

Japan Society for the Promotion of Science (JSPS).

REFERENCES

- Andersson A., Laurent P., Kihn A., Prevost M. and Servais P. (2001). Impact of temperature on nitrification in biological activated carbon (BAC) filters used for drinking water treatment. *Water Research*, **35**(12), 2923-2934.
- de Vet W. W. J. M., Dinkla L. J. T., Muyzer G., Rietveld L. C. and van Loosdrecht M. C. M. (2008). Molecular characterization of microbial populations in groundwater sources and sand filters for drinking water production. *Water Research*, **43**(1), 1-13.
- Francis C. A., Roberts K. J., Beman J. M., Santoro A. E. and Oakley B. B. (2005). Ubiquity and diversity of ammonia-oxidizing archaea in water columns and sediments of the ocean. *Proceedings of the National Academy of Sciences*, **102**(41), 14683-14688.
- Kasuga I., Shimazaki D. and Kunikane S. (2007). Influence of backwashing on microbial community in biofilm developed on biological activated carbon in an advanced drinking water purification plant. *Water Science and Technology*, **55**(8-9), 173-180.
- Kasuga I., Saito H., Kurisu F. and Furumai H. (2009). Characterization of bacterial community responding to lower carboxylic acids in biological activated carbon treatment for biologically stable drinking water. Proceedings of Philippines-Japan International Symposium on Urban-Rural Environmental Sustainability and Socio-economic Development 2009, 73-81.
- Könneke M., Bernhard A. E., de la Torre J. R., Walker C. B., Waterbury J. B. and Stahl D. A. (2005). Isolation of an autotrophic ammonia-oxidizing marine archaeon. *Nature*, **437**, 543-546.
- Leininger S., Urich T., Schloter S., Shwark L., Qi J., Nicol G. W., Prosser J. I., Schuster S. C. and Schleper C. (2006). Archaea predominate among ammonia-oxidizing prokaryotes in soils. *Nature*, **442**, 806-809.
- Nicol G. W. and Schleper C. (2006). Ammonia-oxidizing Crenarchaeota: important players in the nitrogen cycle? *Trends in Microbiology*, **45**(5), 207-212.
- Park H.-D., Wells G. F., Bae H., Criddle C. S. and Francis C. A. (2006). Occurrence of ammonia-oxidizing archaea in wastewater treatment plant bioreactors. *Applied and Environmental Microbiology*, **72**(8), 5643-5647.
- Rothauwe J. H., Witzel K. P. and Liesack W. (1997). The ammonia monooxygenase structural gene amoA as a functional marker: Molecular fine-scale analysis of natural ammonia-oxidizing populations. *Applied and Environmental Microbiology*, **63**(12), 4704-4712.
- Simpson D. R. (2008). Biofilm processes in biologically active carbon water purification. *Water Research*, **42**(12), 2839-2848.
- Suffet I. H. and Pipes W. O. (1986). Predominant bacterial genera in granular activated carbon water treatment systems. *Canadian Journal of Microbiology*, **32**, 226-230.
- Treusch A. H., Leininger S., Kletzin A., Schuster S. C., Klenk H.-P. and Schleper C. (2005). Novel genes for nitrite reductase and Amo-related proteins indicate a role of uncultivated mesotrophic crenarchaeota in nitrogen cycling. *Environmental Microbiology*, **7**(12), 1985-1995.
- Wert E. C., Neemann J. J., Rexing D. J. and Zegers R. E. (2008). Biofiltration for removal of BOM and residual ammonia following control of bromate formation. *Water Research*, **42**(1-2), 372-378.
- Wood M. (1995). A mechanism of aluminum toxicity to soil bacteria and possible ecological implications. *Plant and Soil*, **171**(1), 63-69.
- Wuchter C., Abbas B., Coolen M. J. L., Herfort L., van Bleijswijk J., Timmers P., Strous M., Teira E., Herndl G. J., Middelburg J. J., Schouten S. and Damsté J. S. S. (2006). Archaeal nitrification in the ocean. *Proceedings of the National Academy of Sciences*, **103**(33), 12317-12322.

水道水の残留塩素保持に係る規定および研究の動向

Recent regulations and researches on residual disinfectant in drinking water

島崎 大 (国立保健医療科学院), 国包 章一 (静岡県立大学)

Dai SIMAZAKI (Nat'l Inst. of Public Health), Shoichi KUNIKANE (Univ. of Shizuoka)

1. はじめに

日本国内においては水道法により給配水過程での残留塩素の保持が義務づけられている。しかしながら、欧米の水道の例をみると、大半の国が消毒剤の残留下限値を設定しておらず、また消毒自体も表流水を水源とする場合などに限られる場合が見受けられる。ここでは、EU 諸国における消毒や残塩保持に係る規定、特にオランダにおける近年の取組みや考え方について概説する。また、日本でも水道水の安全性及び快適性のさらなる向上を目的として、残留塩素保持の意義に関する検討や、給配水過程における水質管理の実態についての調査が行われている。ここでは、保健医療科学院や日本水道協会により最近実施された研究の成果および今後の課題について紹介する。

2. EU 諸国における水道の消毒および残塩保持の状況

EU では、加盟各国が遵守しなければならない水質基準値として飲料水指令を 1980 年に施行(1998 年改訂)しているが、その中では消毒に関する規定は明記されていない¹⁾。ただし、大腸菌などの指標微生物が検出されないことが定められており、必然的に、浄水処理による適切な消毒の実施を求めていると言える。この水質基準をもとに、加盟各国では国内法として消毒剤の選定や水質基準の設定を行うことが求められている。各国の消毒に関する法規制や実施状況は、以下の通りである²⁾。

浄水処理での消毒について、すべての飲料水に対して法的に消毒を義務づけているのはポルトガル、スペイン、英国である。オーストリア、デンマーク、フランス、オランダは表流水から取水している場合のみに消毒を義務づけている。給配水過程の残留塩素について、日本と同様に給水栓での残留塩素の保持を法的に義務づけているのはポルトガルとスペインのみである。ポルトガルは給水末端で 0.2mg/L、スペインは 0.2~0.8mg/L の残留塩素濃度が必須である。オーストリアとドイツは、微生物に関する基準を達成する必要がある場合に限って残留塩素保持を要求している。ただし、オーストリアは同時に末端での上限値も設定しており、例として遊離塩素は 0.3mg/L 未満とする必要がある。目標値として浄水場出口で確保すべき残留濃度を示しているのは、ベルギー、フランス、アイルランドの 3 カ国である。英国では、法的に消毒を義務づけながら基準値や目標値は設定していない。残留消毒剤の濃度は、水源水質、浄水処理方式、配水システムの状況に応じて異なるとの理由による。このように残留塩素濃度を規定している理由として、①微生物学的指標値に合致するため、②生物膜の生成を防止するため、③微生物等を最小化するため、④配水過程における汚染混入時の被害を最小限とするため、⑤汚染物質が混入した場合の指標となるため、などが挙げられる。

一方、上記の国以外では消毒剤の残留を要求していない。その主な理由は、①地下水など原水水質が良好な水源であるため、②浄水処理におけるマルチバリアによりほとんどの有害物質を除去できるため、③洗管等による維持管理により配水管網の衛生状態を保持できるため、④消毒副生成物を防ぐため、などである。また、仮にわずかな消毒残留効果を保持していても重大な汚染混入には効果がない、残留消毒を汚染混入の指標として用いることは、現実的な信頼性に乏しいとの判断にもよっている。

特に欧州各国においては、消毒副生成物の生成や残留消毒剤による異臭味の問題に対して、より重大な関心が寄せられていると言ってよい。ギリシャ、ポルトガル、スペインを除いた他の国は、消毒副生成物に関する 1 項目以上の基準を設けている。上述のオーストリアと同様、フィンランド、スイス、ルクセンブルグも残留消毒剤の上限値を目標値として設定しており、消毒副生成物対策を主としている為と考えられる。

3. 塩素消毒および残塩保持に依存しないオランダ水道の状況

オランダは、EU 諸国のなかでもとりわけ塩素消毒および残塩保持に依存しない水道システムの構築に向けた取組みを進展させており、現在では浄水処理での塩素消毒がすべてオゾンやUVなどに置き換わり、また、国内すべての水道が残留消毒剤なしで配水されている³⁾。そのような水道システムを可能としている背景として、第一に、良好な水道水源を確保していることが挙げられる。西部を除く国土の大半の地域で地下水（バンクフィルトレーションを含む）から取水しており、それらは帯水層に長い年月浸透しており、微生物学的に安全な水質であるため、ほとんどの場合は消毒の必要がないとしている。国土の4.4%に相当する水源の周辺地域には用途制限がかけられており、取水井周辺は水道会社の所有となっている。一方、首都アムステルダムやハーグ等の都市が位置する西部では、地下水に塩分が含まれるためライン川やムーズ川などの表流水を取水している。マルチバリアの観点から、表流水はいったん前処理した後に砂丘に浸透させる、あるいは、貯水池に滞水して汚濁を軽減させた後に浄水処理に供している。浄水処理においては、消毒副生成物の存在が明らかになった1970年代後半より徐々に塩素処理を取り止めており、代わりにオゾン-粒状活性炭処理やUV処理を導入している⁴⁾。その他、凝集沈澱、急速ろ過、緩速ろ過、膜処理（UFおよびRO）、促進酸化処理（オゾン-過酸化水素またはオゾン-UV）の組み合わせにより、浄水水質の化学的および微生物学的な安全性と安定性を確保している。

