

効果はあまり大きくはないと考えられた。高度浄水処理施設を導入したとしても、クリプトスポリジウム等への対策として、定期的な原水の検査やろ過水濁度の管理などが依然として重要であると考えられた。

D3-2 デジタル PCR による水道原水中のクリプトスポリジウムの定量

デジタル PCR 法を用いて、標準試料を用いること無く、水道原水試料中のクリプトスポリジウムオーシストを定量することが可能であった。既存のリアルタイム PCR 法と同様の定量値が得られ、いずれの方法でも定量が可能と考えられた。

D3-3 相模川河川水を用いた qRT-PCR 法と検鏡法によるクリプトスポリジウム測定と比較

相模川河川水を試料として遺伝子検出法の応用を進めた。検鏡法と qRT-PCR 法の比較では 73%の結果が一致して問題なく、遺伝子検出法がより高感度であった。qRT-PCR 法で得られた遺伝子増幅産物の塩基配列を決定したところ、相模川ではブタ由来の *C. suis* が多く検出され、相模川の原虫汚染はこれらの支川の影響が大きいと推察された。遺伝子増幅産物の塩基配列決定によるクリプトスポリジウムの種の同定は、調査流域の汚染原因の推定に有用と考えられた。

D3-4 粉体ろ過法の細菌濃縮への応用

粉体ろ過法の大腸菌、嫌気性芽胞菌への応用を実環境水で実証した。大腸菌では、X-MG 培地を用いた混釈培養法で、界面活性剤 Tween80 を 0.5% 添加したリン酸緩衝水で遊出することで従来法と同等の回収が得られた。嫌気性芽胞菌でも従来法と対応が得られ、嫌気性芽胞菌の大容量試料の加熱法として粉体ろ過による濃縮法は有効であった。

D3-5 フィルター上のクリプトスポリジウム分散性

検鏡用メンブランフィルター上でのオーシストの分散性について、クリプトレーサーを用いて検討を行った。界面活性剤有、10 分静置、ほとん

ど吸引圧力をかけずにゆっくりとろ過、ステンレス製フィルターホルダー使用の条件で、クリプトレーサーが均一に分散し、MPN 法の適用を可能とする最適ろ過方法を確立できた。

D3-6 クリプトスポリジウム症およびジアルジア症の発生動向

クリプトスポリジウム症とジアルジア症の流行状況を把握するため、届出の 2006～2013 年を集計した。幸いに水道が原因と思われる事例はなかったが、2010 年にスウェーデンで水道を介したクリプトスポリジウムによる大規模集団感染が生じており、未だに注意を要することに変わりはなかった。この事故の後に紫外線消毒が導入され、国内でも同様の対策導入を推奨すべきと考えられた。問題の浄水場では前オゾン処理が導入されていたが、この集団感染の経験と国内浄水場の計算から、オゾン処理には依存できないと考えられた。小規模貯水槽水道における、蛇口を介したジアルジアの水系集団感染が報告され、ビル建築物の貯水槽の管理を徹底することが必要と考えられた。

E. 参考文献

- 1) 日本水道協会: 上水試験方法(微生物編)、pp.47～51、2011
- 2) 金子光美監訳: 飲料水の微生物学より、水道水中の従属栄養細菌のモニタリング、pp.441～465、1992、技報堂出版
- 3) 遠藤卓郎他: 厚生労働科学研究費補助金地域健康危機管理研究事業「掛け流し式温泉における適切な衛生管理手法の開発等に関する研究(主任研究者: 井上博雄)」より、平成 18 年度分担研究報告書「紫外線殺菌装置の有効性評価」、pp.87～97、2006
- 4) 日本薬学会: 衛生試験法・注解、pp.55～59、2010、金原出版
- 5) レジオネラ症防止指針作成委員会: レジオネラ症防止指針(第 3 版)、pp.28～36、2009、(財)ビル管理教育センター
- 6) Jacangelo, J. G., Adham, S. S. and

