(6-7), 1753-1759, 2008
- 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, *Journal of Water Supply; Research and Technology-AQUA*, 57(3), 143-151, 2008
- 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*, 50(6), 483-487, 2008
- Ihara, T., Saito, T. and Sugimoto, N., Expansion of organic reference materials for the analysis of hazardous substances in foods and environments. -Realization of an efficient metrological traceability using the quantitative NMR method-, *Synthesiology*, 2, 12-22, 2009
- 田原麻衣子, 杉本直樹, 末松孝子, 有福和紀, 齋藤 剛, 井原俊英, 吉田雄一, 多田敦子, 久保田領志, 清水久美子, 山崎 壮, 棚元憲一, 中澤裕之, 西村哲治, qNMRに基づく有機リン系農薬イソキサチオンオキシソンの品質管理, *食化誌*, 16(1), 28-33, 2009
- Kamoshita, M., Kosaka, K., Endo, O., Asami, M. and Aizawa, T., Mutagenic activities of a chlorination by-product of butamifos, its structural isomer, and their related compounds, *Chemosphere*, 78, 482-487, 2010
- 寺嶋勝彦, 国包章一, ニュージーランドにおける水道の水質管理制度, 水道協会雑誌, 79(1), 24-34, 2010
- 寺嶋勝彦, オーストラリアにおける水道の水質管理制度, 水道協会雑誌 (投稿中)
- 国包章一, ドイツの水道水質管理及び水源保全に関する規制と取り組み, 水道協会雑誌 (投稿中)
- Ema, M., Arima, A., Fukunishi, K., Matsumoto, M., Hirata-Koizumi, M., Hirose, A. and Ihara, T., Developmental toxicity of dibutyltin dichloride given on three consecutive days during organogenesis in cynomolgus monkeys, *Drug*

Chem Toxicol, 32, 150-157, 2009

Ema, M., Fujii, S., Hirata-Koizumi, M. and Matsumoto, M., Two-generation reproductive toxicity study of the flame retardant hexabromocyclododecane in rats, *Reprod Toxicol*, 25, 335-351, 2008

Ema, M., Fujii, S., Matsumoto, M., Hirata-Koizumi, M., Hirose, A. and Kamata, E., Two-generation reproductive toxicity study of the rubber accelerator N,N-dicyclohexyl-2-benzothiazolesulfenamide in rats, *Reprod Toxicol*, 25, 21-38, 2008

Ema, M., Fujii, S., Yabe, K., Matsumoto, M. and Hirata-Koizumi, M., Evaluation of reproductive and developmental toxicity of the rubber accelerator N,N-dicyclohexyl-2-benzothiazole sulfenamide in rats, *Congenit Anom Kyoto*, 49, 149-155, 2007

Ema, M., Fukunishi, K., Hirose, A., Hirata-Koizumi, M., Matsumoto, M. and 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*, 31, 399-412, 2008

Ema, M., Hara, H., Matsumoto, M., Hirata-Koizumi, M., Hirose, A. and Kamata, E., Evaluation of developmental neurotoxicity of polysorbate 80 in rats, *Reprod Toxicol*, 25, 89-99, 2008

Ema, M., Ise, R., Kato, H., Oneda, S., Hirose, A., Hirata-Koizumi, M., Singh, A.V., Knudsen, T.B. and Ihara, T., Fetal malformations and early embryonic gene expression response in cynomolgus monkeys maternally exposed to

thalidomide. *Reprod Toxicol*, 29, 49-56, 2009

Harada, T., Kimura, E., Hirata-Koizumi, M., Hirose, A., Kamata, E. and Ema, M., Reproductive and developmental toxicity screening study of 4-aminophenol in rats, *Drug Chem Toxicol*, 31, 473-486, 2008

Hirata-Koizumi, M., Matsuno, K., Kawabata, M., Yajima, K., Matsuyama, T., Hirose, A., Kamata, E. and Ema, M., Gender-related difference in the toxicity of 2-(2'-hydroxy-3',5'-di-*tert*-butylphenyl)benzotriazole in rats: relationship to the plasma concentration, in vitro hepatic metabolism and effects on hepatic metabolizing enzyme activity, *Drug Chem Toxicol*, 32, 201-214, 2009

Hirata-Koizumi, M., Matsuyama, T., Imai, T., Hirose, A., Kamata, E. and Ema, M., Gender-related difference in the toxicity of ultraviolet absorber 2-(3',5'-di-*tert*-butyl-2'-hydroxyphenyl)-5-chlorobenzotriazole in rats, *Drug Chem Toxicol*, 31, 383-398, 2008

Hirata-Koizumi, M., Matsuyama, T., Imai, T., Hirose, A., Kamata, E. and 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*, 31, 275-287, 2008

Hirata-Koizumi, M., Matsuyama, T., Imai, T., Hirose, A., Kamata, E. and Ema, M., Gonadal influence of 2-(2'-hydroxy-3',5'-di-*tert*-butylphenyl)benzotriazole in rats, *Drug Chem Toxicol*, 31, 115-126, 2008