残留塩素を保持していないことから、特に給配水過程での汚染防止や、微生物再増殖の制御に着目した管路の衛生管理、配水の水質管理を実践している点も大きな特色である。EU 諸国の中でもオランダの水道の漏水率は際だって低く平均3%未満であり、配水管工事時などにおける衛生状態の確保について厳格な作業手順を定めている。また、配水過程での微生物再増殖を抑えるため、浄水処理の過程では生物処理および物理化学処理の組合せにより同化性有機炭素（AOC: Assimilable Organic Carbon）を大幅に低減し、さらに生物膜形成能の低いPVCやアスベストセメントを使用した水道管への布設替えを推進している。水質管理については、オランダはEU飲料水指令より厳しい水質基準を定めており、例えば大腸菌の試験には100mlではなく300mlの試料水を用いる他、運転管理上の指標としてアエロモナス属菌（ $<1,000\text{CFU}/100\text{ml}$ ）や従属栄養細菌（Colony count at 22°C: $<100\text{CFU}/\text{ml}$ ）の基準値を設定している。特に注目すべきは、2001年に改正された水道法において、定量的微生物学的リスク評価（QMRA: Quantitative Microbiological Risk Assessment）を導入した点である^{3,5)}。ここでは、腸管系ウイルス、クリプトスポリジウム、ジアルジア、カンピロバクター等による水道水由来の病原微生物による感染リスクを年間 10^4 未満（給水人口1万人につき年間感染者1名未満）とすることを定めており、表流水を使用する浄水場および病原微生物による汚染のある地下水を使用する浄水場を対象に、水道水源の汚染状況および浄水処理過程での除去性能をふまえて定量的な評価を行うことを求めている。表流水を使用する浄水場を対象として行われた最近のQMRAの結果によれば、上記の感染リスクを確保するためには原水中のクリプトスポリジウムを最大6.5log、カンピロバクターを最大8.6logまで除去することが必要であると、また、各種浄水処理の組み合わせにより、それ以上の除去レベルが確保できるとしている。

4. 日本における水道の残塩保持に関する調査研究の動向

日本国内では、水道法第22条の規定に基づき衛生上の措置として、同法施行規則第17条第1項第3号において、給水栓における水が遊離残留塩素を $0.1\text{mg}/\text{l}$ （結合残留塩素の場合は $0.4\text{mg}/\text{l}$ ）以上を保持するように塩素消毒をすることとされている。国内における水道水の安全性は、塩素消毒および残留塩素保持によって担保されていると言っても過言ではなく、現在に至るまで水系感染症の予防に大きな役割を果たしてきた。例として、「飲料水に係る健康危機管理実施要領」に基づき国内の最近10年間の飲料水健康危機事例を整理したところ、健康被害者数として約7割の事例は、消毒の不備が要因の一つであると指摘されている⁶⁾。

しかしながら、水道における塩素消毒と残留塩素の保持は、トリハロメタン等消毒副生成物の生成に伴う健康リ

スクの増大や、カルキ臭の発生に伴う快適性の喪失の原因となっており、ひいては利用者の水道水に対する不安や不信感の一因となっている面がある。また、国内外で水道水等の汚染に起因して集団感染事故をもたらした原虫クリプトスポリジウムやジアルジアは、塩素消毒による不活化が全く期待できないこともよく知られている。

以上のことより、水道水の安全性及び快適性のさらなる向上の観点から、保健医療科学院では、各大学との共同研究により 17-19 年度に「残留塩素に依存しない水道の水質管理手法に関する研究」を実施した⁷⁾。当該研究では、国内の水道の現状と最新の知見に照らして残留塩素保持の意義を再検討し、残留塩素の保持のみに依存しない水道水質管理のあり方を明らかにする事を目的とした。主な成果の概要は以下の様である。

- ①諸外国の水道における消毒及び給配水水質管理の状況、病原微生物による水道水源等の汚染と感染事例、消毒技術による微生物損傷性や塩素代替技術の管理手法に関する文献調査を実施し取りまとめた。
- ②*In vitro* バイオアッセイ結果と慢性毒性試験結果（文献値）から、代表的な水中天然由来有機物の塩素処理により生成する TOX の毒性は、ジクロロ酢酸と同程度かより強いことを示した。一般的な水道水の TOX 値は、ジクロロ酢酸の水道水質基準値を TOX に換算した値より 4~5 倍高いことから、TOX を指標とした消毒副生成物リスクの総括的評価の重要性を提示した。
- ③水中の有機物と二酸化塩素との反応において、接触時間や二酸化塩素添加量が十分でない場合には、AOC が増加する可能性があることを示した。
- ④塩素、紫外線、オゾンおよび二酸化塩素処理における大腸菌への損傷作用機構を検討することによって、各消毒方法が病原細菌に与える損傷レベルを推定した。塩素は CT 値によって損傷レベルが異なり、オゾンは pH の影響を大きく受けた。また致死的な損傷を与える処理レベルは、デソキシコレート培地による測定では過大評価となる可能性を示した。
- ⑤紫外線照射装置の不活化効率を運転中に測定する方法として一般細菌を生物線量計として用いる方法を提案した。高照射量条件において測定誤差が生じており、要因として一般細菌中に含まれる紫外線耐性菌の存在が想定された。
- ⑥オゾン-活性炭処理を導入している国内の浄水場を対象として、原水、活性炭表面に付着している真正細菌、真核生物の群集構造を TRFLP 法によって比較した。原水中の微生物群集構造は浄水場間のばらつきが見られたが、活性炭表面上の微生物群集構造は、一部に例外はあるものの浄水場間の差異は小さく、類似した群集構造が形成されていることが示唆された。
- ⑦従属栄養細菌数の測定において BrdU 標識 DNA 合成量を指標とすることにより、36 時間程度で推定可能であることを示し、感度の面からも水道水に適用可能であることを確認した。
- ⑧配水過程における微生物再増殖につき室内実験を行い、付着微生物量が 2~3 週間で定常状態に達すること、定常状態における付着微生物量や細菌種は、水中の残留塩素濃度レベルや壁面の材質および粗度に応じて異なること、付着微生物量は残留塩素濃度の一時的な上昇によって急減するが、その濃度が元のレベルに戻ると速やかに回復することなどを明らかにした。
- ⑨日本国内の浄水系をシミュレーションするための類型化、残留塩素に依存しない系において懸念される、配水管網や給水系内における微生物の再増殖のシミュレーション法、および、病原微生物と消毒副生成物による健康リスクの推算とその DALY 値を用いた比較方法を確立し、消毒剤の残留効果が無い場合を想定した健康影響リスク推算を行い、その適用性を確認した。
- ⑩残留塩素に依存しない水道を実現するための必要条件として、給配水過程において水道水の水質を良好な状態に保つことが不可欠であり、そのためには、浄水処理における消毒が十分であること、配水水質並びに配水システム（特に管路）の内面が良好な状態に保たれていて、腐食や生物再増殖による水質悪化が問題とならないこと、配水過程における外部からの再汚染のおそれがないこと、給水栓水の定期的な水質検査などが適切に行われていること等が重要であることを提示した。

特に、給配水過程において水道水の水質を良好な状態に保つための諸条件については、さらなる定量的な検討が必要であることから、引き続き平成 20-22 年度において「水道の配水過程における水質変化の制御および管理に関する研究」を実施しており、水道水の配水過程における化学的および微生物学的水質変化を最小限に抑えるための水質管理や管路の維持管理のあり方、また、それを確保する上で必要となる浄水水質や浄水処理システムの要件を明確にする事を目的とした調査研究を進めているところである。

(社)日本水道協会では、国内の水道事業者における残留塩素低減化の取組みの拡大や、残留塩素濃度の測定および残留塩素管理に関する技術の進展に鑑みて、平成 20 年度に「残留塩素管理に関する調査専門委員会」を設け、国内の水道事業者における残留塩素管理の実態や課題の整理を目的とした調査研究を行った⁸⁾。当委員会では、市販の携帯型残留塩素計および連続自動残留塩素計を対象として、低濃度の残留塩素測定を行う際の測定精度や分析手順および保守管理の上で必要となる要件についての整理を行っており、連続自動残留塩素計については低濃度域に対応した高感度センサーの開発等が必要であるとの見解を示している。また、各地の実際の浄水を用いて残留塩素濃度が低下ないし消失した後の細菌等の再活性化の可能性について室内実験により検討を行っており、十分に塩素消毒が施された浄水であれば残留塩素消失後も数週間にわたり従属栄養細菌や一般細菌はほぼ検出されないこと、塩素が消失した状態で外部からわずかに従属栄養細菌を混入した場合にはすみやかに従属栄養細菌が増殖することが示された。一方、地下水など比較的水質が良好な原水を用いて、0.1mg/L 程度の濃度が残留するように塩素を添加した場合、微量の塩素が存在する条件下でも従属栄養細菌が検出されたことから、浄水処理の消毒において、十分な CT 値を確保する必要性が示唆されている。