- Lainé, J. M. (1995) Mechanism of *Cryptosporidium*, *Giardia*, and MS2 virus removal by MF and UF, *Journal of the American Water Works Association*, 87(9), 107–121.
- 7) Sobsey, M. D., Battigelli, D. A., Shin, G. A. and Newland, S. S. (1998) RT-PCR amplification detects inactivated viruses in water and wastewater, *Water Science and Technology*, 38 (12), 91–94.
- 8) Fiksdal, L. and Leiknes, T. O. (2006) The effect of coagulation with MF/UF membrane filtration for the removal of virus in drinking water, *Journal of Membrane Science*, 279(1-2), 364–371.
- 9) Hijnen, W.A.M. and Medema, G.J. (2010) Elimination of micro-organisms by drinking water treatment processes: a review, 8-9, IWA Publishing, London, UK.
- 10) Zhang T, Breitbart M, Lee WH, Run JQ, Wei CL, Soh SW, Hibberd ML, Liu ET, Rohwer F, Ruan Y. RNA viral community in human feces: prevalence of plant pathogenic viruses. *PLoS Biol.* 2006 Jan;4(1):e3.
- 11) Widerström M, Schönning C, Lilja M, Lebbad M, Ljung T, Allestam G, Ferm M, Björkholm B, Hansen A, Hiltula J, Långmark J, Löfdahl M, Omberg M, Reuterwall C, Samuelsson E, Widgren K, Wallensten A, Lindh J. Large Outbreak of *Cryptosporidium hominis* Infection Transmitted through the Public Water Supply, Sweden. *Emerg Infect Dis.* 2014 Apr;20(4):581-9.
- 12) Miller W. A., Gardner I. A., Atwill E. R., Leutenegger C. M., Miller M. A., Hedrick R. P., Melli A. C., Barnes N. M. and Conrad P. A. Evaluation of methods for improved detection of *Cryptosporidium* spp. in mussels (*Mytilus californianus*). *J. Microbiol. Meth.* 2006; 65:367-79.
- 13) Abrahamsen M. S., Templeton T. J., Enomoto, S., Abrahante J. E., Zhu G., Lancto C. A., Deng M., Liu C., Widmer G., Tzipori S., Buck G. A., Xu P., Bankier A. T., Dear P. H., Konfortov B. A., Spriggs H. F., Iyer L., Anantharaman V., Aravind L. and Kapur V. Complete genome sequence of the apicomplexan, *Cryptosporidium parvum*. *Science* 2004; 304: 441-5.
- 14) 松井佳彦、泉山信司、秋葉道宏、松下拓、片山浩之他、「水道における水質リスク評価および管理に関する総合研究－微生物分科会－」、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)(研究代表者、松井佳彦)より平成 23 年度分担研究報告書
- 15) 日本水道協会(2011) 上水試験方法 2011 年版 II. 理化学編. pp.230-235. 32 残留オゾン. 日本水道協会, 東京.
- 16) 日本水道協会(2011) 上水試験方法 2011 年版 III. 金属類編. pp.110-112. 14 臭素酸. 日本水道協会, 東京.
- 17) U.S. Environmental Protection Agency (2010) Long term 2 enhanced surface water treatment rule toolbox guidance manual, pp.214-237.
- 18) 厚生科学研究費補助金 健康安全・危機管理対策総合研究事業「水道における水質リスク評価および管理に関する総合研究」(研究代表者:松井佳彦. 平成 25 年度研究報告書より、分担研究報告書「微生物分科会」)
- 19) T.J. Piercy, S.J. Smither, J.A. Steward, L. Eastaugh and M.S. Lever, 2010, The survival of filoviruses in liquids, on solid substrates and in a dynamic aerosol, *Journal of Applied*