Hirata-Koizumi, M., Matsuyama, T., Imai, T.,

- Kamata, E., Hirose, A. and Ema, M., Disappearance of gender-related difference in the toxicity of benzotriazole ultraviolet absorber in juvenile rats, *Congenital Anomalies*, 49, 247-252, 2009
- Hirata-Koizumi, M., Noda, A., Hirose, A., Kamata, E. and Ema, M., Reproductive and developmental toxicity screening test of tetrahydrofurfuryl alcohol in rats, *Reprod Toxicol*, 25, 231-238, 2008
- Hirata-Koizumi, M., Ogata, H., Imai, T., Hirose, A., Kamata, E. and Ema, M., 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, 2008
- Hirata-Koizumi, M., Watari, N., Mukai, D., Imai, T., Hirose, A., Kamata, E. and Ema, M., 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, 2007
- Hirode, M., Horinouchi, A., Uehara, T., Ono, A., Miyagishima, T., Yamada, H., Nagao, T., Ohno, Y. and Urushidani, T., Gene expression profiling in rat liver treated with compounds inducing elevation of bilirubin, *Hum Exp Toxicol*, 28, 231-244, 2009
- Hirode, M., Omura, K., Kiyosawa, N., Uehara, T., Shimuzu, T., Ono, A., Miyagishima, T., Nagao, T., Ohno, Y. and Urushidani, T., Gene expression profiling in rat liver treated with various hepatotoxic-compounds inducing coagulopathy, *J Toxicol Sci*, 34, 281-293, 2009
- Kondo, C., Minowa, Y., Uehara, T., Okuno, Y., Nakatsu, N., Ono, A., Maruyama, T., Kato, I., Yamate, J., Yamada, H., Ohno, Y. and Urushidani, T., Identification of genomic biomarkers for concurrent diagnosis of drug-induced renal tubular injury using a large-scale toxicogenomics database, *Toxicology*, 265, 15-26, 2009
- Matsumoto, M., Furuhashi, T., Poncipe, C. and 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*, 23, 169-183, 2008
- Matsumoto, M., Hirata-Koizumi, M. and Ema, M., Potential adverse effects of phthalic acid esters on human health: a review of recent studies on reproduction, *Regul Toxicol Pharmacol*, 50, 37-49, 2008
- Matsumoto, M., Hirose, A. and Ema, M., Review of testicular toxicity of dinitrophenolic compounds, 2-sec-butyl-4,6-dinitrophenol, 4,6-dinitro-o-cresol and 2,4-dinitrophenol, *Reprod Toxicol*, 26, 185-190, 2008
- Takahashi, M., Sunaga, M., Hirata-Koizumi, M., Hirose, A., Kamata, E. and Ema, M., Reproductive and developmental toxicity screening study of 2,4-dinitrophenol in rats, *Environ Toxicol*, 24, 74-81, 2008
- Uehara, T., Ono, A., Maruyama, T., Kato, I., Yamada, H., Ohno, Y. and Urushidani, T., The Japanese toxicogenomics project: application of toxicogenomics, *Mol Nutr Food Res*, 54, 218-227, 2010
- Yamazaki, T., Hirose, A., Sakamoto, T., Okazaki,

M., Mitsumoto, A., Kudo, N. and Kawashima, Y., Peroxisome proliferators attenuate free arachidonic acid pool in the kidney through inducing lysophospholipid acyltransferases, *J Pharmacol Sci.*, 111, 201-210, 2009

江馬 眞, 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, 2007

高橋美加, 松本真理子, 宮地繁樹, 菅野誠一郎, 菅谷芳雄, 平田睦子, 広瀬明彦, 鎌田栄一, 江馬 眞, OECD化学物質対策の動向(第15報) - 第25回、第26回OECD高生産量化学物質初期評価会議(2007年ヘルシンキ、2008年パリ), 化学生物総合管理, 4, 193-200, 2010

高橋美加, 松本真理子, 宮地繁樹, 菅野誠一郎, 菅谷芳雄, 広瀬明彦, 鎌田栄一, 江馬 眞, OECD化学物質対策の動向(第14報) - 第23回, 第24回OECD高生産量化学物質初期評価会議(2006年済州、2007年パリ), 化学生物総合管理, 4, 225-236, 2008

高橋美加, 松本真理子, 川原和三, 菅野誠一郎, 菅谷芳雄, 広瀬明彦, 鎌田栄一, 江馬 眞, OECD化学物質対策の動向(第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, 2007

高橋美加, 松本真理子, 川原和三, 菅野誠一郎, 菅谷芳雄, 広瀬明彦, 鎌田栄一, 江馬 眞, OECD化学物質対策の動向(第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, 2007

松本真理子, 宮地繁樹, 菅谷芳雄, 広瀬明彦, OECD高生産量化学物質点検プログラム: 第28回初期評価会議概要, 化学生物総合管理, 5,

201-209, 2010

松本真理子, 宮地繁樹, 菅谷芳雄, 広瀬明彦, OECD 高生産量化学物質点検プログラム: 第27回初期評価会議概要, 化学生物総合管理, 5, 105-115, 2009

松本真理子, 宮地繁樹, 菅谷芳雄, 江馬 眞, 広瀬明彦, OECD高生産量化学物質点検プログラム: 第26回初期評価会議概要, 化学生物総合管理, 4, 237-245, 2009

松本真理子, 山本展裕, 宮地繁樹, 菅谷芳雄, 江馬 眞, 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, 2007

松本真理子, 大井恒宏, 宮地繁樹, 菅谷芳雄, 江馬 眞, 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, 2007

2. 学会発表

省略

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

H. 謝辞

本研究課題の遂行に際しては、表 A に示す研究協力者及びその所属組織より協力を頂いた。また、本研究に用いた全国のトータルダイエット試料は表 B の機関および担当者の協力によって調整されたものである。これらについて、ここに記して謝す。

表 A

<無機物質分科会>

淡路 和夫	大阪市水道局
石橋 健二	福岡県南広域水道企業団