5. 今後の課題

消毒副生成物やカルキ臭の抑制を目的として残留塩素を低減することの意義は大きいものの、同時に微生物学的安全性や快適性を確保することが不可欠である。今後、水道水の消毒副生成物や臭気を低減すると同時に配水系統における微生物再増殖を抑制するための、浄水水質の確保及び配水系統における衛生状態の確保という統合的な水質管理の方策を提示することが大きな課題であり、その成果は水道ビジョンに掲げられる「安心・快適な給水の確保」や、水道に対する信頼性のさらなる向上に資することが期待される。

参考文献および URL (2009 年 6 月時点)

- 1) 欧州委員会：飲料水指令 (The Drinking Water Directive)
http://ec.europa.eu/environment/water/water-drink/index_en.html
- 2) Owen Hydes: European regulations on residual disinfection, J. AWWA, **91**(1), pp.70-74 (1999).
- 3) P.W.M.H. Smeets, G.J. Medema and J.C. van Dijk: The Dutch secret: how to provide safe drinking water without chlorine in the Netherlands, Drink. Water Eng. Sci., **2**, pp.1-14 (2009).
- 4) Dick van der kooji, J. Hein M.van Lieverloo, Jon Schellart, and Peter Hiemstara: Maintaining quality without a disinfectant residual, J. AWWA, **91**(1), pp.55-64 (1999).
- 5) J. Hein M. van Lieberloo, Gertjan Medema and Dick van der kooji: Risk Assessment and risk management of faecal contamination in drinking water distributed without a disinfectant residual, J. Water Supply: Research and Technology - AQUA, **55**(1), pp.25-31(2006).
- 6) 山田俊郎, 秋葉道宏, 浅見真理, 島崎大, 国包章一: 我が国における飲料水健康危機事例の分析, 環境工学研究論文集, **45**, 563-570 (2008).
- 7) 国包章一, 伊藤禎彦, 大瀧雅寛, 島崎大, 西村和之, 船水尚行: 厚生科学研究費補助金地域健康危機管理研究事業「残留塩素に依存しない水道の水質管理手法に関する研究」(課題番号:H17-健康-一般-025), 平成 17-19 年度総合研究報告書 (2008).
- 8) (社)日本水道協会: 残留塩素管理に関する調査専門委員会調査報告書 (2009).

Investigation of related factors to biological stability in drinking water distribution system and the possibility of AOC removal by ion exchange

Bich Thuy Ly¹, Yumiko Ohkouchi², Sadahiko Itoh²

¹ Graduate School of Engineering; Kyoto University, Japan

² Graduate School of Global Environmental Studies, Kyoto University, Japan

Keywords: Water distribution system, Bacterial regrowth, Assimilable organic carbon (AOC), Disinfectant residual, Heterotrophic plate count (HPC), Ion exchange, MIEX

Abstract

This research aims at gathering the background information for a novel approach of applying a lower concentration of chlorine residual together with control of assimilable organic carbon (AOC) Japan. In the first sampling campaign, AOC was measured at the same time with residual chlorine and suspended bacterial, represented by heterotrophic plate count (HPC). In all samples, suspended HPC was very low from 0 to 1 CFU owning of a stable chlorine concentration higher than 0.1 mg/L in all samples, even the levels of AOC in all season were higher than proposed AOC levels required for biostability in previous research. The result implied that if a lower chlorine residual concentration was maintained in the system, a lower range of AOC would be needed. AOC changes at advanced water treatment plant were investigated. The results indicated that advanced water treatment technology including ozonation and biologically acitivated carbon process did not reduce AOC effectively. Further, the possibility of removing AOC by ion exchange using MIEX® (Magnetic Ion Exchange) was evaluated. The results showed that MIEX treatment could only remove 34 % AOC at the maximum, while over 50 % TOC could be removed at the same condition.

Introduction

Disinfectant residual in distributed water has been applied widely in many parts of the world including Japan to minimize bacterial regrowth and the risk from exogenous pathogen intrusions (Haas, 1999). Among disinfection processes, chlorine disinfection, the most general applied, is used in Japan. Chlorine disinfection, however, produces disinfection by-products, which is harmful and generates aesthetic problem such as bad tastes and odors. The level of residual chlorine in water supply systems, therefore, needs to be maintained in balance between disinfectant potency and those mentioned problem. Moreover, the increasing complaint of customers in some cities in Japan about chlorinous odors (Itoh *et al.*, 2007) increases the demand to reduce chlorine residual within drinking water distribution system.

After the disinfection by-products problem was come out (Rook, 1974), two major trends were formed to address the issue. One trend was finding alternative primary disinfectants (Volk *et al.*, 2002, McGuire *et al.*, 1999, Lykins *et al.*, 1986, etc...). The other trend, like in the Netherlands and Germany, focused on removing natural organic matter (NOM) prior to primary disinfection. NOM, which is well known to contain biodegradable organic matter (BOM), is also an important factor to support bacterial regrowth. This approach has been established by customers' high concern about aesthetic problem and high percentage of ground water resources with low NOM levels there (van der Kooij *et al.*, 1999, Hambsch, 1999). The current chlorine residual minimum limit in Japanese

regulation is 0.1 mg/L, a level that leads to customer complaints about odors with DOC smaller than 1 mg/L in Germany (Hambusch, 1999). In Japan, with the increasing customer concern about bad taste and odors, the approach of reducing chlorine residual with controlling BOM levels should be evaluated.

The indicator for BOM often used to evaluate biostability of drinking water are biodegradable dissolved organic carbon (BDOC) and assimilable organic carbon (AOC). In most case of Japan, the water delivery time is short, such as within 48 hours. Therefore, AOC, which can be consumed more rapidly by bacteria, could be more suitable indicator than BDOC, which often takes time to be consumed. van der Kooij (1992) showed that heterotrophic bacterial growth in non-chlorinated systems is limited when AOC is lower than 10 µg/L. LeChevallier *et al.* (1992) suggested that regrowth of coliform may be limited by AOC levels less than 50-100 µg/L in chlorinated systems. AOC concentration varies depending on water sources and water treatment processes.

In this research, to gather the back ground information on biostability in real distribution systems, chlorine residual, AOC and HPC were determined in two water distribution systems. Then, a survey of AOC removal efficiency in an advanced water treatment plant was conducted. Furthermore, MIEX, a promising technology for removing NOM was evaluated for AOC removal.

Materials and methods

Water sampling

All water samples were taken after flushing for 5 minutes. The glass sample bottles and related apparatuses were treated by heat sterilization at 250 °C for 2 hours except for AOC analysis. AOC bottles and AOC analysis related apparatuses were heat-treated at 580 °C for 4 hours. All samples were analyzed within 4 hours of sampling. For analyzing HPC and AOC, sodium thiosulphate as final concentration of 0.003% was added to neutralize chlorine.

Distribution system sampling

In the main sampling campaign, forty samples were taken in A distribution area. The water treatment process of the A distribution area includes coagulation, rapid sand filtration and chlorination of water from the Lake Biwa Canal. Twelve samples were also taken in the same area and B distribution area, to compare the seasonal fluctuation in finished water in January 2008. The period in May and June 2007 represents a high water temperature period, and the period in January 2008 represents a low water temperature period. The water treatment processes in B distribution area were shown in Figure 1.

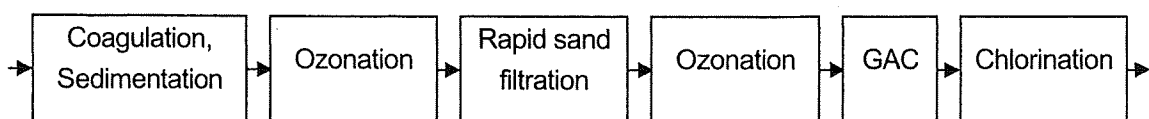


Figure 1 Treatment processes of water treatment plant

Water treatment plant sampling

Twice samplings were conducted in one water treatment plant, which includes nearly all recent applied technology in Japan (Figure 1). The water intake of this plant is from the Yodo River. The main parameters of the sampling were AOC and HPC. Samples were taken at all input and output points of each treatment process.

Ion exchange experiment

MIEX® (Magnetic ion exchange) a macroporous, acrylic ion exchanger with average particle size of 150-180 µm, was obtained from Orica Australia Pty Ltd.

Prior to ion exchange reaction, the resin was washed thoroughly by repeatedly mixing resin in Milli-Q at 150 rpm for 30-60 minutes until no further TOC from the resin released. To accurately divide the small dose of resin, the volumetric resin dose was calculated based on the dry density of resin suspension determined in the following way. A certain volume of the resin was filtered through 0.45 µm glass fiber filter (GF-B, Advantec), and put in a desiccator for 24 hours to determine the specific dry weight. Afterwards, the designed dose was weighed and divided into separated AOC-free containers. Each portion of resin was then, rinsed once with Milli-Q, soaked by 10 V/V of 10% NaCl for 1 hour, and rinsed 10 times again by Milli-Q before using for the next experimental step.

The tap water of Katsura Campus, Kyoto University was applied for the ion exchange experiment. The ion exchange treatment were conducted in 2 hours based on preliminary experiment that the equilibrium of ion exchange can be obtained. During ion exchange reaction, samples were shaken at 150 rpm. To determine the effect resin dose on TOC/AOC removal, the resin was added to tap water sample as 4, 8 and 12 mL/L doses, determined from pre-experiment. Samples before and after ion exchange treatment were collected for analysis after filtration through 0.22 µm filter, (Anodisc74, Whatman). The filter was prerinsed by 2-liters of Milli-Q to wash out all contaminated organic compounds. To determine the effect of pH on ion exchange treatment, HCl and NaOH (analytical grade) were used to adjust pH of 1 unit lower and higher than original tap water. Before AOC measurement of pH-adjusted samples, pH was readjusted to the initial pH range.