- Microbiology* 109, 1531–1539.
- 20) Leoni F, Amar C, Nichols G, Pedraza-Diaz S, McLauchlin J. Genetic analysis of *Cryptosporidium* from 2,414 humans with diarrhoea in England between 1985 and 2000. *J Med Microbiol.* 2006;55:703–7.
- 21) 感染研感染症疫学センター、病原微生物検出情報月報 (IASR) より、〈特集〉クリプトスポリジウム症およびジアルジア症 2014 年 7 月現在、Vol.35 No.8、2014
- 22) 東京都健康安全研究センター、東京都微生物検査情報、Vol.34 No.12、2013
- 23) 感染研感染症疫学センター、病原微生物検出情報月報 (IASR) より、〈特集〉クリプトスポリジウム症 2005 年 6 月現在、Vol.26 No.7、2005
- reaction. *Water Sci Technol* 2014;70(3):555-60.
4. 感染研感染症疫学センター、病原微生物検出情報月報 (IASR) より、〈特集〉クリプトスポリジウム症およびジアルジア症 2014 年 7 月現在、Vol.35 No.8、2014
- 学会発表
1. Marubayashi, T., Shirasaki, N., Matsushita, T., Matsui, Y. and Oshiba, A. (2014) Development of novel high-basidity polyaluminum chloride for effective virus removal, IWA World Water Congress, Lisbon, Portugal, 21–26 September 2014.
2. 白崎伸隆, 丸林拓也, 村井一真, 松下拓, 松井佳彦 (2014) Contaminant Candidate List に掲載された水系感染症ウイルスの凝集処理性評価, 第 51 回環境工学研究フォーラム, 山梨, 2014/12/20–22.
3. 白崎伸隆, 松下拓, 松井佳彦 (2014) ウイルスによる水系感染症の制御に向けた浄水処理技術の高度・高効率化, 第 22 回衛生工学シンポジウム, 札幌, 2014/11/21.
4. 村井一真, 白崎伸隆, 松下拓, 松井佳彦 (2014) 腸管アデノウイルスの凝集処理性, 第 64 回全国水道研究発表会, 名古屋, 2014/10/23–25.
5. 土岡, 泉山, 原田, 和田, 橋本 (2014) 指標細菌等の濃縮・回収法としての粉体ろ過法の適用性、日本水道協会平成 26 年度全国会議(水道研究発表会)、名古屋
6. 泉山信司、木下一美、村上裕子、八木田健司、クリプトスポリジウム症およびジアルジア症の国内発生動向、第 84 回日本寄生虫学会、2015 年 3 月、東京都
- F. 研究発表
論文発表
1. Shirasaki, N., Matsushita, T., Matsui, Y., Oshiba, A., Marubayashi, T. and Sato, S., Improved virus removal by high-basidity polyaluminum coagulants compared to commercially available aluminum-based coagulants, *Water Research*, 48, 375-386, 2014.
2. Shirasaki, N., Matsushita, T., Matsui, Y., Urasaki, T., Kimura, M. and Ohno, K. (2014) Virus removal by an in-line coagulation-ceramic microfiltration process with high-basidity polyaluminum coagulation pretreatment, *Water Science and Technology: Water Supply*, 14(3), 429–437.
3. Kishida N, Noda N, Haramoto E, Kawaharasaki M, Akiba M, Sekiguchi Y. Quantitative detection of human enteric adenoviruses in river water by microfluidic digital polymerase chain reaction. *Water Sci Technol* 2014;70(3):555-60.
- G. 知的所有権の取得状況
1. 特許取得、2. 実用新案登録、3. その他なし

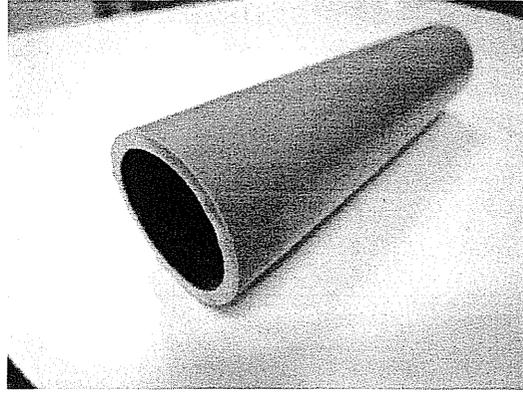
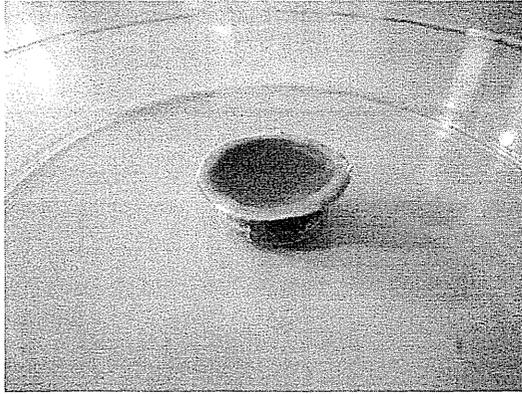


図1 穿孔片（配管 No.4、直径 20mm）

図2 給水管（配管 No.7、口径 30mm）

表1 配管実試料測定結果

配管 No.	採取日	採取形状	使用年数 (年)	拭き取り面 積(cm ²)	従属栄養細菌数	
					配管単位面積あ たり(CFU/cm ²)	空气中(CFU/mL)
1	H25.12.10	穿孔片	12	3.1	52	—
2	H26.1.10	穿孔片	43	4.9	2	3
3	H26.1.21	穿孔片	18	2.8	36	5
4	H26.9.12	穿孔片	29	3.1	6	0
5	H26.9.12	穿孔片	30	1.1	0	0
6	H26.9.26	穿孔片	49	4.9	12	0
7	H26.10.30	給水管	49	4.0	0 ^{※1}	—
8	H26.11.4	給水管	49	4.0	0 ^{※1}	—
9	H27.1.14	穿孔片	13	3.1	0	0
10	H27.1.23	穿孔片	19	3.1	10(13) ^{※2}	14(20) ^{※2}