Analytical Method

Organic carbon: Total organic carbon was analysed using TOC 5000 analyzer (Shimadzu, Kyoto). AOC: AOC was measured according to the Japanese standard method (JWWA, 2001). Water samples were pasteurized for 30 minutes at 70 °C in water bath. To make sure that carbon is the only limiting nutrient, other nutrients were added including nitrogen, phosphorus and other trace elements by adding 2mL mineral solution. Samples were inoculated with *Pseudomonas fluorescens* strain P17 (ATCC 49642) and *Aquaspirillum* sp. strain NOX (ATCC 49643), simultaneously. Samples were incubated at 20 °C and the growth of each strain were monitored every 2 or 3 days during 14 - 20 days by pour plating on R2A at 20 °C. The average (CV ≤ 20%) or maximum number of colonies at steady-state and the yield factors determined with sodium acetate as a carbon source were used to calculate AOC concentration. The yield factors in this study were determined as 4.53×10^6 and 1.56×10^7 CFU/µg of C-acetate for P17 and NOX, respectively. Those factors are consistent with the value determined by van der Kooij (1990) of 4.1×10^6 and 1.2×10^7 CFU/µg of C-acetate for P17 and NOX, respectively.

Chlorines: Free and combined chlorines were analyzed by DPD-Ferrous titration method, according to standard method (APHA, 1998).

HPC: HPC bacteria were enumerated by pour plate procedure with R2A agar (Nippon pharmaceuticals Co., Ltd., Tokyo) after 7 days incubation at 20 °C.

Statistical Analysis

Statistical analyses were performed with GraphPad Prism version 4.0 for Macintosh (GraphPad software Inc., San Diego). To compare the differences between two groups of samples, a nonparametric *t*-test was performed. Significant differences were determined with a level of $p < 0.01$ in all analyses.

Results and Discussion

Suspended bacteria and affected factors to bacterial regrowth in two distribution area

The data (Table 1) showed that in all samples, suspended bacterial concentration was low, meeting Japanese standards. Free chlorine concentration was higher than 0.1 mg/L in all samples. Furthermore, combined chlorine was stable around 0.09 - 0.1 mg/L, contributing to the limited bacterial regrowth. AOC in B distribution area were slightly lower than in A distribution area at the same period. That can be because of the effect of advanced treatment process, including ozonation and GAC. AOC concentration was 60 ± 16 $\mu\text{g/L}$ in summer, and about three-fold higher than AOC in winter as predicted by lower bacterial activity within the system during low temperature periods. In both periods, AOC concentrations were much higher than 10 and 50-100 $\mu\text{g/L}$, the levels suggested by van der Kooij (1992) and LeChevallier *et al.* (1992), at which bacterial regrowth can be controlled without disinfectant and with chlorine residual, respectively. Attempts to reduce chlorine, should be done in conjunction with controlling AOC at a lower level.

Table 1 Parameters associated with bacterial regrowth in drinking water

| Parameter | A | | B |
|--|-----------------|--------------------|--------------------|
| | May-June 2007 | January 2008 | January 2008 |
| Sample numbers | n = 40 | n = 6 | n = 6 |
| HPC (CFU/mL) | 0.3 ± 0.5 | 0.0 ± 0.0 | 0.8 ± 1.9 |
| TOC (mg/L) | 1.8 ± 0.25 | - | $1.3 \pm 0.13^*$ |
| Chlorine residual (mgCl ₂ /L) | 0.52 ± 0.13 | $0.30 \pm 0.06^*$ | $0.31 \pm 0.11^*$ |
| Free chlorine | 0.4 ± 0.12 | 0.25 ± 0.06 | $0.21 \pm 0.10^*$ |
| Combined chlorine | 0.12 ± 0.02 | 0.088 ± 0.03 | 0.096 ± 0.02 |
| AOC ($\mu\text{gC/L}$) | 59.6 ± 15.6 | $173.9 \pm 43.5^*$ | $136.0 \pm 36.2^*$ |

Values presented here are mean and standard deviation.

* $p < 0.01$, compared with the samples taken in early summer in Kyoto distribution system.

Effect of water treatment processes on AOC removal

Table 2 shows that water treatment plant can reduce TOC to 40 - 47%. However overall water treatment plant can not remove AOC significantly. The most effective step to remove AOC was coagulation, 58-69%. This result is consistent with other research in Japan, and Finland showing reduction up to 75% in Osaka (Kasahara *et al.*, 2002) and 43-74% in Hokkaido (Kasahara, *et al.*, 1998), effectively removal in Finland (Lehtola *et al.*, 2002). The result is different with results in other areas where coagulation shows no significant effect on AOC (Sharp *et al.*, 2001, Volk *et al.*, 2002, Volk *et al.*, 2000). It is important to note that alum salts was reported to showed toxicity to against *P. fluorescens* (Lehtola *et al.* 2002), in this water treatment plant aluminum sulphate was used in precipitation stage. The effect of coagulation on AOC removal is therefore inconclusive here.

Table 2 Data about AOC and related parameters in water treatment plant

| | TOC (mg/L) | | AOC (µg/L) | | HPC (CFU/mL) | |
|---------------------------------|------------|---------|------------|---------|--------------|---------|
| | 19/12/08 | 14/1/09 | 19/12/08 | 14/1/09 | 19/12/08 | 14/1/09 |
| Raw water | 2.3 | 1.8 | 105.7 | 190.5 | 12167 | 8433 |
| After coagulation | 2.0 | 1.4 | 59.0 | 80.1 | 8133 | 810 |
| After 1 st ozonation | 2.0 | 1.4 | 112.6 | 117.6 | 89 | 4 |
| After filtration | 1.6 | 1.3 | 107.8 | 100.9 | 70 | 3 |
| After 2 nd ozonation | 1.7 | 1.3 | 130.1 | 121.3 | 2 | 1 |
| After GAC | 1.1 | 1.2 | 40.6 | 145.3 | 8 | 2 |
| After chlorination | 1.2 | 1.1 | 195.8 | 97.9 | 1 | 1 |

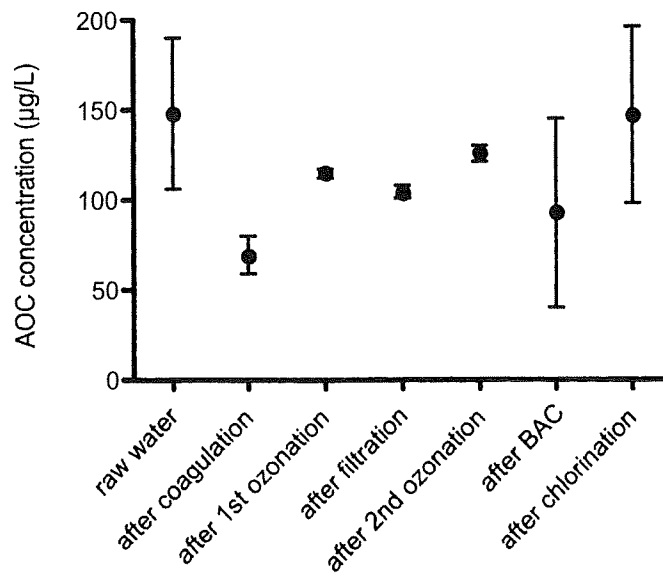


Figure 2 The change of AOC during water treatment process (value here are mean and their range)

Because there were no addition of disinfectant prior to GAC, GAC system therefore was recognized as bacterial activated carbon (BAC) system. Biological filtration and BAC have been reported to reduce AOC significantly in many research (Chien *et al.*, 2007, Volk *et al.*, 2002, Sharp *et al.*, 2001, van der Kooij *et al.*, 1989, van der Kooij *et al.*, 1982). BAC was normally found to give better effect than sand filtration (Volk *et al.*, 2002). In this research, sand filtration gave stable but small effect to reduce AOC. As shown in Table 2, the AOC removals during BAC process were widely different between twice sampling, AOC samples were first pasteurization at 70 °C in 30 minutes. Our previous experiment with AOC of BAC effluent samples showed that some bacteria could survive through the pasteurization process at 70 °C in 30 minutes. Escobal *et al.*, (2000), also provided an evidence for bacterial survivals after the same pasteurization process. These results suggested that the treatment of AOC samples contained obviously viable bacteria such as BAC effluent should be considered. In this sampling, we conducted AOC measurement of BAC samples with two different pretreatment procedures, pasteurization at 70 °C in 30 minutes and sterilization with 0.22 µm filter (Anodisc47) (Table 3). In the first sampling, AOC value with filtration pretreatment was much higher than the value with pasteurization. On the other hand, the AOC value in the second sampling data did not change significantly in both treatment procedures. The AOC elution from this filter was negligible (data not shown). Therefore, pretreatment by filtration

was considered to be a better method than pasteurization for BAC effluent samples. Based on these data in Table 3, BAC process did not give countable impact on AOC removal at this water treatment plant. The reason for that is low bacterial activity in low water temperature as reported in the case of nitrification in BAC (Vahala, 2002, Anderson, 2001). The mechanism of BAC effect on AOC removal, however, has been handled as a blackbox so it should be evaluated again in relationship to special characteristics of AOC at each site.