※1 拭き取った3箇所ノ平均値

※2 ()内は培養14日後ノ値

表 2 施設概要および調査結果

施設	耐震性貯水槽仕様他	採水日	従属栄養細菌 (CFU/mL)	従属栄養細菌 14 日後 (CFU/mL)	一般細菌 (CFU/mL)	残留塩素 (mg/L)	pH 値	水温 (°C)	採水直前の 推定捨水量(m³)
N1	圧力式 100 m³ 鋼製内面1μ' 抄樹脂塗装 H9 竣工 5.4 回/日(夏季) 採水φ50 管 流向設定なし(対称構造)	H26.6.26	10	110		0.20	-	16.5	0.3
		H26.7.28	90	140		0.18	-	19.3	6
		H26.8.25	200	1200		0.16	-	21.5	10
		H26.9.25	8	44	0	0.40	7.5	19.2	0.4
		H26.10.29	12	30		0.44	-	14.4	0.25
		10.29 流出側ドレン	6	10		0.44	-	14.5	-
N2	圧力式 100 m³ 鋼製内面1μ' 抄樹脂塗装 H10 竣工 3.6 回/日(夏季) 採水φ50 管 流向設定なし(対称構造)	H26.6.26	1	120	-	0.24	-	18.7	0.7
		H26.8.25	12	1700	-	0.12	-	22.2	6
		H26.9.4	2	68	0	0.42	7.5	22.3	0.3
		H26.10.29	18	40	-	0.56	-	14.4	0.15
H1	圧力式 100 m³ 珪酸レンガ 铸铁管 H16 竣工 6.0 回/日 流向逆 採水立水栓	H26.7.17	3	38	-	0.34	7.2	20.8	0.25
		7.17 配水本管水栓	0	2	-	0.38	7.2	21.3	-
		H26.8.21	2	7	-	0.31	-	22.0	0.5
		8.21 配水本管水栓	0	3	-	0.35	-	23.0	-
		H26.9.29	0	44	-	0.35	7.2	21.0	0.5
		9.29 配水本管水栓	0	1	-	0.36	7.2	21.3	-
H2	圧力式 100 m³ 珪酸レンガ 铸铁管 H19 竣工 24 回/日 流向正 採水立水栓	H26.7.17	4	8	-	0.30	7.2	22.2	0.25
		H26.8.21	0	2	-	0.30	-	23.0	0.5
		H26.9.29	4	16	-	0.36	7.2	23.0	0.5
H3	圧力式 100 m³ 珪酸レンガ 铸铁管 H23 竣工 2.4 回/日 流向逆 採水立水栓	H26.7.17	2	660	-	0.28	7.2	24.2	0.25
		7.17 配水本管水栓	0	0	-	0.29	7.2	20.8	-
		H26.8.21	2	14	-	0.25	-	26.0	0.5
		8.21 配水本管水栓	0	1	-	0.29	-	25.7	-
		H26.9.29	0	14	-	0.27	7.2	23.4	0.5
		9.29 配水本管水栓	0	2	-	0.26	7.2	23.0	-
NA1	大気開放式 1000 m³ PC. 内面塗装なし S59 竣工 採水φ50 管 流向正	H26.8.5	32	430	2	0.38	7.5	14.1	0.2
		H26.8.19	85	540	0	0.28	7.3	15.3	0.2
NA2	圧力式 330 m³ 珪酸レンガ 铸铁管 S62 竣工 25 回/日 流向正 採水φ50 管	H26.8.5	2	5	1	0.38	7.5	19.5	0.2
		H26.8.19	4	5	1	0.30	7.4	17.5	0.2
NA3	圧力式 100 m³×3 基並列 珪酸レンガ 铸铁管 H7 竣工 0.63 回/日 流向逆 採水φ50 管	H26.8.5	114	120	2	0.26	7.8	20.7	0.1
		H26.8.19	36	100	0	0.22	7.5	20.4	0.1
K1	圧力式 50 m³ 珪酸レンガ 铸铁管 H8 竣工 5.2 回/日 流向正 採水φ50 管	H26.8.22	1	4	-	0.28	7.3	25.2	0.12
K2	圧力式 50 m³ 珪酸レンガ 铸铁管 H8 竣工 14.6 回/日 流向正 採水φ50 管	H26.8.22	1	40	-	0.42	7.2	23.2	0.12
K3	圧力式 50 m³ 珪酸レンガ 铸铁管 H7 竣工 3.5 回/日 流向正 採水φ50 管	H26.8.22	0	2	-	0.26	7.2	24.0	0.12
K4	圧力式 60 m³ 珪酸レンガ 铸铁管 H9 竣工 1.4 回/日 流向正 採水φ50 管	H26.8.22	28	130	-	0.30	7.7	21.8	0.12

表3 家庭環境で採取した水試料の性状と *Legionella* 属菌の汚染状況

試料	家庭数	検体数	温度 (°C)		pH		塩素濃度(ppm)		HPC log ₁₀ (CFU/ml)		培養 陽性 (CFU/100ml)	菌数	LAMP アメーバ増菌後		
			平均	範囲	平均	範囲	平均	範囲	平均 ^a	範囲			陽性	培養陽性	LAMP 陽性
台所 蛇口水	6	8	26.5	24.0-30.0	7.3	7.1-7.4	0.14	0-0.53	2.30	0.30-5.05	0		1(12.5)	1 ^c (12.5)	3(37.5)
浄水器 蛇口水	2	2	24.4	22.5-26.2	7.1	7.0-7.2	0	0	3.92	3.65-4.20	0		0	0	0
浴室 蛇口水	8	8	26.0	18.5-36.0	7.3	7.1-7.8	0.19	0-0.45	2.31	0.30-4.01	0		1(12.5)	0	1(12.5)
浴室 給湯水	9	10	32.5	28.0-39.0	7.4	7.3-7.8	0.12	0-0.50	3.55	1.38-6.25	1 ^b (10.0)	15	6(60.0)	0	7(70.0)
洗面台 蛇口水	4	5	25.6	22.0-30.0	7.3	7.2-7.4	0.16	0.02-0.33	1.99	0.60-3.46	0		0	0	1(20.0)
合計		33									1(3.0)		8(24.2)	1(3.0)	12(36.4)

a: 幾何平均、 b: *L. pneumophila* SG1、 c: *L. anisa*

表4 家庭環境で採取したスワブ検体における *Legionella* 属菌の汚染状況

試料	家庭数	検体数	培養	LAMP	アメーバ増菌後	
			陽性	陽性	培養陽性	LAMP 陽性
スワブ						
台所 蛇口	6	8	0	0	0	0
浄水器 蛇口	2	2	0	1(50.0)	0	1(50.0)
浴室 蛇口	8	8	0	1(12.5)	0	0
浴室 給湯口	9	9	0	4(44.4)	0	5(55.6)
浴室 シャワーヘッド	3	3	0	0	0	0
洗面台 蛇口	4	5	0	0	0	0
合計		35	0	6(17.1)	0	6(17.1)

表5 ビル建築物 (A) 水道水における従属栄養細菌数及びレジオネラ属菌の検査結果

採水場所	採水日	採水までの放流時間	水温(°C)	残留塩素濃度(mg/L)	従属栄養細菌(CFU/mL)	レジオネラ属菌			
						培養法(CFU/100mL)	LAMP法による遺伝子検査** Tt値	リアルタイムPCR法による遺伝子検査*** Ct値	
本館 水道末端	① 7月22日 (火)	蛇口拭き取り			NT	<1*	(-)	NT	
		0分	25.5	0.1	4,800	<1	(-)	(+)	34.2
		1分	25.5	0.3	51	<1	(-)	(-)	
		2分	25.5	0.3	11	<1	(-)	(-)	
		5分	25.5	0.1	52	<1	(-)	(-)	
	15分	24.5	0.4	0.5	<1	(-)	(-)		
	② 8月18日 (月)	蛇口拭き取り			NT	<1*	(-)	NT	
		0分	25.1	0.1	2,400	<1	(-)	(-)	
		1分	25.0	0.3	16	<1	(-)	(-)	
		2分	26.0	0.3	2	<1	(-)	(-)	
		5分	26.0	0.4	3	<1	(-)	(-)	
	15分	26.0	0.4	0	<1	(-)	(-)		
	③ 9月16日 (火)	蛇口拭き取り			NT	<1*	(-)	NT	
		0分	25.0	0.1	2,000	<1	(-)	(+)	34.8
		1分	24.5	0.4	14	<1	(-)	(-)	
2分		24.5	0.5	6	<1	(+)	38.9	(-)	
5分		24.5	0.4	3.5	<1	(-)	(-)		
15分	24.5	0.5	1.5	<1	(-)	(+)	34.8		

採水場所	採水日	採水までの放流時間	水温(°C)	残留塩素濃度(mg/L)	従属栄養細菌(CFU/mL)	レジオネラ属菌				
						培養法(CFU/100mL)	LAMP法による遺伝子検査** Tt値	リアルタイムPCR法による遺伝子検査*** Ct値		
別館 水道末端	② 8月18日 (月)	蛇口拭き取り			NT	<1*	(-)	NT		
		0分	24.0	0.0	4,500	<1	(-)	(+)	24.8	
		1分	25.5	0.0	240	<1	(+)	35.0	(+)	23.9
		2分	26.5	0.0	78	<1	(+)	37.5	(+)	26.3
		5分	26.5	0.1	40	<1	(-)		(+)	26.2
	15分	26.0	0.1	18	<1	(-)		(+)	27.4	
	③ 9月16日 (火)	蛇口拭き取り			NT	<1*	(-)	NT		
		0分	24.5	0.1	5,500	<1	(-)	(+)	27.3	
		1分	24.5	0.1	110	<1	(-)	(+)	29.9	
		2分	25.0	0.1	38	<1	(+)	33.0	(+)	29.5
		5分	25.0	0.1	16	<1	(-)		(+)	30.7
15分	25.0	0.1	8.5	<1	(-)		(+)	29.7		