Table 3 Comparing of AOC with heat pasteurization and filter sterilization pretreatment

| | AOC (µg/L) | |
|----------|-----------------------------------|-----------------------------------|
| | pasteurization at 70 °C in 30 min | sterilization with 0.22 µm filter |
| 19/12/08 | 40.6 | 112.9 |
| 14/1/09 | 145.3 | 152.6 |

Ozonation increased AOC by oxidizing some parts of BOM into AOC as proven in previous research. Generally, chlorination was recognized as process to elevate AOC slightly, because chlorine has also an oxidation power. But in this research, chlorination effect on AOC was inconclusive. The different trend of AOC between first and second sampling also can be referred to the fluctuation of AOC component from the source of each time and also the effect of previous step, especially BAC.

Effect of ion exchange experiment on AOC removal

AOC and TOC concentrations in the examined water are presented in Table 4. The removals of TOC and AOC by MIEX treatment without change of initial pH were presented in Figure 3. By MIEX treatment, TOC can be reduced up to 47 % at the maximum dose of 12 mL/L (Figure 3). The TOC removal increased with the increase of resin dose. This result suggested that removable TOC fraction was still remained at the maximum dose here (12 mL/L) in the examined water. A further reduction of TOC can be obtained by applying a higher dose.

AOC, however was reduced at lower efficiency than TOC around 9 to 25% at all applied doses. The removal percentages were calculated based on AOC of filtrated sample. The removal increased with resin doses in the range of 0~8mL/L, but turned to decrease at maximum resin dose. The removable AOC fraction by MIEX in the examined water was estimated as approximately 25% at initial pH of 6.86.

Figure 4 shows that lower pH had a better effect on the removals of both TOC and AOC. Although higher pH was widely known to be favorable conditions for anion exchange because of the increasing charge density of target compounds. However, research also suggested that absorption of NOM on resin matrix also an important mechanism besides ion exchange mechanism for DOM removal (Croué *et al.*, 1999). Our result also suggested that the AOC removal of uncharged fraction by absorption mechanism was improved at lower pH. In our results, only 34 % AOC removal at the maximum was obtained at pH 5.84, while 51 % TOC removal could be achieved at this condition. Therefore, MIEX treatment was considered to have a moderate effect on direct improvement of biostability of drinking water. However, MIEX treatment could remove considerable TOC fraction remained in finished water, which related to disappearance of chlorine residual. Consequently, the amount of chlorine injected in water treatment plant or distribution networks can be reduced. Furthermore, as previously mentioned, TOC contains not only AOC fraction but also BOM fraction composed of relatively high molecular weight compounds, which cannot be measured as AOC. Thus, there is a strong possibility that BOM removal can also

contribute indirectly to biostability improvement of finished water. Our results suggested that further research to evaluate biostability improvement including BOM removal effect by ion exchange would be needed, in addition to determine the optimum conditions for ion exchange, such as pH, resin dose, and contact time.

Table 5 TOC and AOC removal by MIEX treatment

| Samples | pH | TOC (mg/L) | TOC removal (%) | AOC (µg/L) | AOC removal (%) |
|-------------------|------|------------|-----------------|------------|-----------------|
| Initial tap water | 6.86 | 1.10 | | 75.7 | |
| Filtred tap water | | 1.10 | | 70.5 | |
| pH-1*, 8 mL/L | 5.84 | 0.54 | 51 | 46.7 | 34 |
| pH+1**, 8 mL/L | 7.77 | 0.64 | 42 | 66.9 | 5 |
| 4 mL/L | | 0.71 | 36 | 62.9 | 11 |
| 8 mL/L | | 0.67 | 39 | 53.1 | 25 |
| 12 mL/L | | 0.59 | 47 | 64.4 | 9 |

* Sample with pH adjustment 1 unit lower than initial pH value

** Sample with pH adjustment 1 unit higher than initial pH value

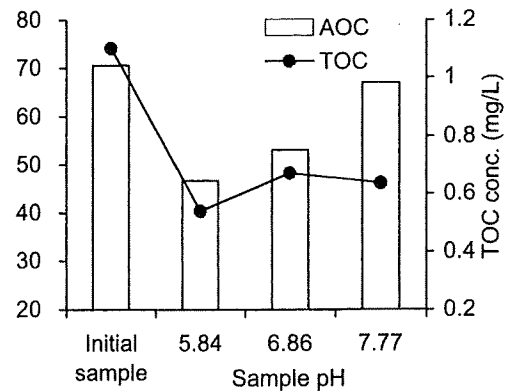
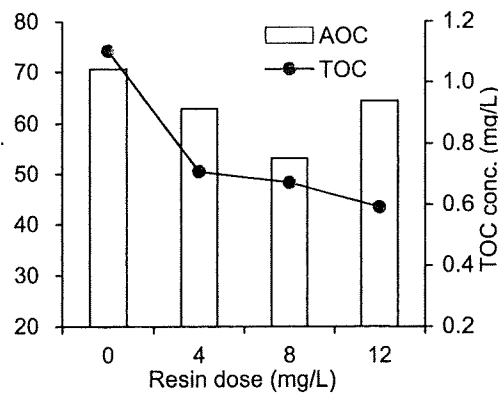


Figure 3 Effect of MIEX dose on AOC removal **Figure 4** Effect of initial pH on AOC removal

Conclusions

Drinking water in investigated area in Japan has a low suspended bacteria level, meeting Japanese standards. The low suspended bacteria concentration was obtained because of a stable free chlorine and combined chlorine. AOC was higher than the level that bacterial regrowth can be controlled under chlorine residual condition. To reduce chlorine concentration in the system with guarantee the safety of water, a lower AOC is needed.

The advanced water treatment plant with ozonation and BAC system did not significantly reduce AOC. Coagulation process reduced AOC levels up to 60%, consistent with other research in Japan, and different with other areas. The water process would still need some upgrade in order to further reduce AOC. The mechanism of coagulation and biological process especially BAC should be studied further to increase the efficiency.

The ion exchange using MIEX could remove up to 50% TOC, and 34 % AOC. At lower pH, MIEX have higher AOC and TOC removal efficiency.

Acknowledgements

The authors deeply thank Tsukasa Kusano, Suguru Ishikawa, Yoshihiro Kawano (Kyoto

University) for their enthusiastic support during this research. The personnel support for water sampling in water treatment plant are appreciated. Our special thanks to Dr. Shinya Echigo (Kyoto University) for his valuable advice about ion exchange experiments. This research was partly supported by Grant-in-aid for Scientific Research from the Ministry of Health, Labour and Welfare (H17-Health-025).

References

- Andersson, A., Laurent, P., Kihn, A., Prévost, M., and Servais, P., "Impact of temperature on nitrification in biological activated carbon (BAC) filters used for drinking water treatment", *Water Res.*, 35(12) 2923-2934 (2001).
- American Public Health Association (APHA), AWWA, WEF, "Standard Methods for the Examination of Water and Waste Water", 20th edition, APHA, Washington DC, USA (1998).
- Boyer, T. H., and Singer, P. C., "Removal of natural organic material by a magnetic ion exchange resin", *Water Sci. Technol.: Water Supply*, 8(2), 167-172 (2008).
- Croué, J. -P., Violleau, D., Bodaire, C., and Legube, B., "Removal of hydrophobic and hydrophilic constituents by anion exchange resin", *Water Sci. Technol.*, 40(9), 207-214 (1999).
- Haas, C. N., "Benefits of using a disinfectant residual", *J. Am. Water Works Assoc.*, 91(1), 65-69 (1999).
- Hamsch, B., "Distributing groundwater without a disinfectant residual", *J. Am. Water Works Assoc.*, 91 (1), 81-85, (1999)
- Escobar, I. C., and Randall, A. A., "Sample storage impact on the assimilable organic carbon (AOC) bioassay", *Water Res.*, 34(5), 1680-1686 (2000).
- Itoh, S., Shiro, S., Hirayama, N., Echigo, S., and Ohkouchi, Y., "Factors related to citizens' satisfaction with tap water and analysis of improvement needs in water supply system", *Environ. Sanit. Eng. Res.*, 21(1), 9-19 (2007) (in Japanese).
- Japanese Water Work Association (JWWA), "Standard Method for the Examination of Water", JWWA (2001) (in Japanese).
- Kasahara, S., Tsukiyama, M., and Ishikawa, M., "Fundamental behaviors of assimilable organic carbon and bacterial regrowth potential in Yodo River through water treatment processes", *J. Jpn. Soc. Water Environ.*, 25 (1), 605-612 (2002) (in Japanese).
- Kasahara, S., Aizawa T., Watanabe, Y., Ozawa, G. and Okabe, S., " Performance evaluation of advanced water treatment system using AOC as an indicator", *J. Jpn. Water Works Assoc.*, 67 (11), 12-21 (1998) (in Japanese).
- LeChevallier, M. W., Becker, W. C., Schorr, P., and Lee, R. G., "Evaluating the performance of biologically active rapid filters", *J. Am. Water Works Assoc.*, 136-146 (1992).
- Lehtola, M. J., Miettinen, I. T., Vartiainen, T., and Martikainen, P. J., "Changes in content of microbially available phosphorus, assimilable organic carbon and microbial growth potential during drinking water treatment processes", *Water Res.*, 36, 3681-3690 (2002).
- Lykins, B. W. Jr., and Griese, M. H., "Using chlorine dioxide for trihalomethane control", *J. Am. Water Works Assoc.*, 78 (6), 88-93 (1986).
- McGuire, M. J., Lieu, N. I., Pearthree, M. S., "Using chlorite ion to control nitrification", *J. Am. Water Works Assoc.*, 91 (10), 52-61 (1999).
- Rook, J., "Formation of Haloforms during chlorination of natural water". *Water Treatment and Exam.*, 23: 234 (1974).
- Trussell, R.R., "Safeguarding distribution system integrity", *J. Am. Water Works Assoc.*, 91 (1), 46-54, (1999)