* : CFU/ふきとり

** : LAMP法による遺伝子検査結果は、Tt値が40未満で増幅が確認されたものを(+)とした。

*** : リアルタイムPCR法による遺伝子検査結果は、Ct値が35未満で増幅が確認されたものを(+)とした。

NT : 検査未実施

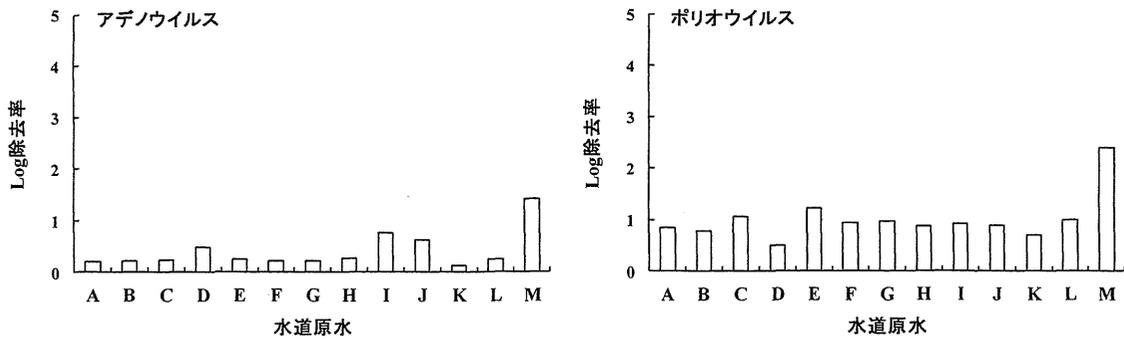


図3 PACI-50sを用いた凝集沈殿処理におけるウイルス除去 (PFU法)

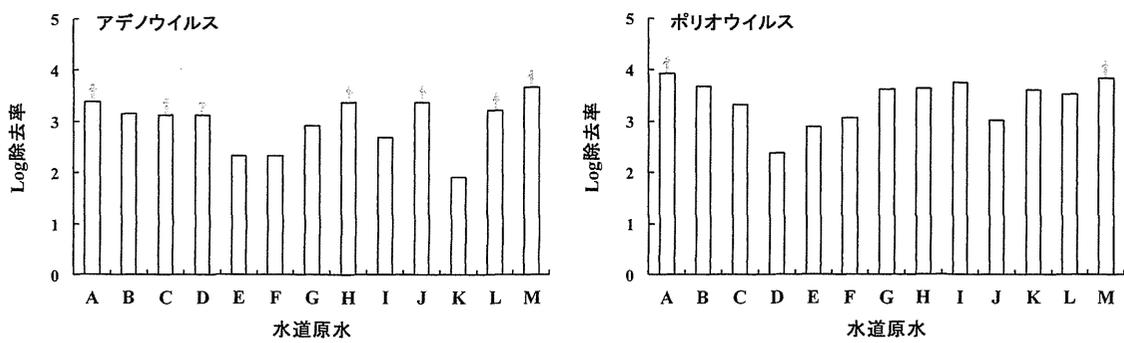


図4 PACI-50sを用いた凝集沈殿+ろ過処理 (急速ろ過を模した0.45μmPTFEフィルターろ過)におけるウイルス除去 (PFU法)

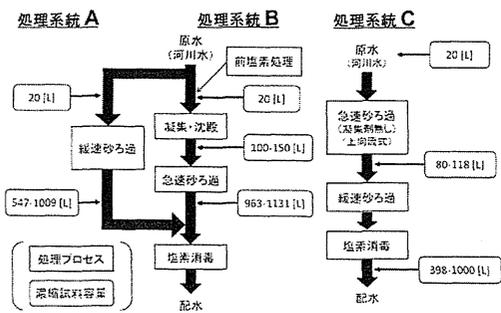


図5 浄水場における処理フローと採水地点

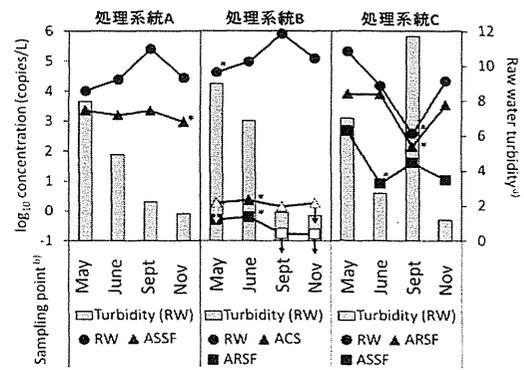
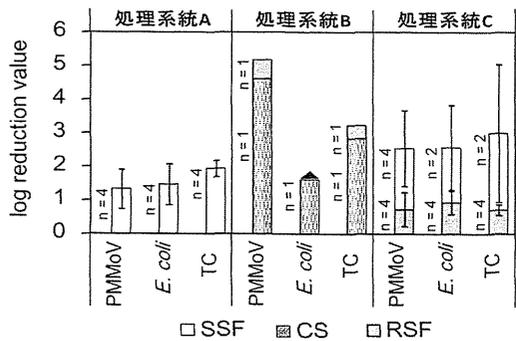


図6 原水中および各処理工程後におけるPMMoVの定量結果

(白抜きのプロットは定量不可能、矢印は不検出、アスタリスク(*)は検出障害をあらわす) 濁度の単位は5月試料に関しては[FAU]、その他の試料は[NTU]。b) RW = raw water, ACS = after coagulation-sedimentation, ASSF = after slow sand filtration, ARSF = after rapid sand filtration.



← 図7 PMMoV および指標細菌の除去効率

エラーバーは標準偏差を、▲は不等号付きの値をあらわす、SSF = slow sand filtration, CS = coagulation-sedimentation, RSF = rapid sand filtration

表 6 X 浄水場の通常運転時の不活化効果

		計算条件			計算結果		
		水温 5.8℃			対象	クリプトス ポリジウム	ジアルジア
		溶存 O ₃ (mg/L)	HDT (min.)	C* (mg/L)			
接 触 槽	流入水	N.D.	---	---	-log(I/I ₀)	---	---
	1 段目出口	N.D.	4	0.000		---	0.00
	2 段目出口	0.05	4	0.025		---	0.13
	3 段目出口	0.11	4	0.055		0.01	0.25
	滞留槽出口	0.09	10	0.090		0.06	0.63
合計		---	---	---	0.07	1.01	

表 7 X 浄水場のオゾン注入強化時の不活化効果

		計算条件			計算結果		
		水温 5.4℃			対象	クリプトス ポリジウム	ジアルジア
		溶存 O ₃ (mg/L)	HDT (min.)	C* (mg/L)			
接 触 槽	流入水	N.D.	---	---	-log(I/I ₀)	---	---
	1 段目出口	0.32	4	0.160		---	0.51
	2 段目出口	0.60	4	0.300		0.07	0.72
	3 段目出口	1.01	4	0.505		0.12	0.91
	滞留槽出口	0.89	10	0.890		0.37	1.51
合計		---	---	---	0.56	3.65	

表 8 X 浄水場の過去のオゾン注入強化時における不活化効果

		計算条件			計算結果		
		水温 5℃			対象	クリプトス ポリジウム	ジアルジア
		溶存 O ₃ (mg/L)	HDT (min.)	C* (mg/L)			
接 触 槽	流入水	N.D.	---	---	-log(I/I ₀)	---	---
	1 段目出口	N.D.	4	0.000		---	0.00
	2 段目出口	0.13	4	0.065		---	0.28
	3 段目出口	0.25	4	0.125		0.03	0.43
	滞留槽出口	0.21	10	0.210		0.12	0.91
合計		---	---	---	0.15	1.62	

注 採水は平成 25 年 2 月 21 日。オゾン注入率目標値 0.7mg/L で制御している。

表 9 Y 浄水場の過去の不活化効果（冬季）

		計算条件			計算結果		
		水温 5°C			対象	クリプトス ポリジウム	ジアルジア
		溶存 O ₃ (mg/L)	HDT (min.)	C* (mg/L)			
					k_{10}	0.063234	1.483956
接 触 槽	流入水	N.D.	---	---	-log(I/I ₀)	---	---
	1 段目出口	N.D.	4	0.000		---	0.00
	2 段目出口	0.01	4	0.005		---	0.03
	3 段目出口	0.07	4	0.035		0.01	0.17
滞留槽出口	0.05	7	0.050	0.02		0.34	
合計		---	---	---		0.03	0.54

注 採水は平成 21 年 2 月 19 日。

表 10 Y 浄水場の過去の不活化効果（夏季）

		計算条件			計算結果		
		水温 28°C			対象	クリプトス ポリジウム	ジアルジア
		溶存 O ₃ (mg/L)	HDT (min.)	C* (mg/L)			
					k_{10}	0.538137	7.681560
接 触 槽	流入水	N.D.	---	---	-log(I/I ₀)	---	---
	1 段目出口	N.D.	4	0.000		---	0.00
	2 段目出口	0.02	4	0.010		---	0.23
	3 段目出口	0.06	4	0.030		0.06	0.49
滞留槽出口	0.02	7	0.020	0.07		0.54	
合計		---	---	---		0.13	1.26