- Sharp, R. R., Camper, A. K., Crippen, J. J., Schneider, O. D. and Leggiero, S. "Evaluation of drinking water biostability using biofilm methods", *Environ Eng*, 127 (No. 5), 2001.
- Vahala, R., "Two-step granular activated carbon filtration in drinking water treatment", PhD Dissertation, *Helsinki University of Technology Laboratory of Water and Wastewater Engineering* (2002).
- van der Kooij D., van Lieverloo, J., Hein, M., Schellart, J., Hiemstra, P. "Maintaining quality without a disinfectant residual", *J. Am. Water Works Assoc.*; 91(1), 55-64, (1999).
- van der Kooij D., "Assimilable organic carbon as an indicator of bacterial regrowth", *J. Am. Water Works Assoc.*, 84, 57 – 87 (1992).
- van der Kooij, D., Hijnen, W.A.M. and Kruithof, J.C., "Effects of ozonation, biological filtration and distribution on the concentration of easily assimilable organic carbon (AOC) in drinking water". *Ozone Sci. Eng.*, 11(3), 297–311 (1989).
- van der Kooij, D., Visser, D. A. and Hijnen, W. A. "Determining the concentration of easily assimilable organic carbon in drinking water", *J. Am. Water Works Assoc.*, 74(10), 540-545 (1982).
- Volk, C., Hofmann, R., Chauret, C., Gagnon, G.A., Ranger, G., and Andrews, R.C., "Implementation of chlorine dioxide disinfection: Effects of the treatment change on drinking water quality in full-scale distribution system", *J. Environ. Eng. Sci.* 1: 323-330 (2002).
- Volk, C., Bell, K., Ibrahim, E., Verges, D., Amy, G. and Lechevallier, M., "Impact of enhanced and optimized coagulation on removal of organic matter and its biodegradable fraction in drinking water", *Water Res.*, 34 (12), 3247-3257 (2000).

高度浄水処理水を超える水道水質ニーズとリスク管理のゆくえ

Consumers' needs for the quality of drinking-water treated with advanced process
and the future of risk management

伊藤禎彦 (京都大学)

Sadahiko ITOH (Kyoto Univ.)

1. 水道水質に対する市民の評価とニーズ

浄水処理プロセスにおいていわゆる高度処理の導入が進められてきており、わが国で何らかの高度処理が行われている水道水は平成 18 年度現在で 25.5% (浄水量ベースで見た百分率) に達している¹⁾。関西地方でも、オゾン・活性炭処理を備えた高度処理プロセスを、例えば大阪市では 2002 年に、大阪府では 2000 年に導入を完了した。この結果、水道水の安全性に関する指標値が改善されたほか、臭気・味といったおいしさも大きく向上した。

この結果、市民向けイベントにおいて「きき水アンケート」を行うと、水道水とボトルウォーターの区別がつかないか、前者の方をよりおいしく感じるとする結果がしばしば報告される。これはいわば高度浄水処理プロセスの実力ということができ、水道事業者が自信を深める場面である。

しかし水道水利用の実態はどうだろうか。図 1 を見ていただきたい。これは大阪市民を対象として、日常的に飲用している水について回答を求めた結果である²⁾。飲用形態が水道水直接という人の割合は全体で 20% 程度、女性ではわずか 12% であった。科学的に見て十分安全な水道水を供給しているにも関わらず、特に女性では 8 人に 1 人しかそれを利用しないという事実は、水道事業体に重い課題を突き付けていると認識する必要がある。

この例のように、高度処理を導入してから数年あるいはそれ以上が経過したにもかかわらず、市民はなお水道水質に不安を抱き続けており蛇口になかなか回帰してくれない、あるいは水道水離れがさらに進行しているように見える、という悩みを抱えた水道事業体は少なくない。図 2 は、大阪市における異臭味に対する苦情件数の統計³⁾であるが、皮肉なことに、高度浄水処理の全量導入が完成し水道水質が大きく改善した時期から苦情件数が増大してきている。市民の水道水質に対する見方が厳しくなりそのニーズも増しているとみることができそうである。

我々は、このような市民の意識に関する社会心理学的な分析を行うとともに、科学的に安全な水道水を安心して飲用してもらうためのコミュニケーション手法に関する検討を行ってきた。図 3 は水道水に対する満足度の因果モデルを構築した結果である²⁾。構成概念間の数値 (因果係数) は関係の強さを意味する。本モデルにより、どの因子に働きかければ満足度が効果的に向上するかを議

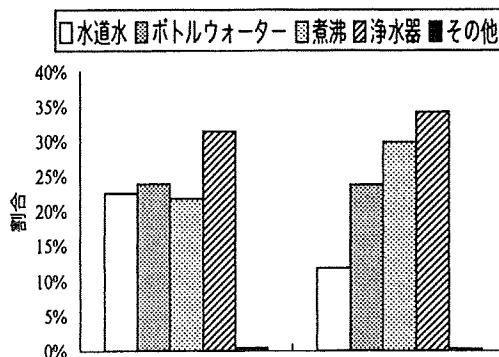


図 1 飲用形態の割合²⁾
(2005 年 11~12 月京都大学調査、対象：大阪市)

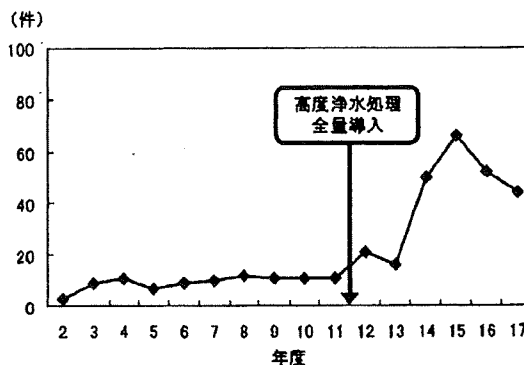


図 2 異臭味に関する苦情件数³⁾
(お客様の請求(苦情・問合せ)により水質試験所が水質試験を行った件数)

論することが可能となる。こうした分析を通して、市民とのコミュニケーションといったソフト面だけではなく技術的課題（ハード面）についても整理した。

以上の経緯や事情、今後の方向性を大阪市河谷幸生氏に紹介していただく。特に、高度浄水処理を導入したにもかかわらず、なぜ新たに「大阪市水道おいしい水計画」^{3,4}を作成する必要があったのか、新規に実験プラントを建設し本年度から調査研究を開始するがその目的は何かなど注目していただきたい。顧客満足度という指標で見た場合、オゾン・活性炭という高度処理プロセスが決して終着点ではなく、水道技術の長い歴史からみるとひとつのステップにすぎないことが理解されるであろう。

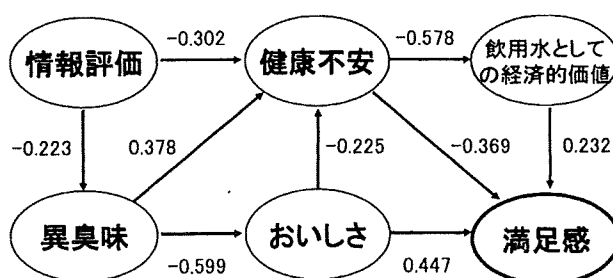


図3 「水道水に対する満足感」の心理モデル²⁾

2. 残留塩素規定の見直しとリスク管理高度化の必要性

図3の分析によって、満足感には水道水の「臭気」や「おいしさ」が大きく影響していることがみてとれた（もうひとつは「健康不安」）。市民感覚からすれば至極当然のことである。高度処理によって、かび臭や下水臭などがほぼ解決された今、塩素消毒によって生成するカルキ臭が残された大きな問題といえることができる。

水道事業体はこれまで「塩素においては安全のしるし」という立場をとり続けてきた。水質基準上もカルキ臭は規制の外に置かれている。水質基準項目の「臭気」および水質管理目標設定項目の「臭気強度」は、カルキ臭を除く臭気を測定するものである。そこには、塩素で消毒しているのだから少しのカルキ臭があるのは当然という考え方があった。しかし上述したことから、少なくとも現在のわが国の水道において、水道水にカルキ臭があるのは当然とする考え方では、人々はさらに勝手に水道から離れていってしまうのではないかと、「水道ビジョン」⁵⁾が掲げる「市民が喜んで支える水道」とは反対の方向に向かっているのではないかと危惧されるどころだ。

このような問題意識を踏まえて、国立保健医療科学院 島崎大氏に紹介いただく内容は、各国消毒の現状、厚生労働省を含む日本の動き、平成17年度から行われてきている厚生労働科学研究の目的と内容^{6,7)}などである。その中には、群馬県片品村の特設申請例（2007年に構造改革特別区域の認定申請として、残留塩素濃度基準を0.05 mg/L程度とするよう規制緩和する要望が提出されたもの）も含まれよう。給水栓水で0.1 mg/L以上の残留塩素（遊離型の場合）を求めているわが国の規定を今後も維持するかどうかという検討が始まっている点に注目していただきたい。

もちろん、塩素は消毒剤として人々の衛生を長年にわたって確保してきたという実績があるのであって、これを安易に手放すのは誤りである。我々の研究室では、塩素使用の継続を前提として、塩素を使用してもカルキ臭のない水道水を得る可能性について検討を行っている。「おいしい水指標」のひとつとして水道水の臭気強度の目標値の設定、カルキ臭前駆物質の分解・除去、微生物的安定性の観点から、極低濃度の塩素存在下で許容できるAOC（Assimilable Organic Carbon; 同化可能有機炭素）濃度の探索などである。

仮に、残留塩素濃度を最小限としたりなくしたりすることを考えた場合、微生物感染リスクがゼロではないという現実と直面することになる。もちろん現在でも感染リスクはゼロではありえないが、少なくとも計算上、感染リスクは増大すると評価されることとなる。許容リスクレベルを設定し、リスクのアセスメントとマネジメントを高度化させていくという覚悟が必要になる。

この点で実務上、世界でもっとも進んでいるのがオランダである。よく知られているようにこの国では浄

表1 オランダにおける微生物に関する水道水質基準 (2001年施行)⁹⁾

| 番号 | 項目 | 基準値 |
|----|---|-------------------|
| 1 | QMRAによって、腸管系ウイルス、クリプトスポリジウム、ジアルジアの年間感染リスクが 10^{-4} 以下と評価されること | |
| 2 | 大腸菌と腸球菌 | 0 CFU/100 mL |
| 3 | アエロモナス | 1000 CFU/100 mL以下 |
| 4 | 22°Cにおける形成集落数 | 100 CFU/100 mL以下 |
| 5 | 大腸菌群とクロストリジウム | 0 CFU/100 mL |

水処理過程および配水過程に塩素を使用していない。2005年には、最後の塩素消毒がUV処理に置き換えられた⁸⁾。

このためこの国では、微生物感染リスク管理に関する実務を高度に展開してきている。2001年からオランダ

で施行されている水質基準のうち、微生物に関する項目を表1に示す⁹⁾。いくつかの微生物名が並んでいるが、注目されるのは、腸管系ウイルス、クリプトスポリジウム、ジアルジアについてその感染リスクを年間 10^{-4} 以下とする項目が存在することである。このような項目は世界中でオランダにしか存在しない。そしてこれを可能にする手法が、微生物の定量的リスク評価(Quantitative Microbial Risk Assessment; QMRA)と呼ばれるものである^{10,11)}。

すなわち各水道会社(2008年現在オランダ国内に10社)は、法律によって、自分たちが供給する水道水の微生物感染リスクを定量評価し提示することが義務付けられている。そして、感染リスクが年間 10^{-4} 以下の安全な水道水を供給する義務を負う。

QMRA手法を展開するこの分野では、水道水中大腸菌などの測定結果がゼロであることをもって、微生物感染リスクもゼロであると主張するのは、非常に初歩的なレベルと認識されている。これは、微生物に係る一般的な検査水量(1 mL~10 L)と、感染リスクを年間 10^{-4} 以下を達成するのに必要な微生物濃度レベルを比較するだけでも容易に理解できることである。たとえば大腸菌の場合、検査水量は100 mLであり、これを1年間行っても検査した水量は36.5 Lにしかならない。これに対し感染リスク 10^{-4} 年に対応する微生物濃度レベルは100~10,000 m³の中に数単位である(ものが多い)。通常の検査でゼロという測定値をいくら積み重ねてもリスク管理の必要水準には遠く及ばないのである(この議論は正確には微生物を特定して行う必要がある。しかし感染に必要な摂取微生物数には閾値はないと仮定するので、本質的に差は生じない)。この分野では、ゼロという測定値は微生物が本当にいないのではなく、非常に小さい値で存在しうると考える。

上述した水道における将来課題に取り組んでいくためには、やはり、リスクと正面から向き合い、これを管理していくという姿勢が避けられない。

3. 微生物リスクと化学物質リスクの統一評価へむけて

微生物感染リスクの評価について述べたが、これを題材として将来の飲料水の安全管理・リスク管理の方向性について考えてみたい。

塩素消毒は、微生物リスクを低減させるが、水道水中にトリハロメタンなどの化学物質による発がんリスクを新たに作り出すことは周知のとおりである。消毒技術とはこのようなジレンマの中にある技術である。概念を図4に示す。

この図の概念をもとに、消毒効果の定量的評価、消毒剤の最適な注入量の決定、代替消毒剤の選択などが行えると良い。このような消毒における化学物質リス

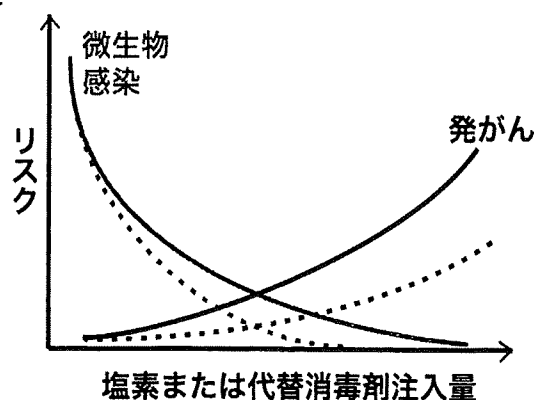


図4 消毒にともなうリスクの低減と生成概念図 (破線は塩素代替消毒剤として望ましい特性を示す)

クと微生物リスクをどうバランスさせるかという問題は従来から議論されてきた。また、図に描いた破線は、代替消毒剤として望ましい特性を示している。すなわち、微生物リスクが速やかに低減し、副生成物に起因するリスクが生成しにくい特性をもつ消毒剤があれば好都合というわけである。しかし実は、これらを評価する作業は容易なことではない。縦軸のリスクを定量化しようとする際、化学物質リスクと微生物リスクの内容・質が異なり、同一の指標を用いた評価が困難だからである。

微生物リスクから考えてみよう。微生物による健康影響は、一般に、感染→罹患→死亡の順をたどる。感染とは、ヒトの体に微生物が住み着いて増えることを意味し、必ずしも症状をとまなうわけではない。そして感染したヒトのごく一部が病気の状態となる。さらにそのごく一部のヒトが死亡する場合がある。そして微生物リスクの評価では、エンドポイントを感染という段階に設定する。

生じた感染事象を死亡リスクに変換する場合、従来、感染後の罹患率、死亡率データを参考にして、しばしば感染したヒト（または罹患したヒトを対象とする場合もある）の死亡率を1%や0.1%に設定するということが行われてきた^{12,13)}。

しかし、リスク評価の対象を死に限定するこの方法では、定量化されない多くの健康影響を見逃すことになってしまう。微生物に感染し発症した場合、下痢や発熱が1週間程度続くがその後回復することが多く、死に至るケースはほとんどないという微生物も多い。したがって死亡リスクだけを評価指標とすると、微生物感染による健康影響のごく一部をとらえるに過ぎず、過小評価してしまう可能性が高い。微生物の種類によって疾患の深刻さや死亡率が大きく異なる点が特徴であり、同じ病原体でも種によって毒性が大きく異なることもあるのである。

一方、化学物質の場合も、健康影響の種類は実に多様であるが、毒性評価にあたっては病変が起きたか否かに評価ポイントがあり、病変の重みづけは通常なされないと考えられることができる。わずかにTDI (Tolerable Daily Intake ; 耐容1日摂取量) 算出のための不確実係数を設定する際に、発がん性といった毒性の種類が重篤である場合に10を追加するくらいである（非発がん病変に対し10以外の値が設定される場合もある）¹⁴⁾。

生じた健康影響を死亡リスクに変換する場合、がんは原則として致死的であると考え、発がんリスクをそのまま死亡リスクとみなす（異なる考え方をとる場合もある）。しかし非発がん影響の場合、そもそも（死亡）リスクにカウントされないということになる。

以上のような問題点を解決する指標の一つが障害調整生存年数 (Disability-adjusted Life Years : DALYs) である。DALYs は、特定の疾病要因による異なった健康影響をそれぞれ評価して統合する、または異なる要因の影響を比較するための共通の指標になりうるものである^{13,15)}。

DALYs は、早期死亡によって失われた生存年数 (Years of Life Lost : YLL) と、障害をもって生存する年数 (Years Lived with Disability : YLD) との和で表し、障害の重篤度で重み付けを行っている。その単位は年である。

$$\text{DALYs} = \text{YLL} + \text{YLD} \quad (1)$$

損失生存年数 YLL は、ある集団における生存年数の全損失を意味し、次式で表される。

$$\text{YLL} = \sum_i e^*(a_i) \sum_j d_{ij} \quad (2)$$

ここに、i: 異なる年齢層に対する添字、j: 異なる症例群に対する添字、 d_{ij} : 年齢層ごとの致命的な症例数、 $e^*(a_i)$: その年齢層の平均余命。

障害生存年数 YLD は、ある集団における症例数に疾病の平均継続時間と疾病の重篤度を反映する 0 (完全に健康) から 1 (死亡) の重み係数を乗じて、次式で表す。

$$\text{YLD} = \sum_j N_j L_j W_j \quad (3)$$

ここに、j: 異なる症例群に対する添字、N: 患者数、L: 疾病の継続時間、W: 重篤度。重篤度は、表 2 に示す七つの障害等級¹⁵⁾に分類されている。

すなわち DALYs は、疾病と傷害によって引き起こされる死亡に加えて、死亡に至らないが、日常生活に種々の制限が加わり健康的な生活が阻害されることを定量化しているといえる。

この DALYs を指標として、現在、世界でどのような取り組みが進行中であるかを東京大学 渋谷健司氏によって紹介いただく。特に、世界の疾病負担 (Global Burden of Disease : GBD) の定量化、その中における DALYs の役割に注目していただきたい。DALYs が、地球規模の環境問題に対応していく際のひとつの指標であることが理解されるであろう^{16,17)}。上水道のみならず、環境工学分野にいる者として、その考え方・手法を学びたい。

さて筆者は、水道水中の化学物質および微生物のガイドライン値・基準値が、将来この DALYs という指標によって統一化される方向にあると考えている。

すでに DALYs を用いて、図 4 に示す消毒処理のジレンマの評価に成功した例がある。塩素では不活化できないクリプトスポリジウムをオゾンで不活化することを想定しよう。一方、オゾン処理によってさまざまな副生成物が生成する¹⁸⁾が、ここでは発がん物質である臭素酸イオンをとりあげる。この利害得失に対して、Havelaar ら¹⁹⁾は DALYs を指標としてオランダにおける評価を試みた。この成果は、わが国の水質基準設定過程で検討されたクリプトスポリジウム等耐塩索性病原微生物対策の考え方に生かされている^{18,20)}。

はじめに、クリプトスポリジウムによる感染者 1 人あたりの健康影響度は 1.03×10^3 DALYs と求められた。その内訳をみると、 $YLL = 0.0937 \times 10^3$, $YLD = 0.937 \times 10^3$ と、YLDの方が YLL より 1 オーダー大きかった。クリプトスポリジウム感染では、死亡よりも水様性下痢症状による健康影響の方が主体であるということの意味する。微生物感染の影響を死亡リスクだけで評価すると、リスクを過小評価してしまう例といえる。

次に、オゾン処理による臭素酸イオンの生成に伴う DALYs が評価された。臭素酸イオンは遺伝子障害性を有する発がん物質であり、生涯を通じた発がんリスク増分が 10^5 (1/100,000 人)となるレベルで基準値 (WHO ではガイドライン値) が設定されている。水道水に基準値濃度の臭素酸イオンが含まれているとし、その摂取によって生起する腎細胞がんを評価対象とした。この結果、腎細胞がんの年間の DALYs は 1.4×10^6 DALYs と計算された。なおこの場合、YLD は YLL に比べて十分小さいので YLD は無視できる量である。すなわち、発がん物質である臭素酸イオンによるがんの許容発生率 10^5 は、障害調整生存年数でみると 1.4×10^6 DALYs に相当する (年間値として算出していることに注意) ということになる。

いま仮に、原水中クリプトスポリジウムオーシストの濃度を 1 個/10L とする。これを無処理のまま給水したとすると、年間の感染確率は 1.5×10^{-4} 年と求められる (Hass らが示した用量反応関係式を用いる)¹⁸⁾。上記の通り、感染者 1 人あたりの健康影響度は 1.03×10^3 DALYs であるから、1 人あたりの年間の健康影響度は 1.5×10^4 DALYs と計算される。水道水中濃度が 1 個/10L であった場合には、それが供給されている地域においてこれだけのリスクが存在するということである。

さて、この 1.5×10^4 DALYs という値は、上記の臭素酸イオンによる腎細胞がん生成に関する 1.4×10^6 DALYs の値を大きく上回っている。すなわち、オゾン処理を行ってクリプトスポリジウムを不活化することは、たとえ基準値濃度レベルの臭素酸イオンを生成したとしても大きな利益があることを意味している。

また、次のように指摘することもできる。すなわち、クリプトスポリジウムオーシストを 1 個/10L 濃度で含む水道原水に対して、オゾン処理に限らず、浄水処理で 2 log の除去 (99%除去) を行えば、概ね 10^5 発

表 2 障害等級と疾病事例¹⁵⁾

| 等級 | 重み | 事例 |
|----|-----------|-------------|
| 1 | 0.00~0.02 | 顔面白斑、低体重 |
| 2 | 0.02~0.12 | 下痢、咽頭炎 |
| 3 | 0.12~0.24 | 不育症、関節炎、狭心症 |
| 4 | 0.24~0.36 | 切断、聴覚消失 |
| 5 | 0.36~0.50 | ダウン症候群 |
| 6 | 0.50~0.70 | うつ病、盲目 |
| 7 | 0.70~1.00 | 精神病、痴呆、四肢麻痺 |

がんリスクレベルから計算される DALYs と同程度となることがわかる (ただし、上記の例では DALYs は腎細胞がんに対する値であることに注意)。すなわち、発がん物質に適用されているリスク管理レベルと同等水準を求めるならば、原水中クリプトスポリジウムオーシスト濃度が 1 個/10 L である場合には、2 log 除去の性能を有するろ過処理等の浄水処理操作が必要であると指摘することができる。

以上は DALYs という指標を用いることで、化学物質と微生物という異なるリスク因子を比較した例である。そして病原微生物に対する浄水処理上の制御目標レベルを設定することもできている。DALYs という値を用い、統一的に、基準値というリスクの許容レベルを設定することが可能になることが理解できよう。

DALYs を用いたこのような取り組みは、水分野よりも食品の安全評価の分野でより進んでいる。WHO (世界保健機関) と FAO (国連食糧農業機関) とのジョイントプロジェクトも存在し、当面評価対象とする化学物質と微生物を選択した上で DALYs 指標を用いた GBD の定量化の試みが進められている²¹⁾。

飲料水の安全評価の分野では、例えば WHO では数年前から取り組んできているが、現在までに数種類の微生物と化学物質を取り上げて定量化作業が行われた²²⁾。

DALYs の定量評価はそれ自体チャレンジングな試みであり、水道水中の化学物質および微生物のガイドライン値・基準値が、DALYs 指標によって統一化されるのは決して近い将来とはいえない。しかし、確実にその方向に向かって歩が進められているのは事実であり、今後も注目していきたい分野である。また DALYs の定量評価は、国・地域を限定して行うのが現実的であり、わが国での調査研究の推進が望まれるところである。

参考文献

- 1) 日本水道協会水道統計編纂委員会: 水道統計の経年分析 (平成 18 年度), 水道協会雑誌, Vol. 77, No. 8, pp. 103-141, 2008.
- 2) 伊藤禎彦, 城征司, 平山修久, 越後信哉, 大河内由美子: 水道水に対する満足感の因果モデル構築と満足感向上策に関する考察, 水道協会雑誌, Vol. 76, No. 4, pp. 25-37, 2007.
- 3) 大阪市水道局: 大阪市水道おいしい水計画—スマイルウォータープロジェクト— アクションプラン, 60p., 2007.
- 4) 大阪市水道おいしい水計画推進会議: 大阪市水道おいしい水計画 スマイルウォータープロジェクト基本プラン, 20p., 2006.
- 5) 厚生労働省健康局: 水道ビジョン (平成 20 年 7 月改訂), 60p., 2008.
- 6) 厚生労働科学研究費補助金健康科学総合研究事業, 残留塩素に依存しない水道の水質管理手法に関する研究 平成 18 年度総括・分担研究報告書, 2007.
- 7) 厚生労働科学研究費補助金研究成果等普及啓発事業研究発表会, 残留塩素に依存しない新しい水道システムの構築に向けて, 31p., 2007.
- 8) Smeets, P., Medema, G., van Dijk, H., The Dutch Secret: Safe drinking water without chlorine in The Netherlands, Symposium on Alternative Approaches to Disinfection for Drinking Water, 18p., 22-23 September, 2008, Ontario, Canada.
- 9) Staatsblad van het Koninkrijk der Nederlanden 53p., 2001.
- 10) Medema, G., Loret, J. F., Stenstrom, T.-A., Ashbolt, N. eds.: MICRORISK, Quantitative Microbial Risk Assessment in the Water Safety Plan, 2006.
- 11) Haas, C. N., Rose, J. B., Gerba, C. P. 著, 金子光美監訳: 水の微生物リスクとその評価, 技報堂出版, 452p., 2001.
- 12) 金子光美編著: 水質衛生学, 技報堂出版, 579 p., 1996.
- 13) Fewtrell, L., Bartram, J., 金子光美, 平田強監訳: 水系感染症リスクのアセスメントとマネジメント, WHO のガイドライン・基準への適用, 技報堂出版, 434p., 2003.
- 14) 厚生科学審議会生活環境水道部会水質管理専門委員会: 水質基準の見直しにおける検討概要, 2003.
- 15) Murray, C. J. L., Lopez, A. D.: *The Global Burden of Disease and Injury Series*. Vol. 1, 2. Harvard