注 採水は平成 21 年 8 月 28 日。

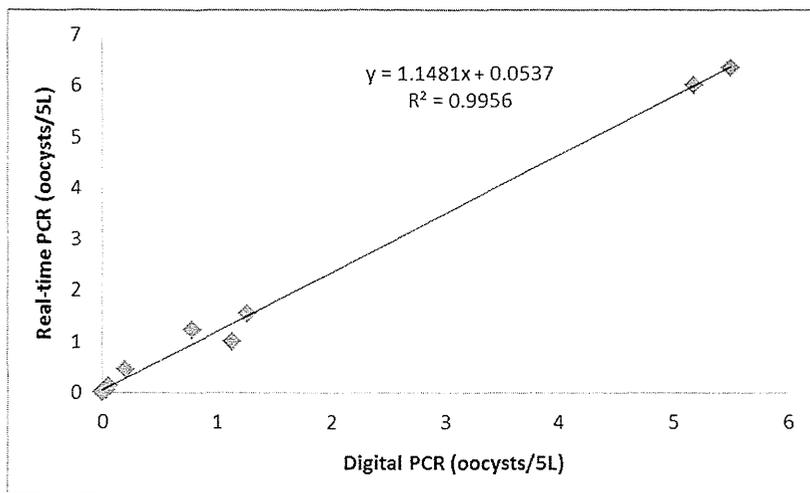


図 8 デジタル PCR とリアルタイム PCR によるオーシストの定量値の比較

表 11 顕微鏡法及び qRT-PCR 方によるクリプトスポリジウムの検出

地点	採水日	検水量 (L)	検鏡 (個)	qRT-PCR			
				(個相当)	(copies)	シーケンス解析	Accession number
相模川座架依橋	2014.5.29	5	0	ND	ND		
	2014.8.21	5	0	ND	ND		
	2014.11.20	5	0	ND	ND		
鳩川さくら橋	2014.5.29	5	0	ND	ND		
	2014.8.21	5	0	ND	ND		
	2014.11.20	5	0	0.51	9,200	<i>Cryptosporidium. sp</i>	AY324639
中津川第一鮎津橋	2014.5.29	5	0	ND	ND		
	2014.8.21	5	0	0.83	15,000	<i>Cryptosporidium. suis</i>	AF115377
	2014.11.20	5	3	13	240,000	<i>Cryptosporidium. suis</i>	AF115377
小鮎川第二鮎津橋	2014.5.29	5	0	0.061	1,100	<i>Cryptosporidium. andersoni</i> or <i>C. muris</i>	AF093496 or AB089284
	2014.8.21	5	0	0.32	5,700	<i>Cryptosporidium. sp</i>	AB222185
	2014.11.20	5	0	ND	ND		
	2014.12.17*	10	8	7.8	140,000	<i>Cryptosporidium. suis</i>	AF115377
貫抜川境橋	2014.5.29	2.5	0	ND	ND		
	2014.8.21	5	0	ND	ND		
	2014.11.20	2.5	0	0.27	4,900	<i>Cryptosporidium. sp</i>	AY324639
玉川酒井橋	2014.5.29	5	0	ND	ND		
	2014.8.21	5	0	ND	ND		
	2014.11.20	5	0	0.72	13,000	<i>Cryptosporidium. sp</i>	FJ205700
永池川平泉橋	2014.5.29	2.5	0	ND	ND		
	2014.8.21	2.5	0	ND	ND		
	2014.11.20	2.5	0	ND	ND		
寒川取水堰	2014.4.21*	10	2	2.2	40,000	<i>Cryptosporidium. suis</i>	AF115377
	2014.5.29	5	0	ND	ND		
	2014.7.14*	10	0	0.78	14,000	<i>Cryptosporidium. suis</i>	AF115377
	2014.8.21	5	0	ND	ND		
	2014.10.20*	10	0	3.1	56,000	<i>Cryptosporidium. suis</i>	AF115377
	2014.11.20	5	0	ND	ND		
蟹淵排水路	2015.1.13*	10	1	1.6	28,000	<i>Cryptosporidium. suis</i>	AF115377
	2014.12.17*	10	188	3.6	65,000	<i>Cryptosporidium. suis</i>	AF115377

*印は検鏡法とqRT-PCR法の試料を採水時から別々に分けた。無印は免疫磁性体粒子法による分離後に試料を分けた。

「ND」は検出限界未満のことで、対象の遺伝子が増幅しなかったことを示す。

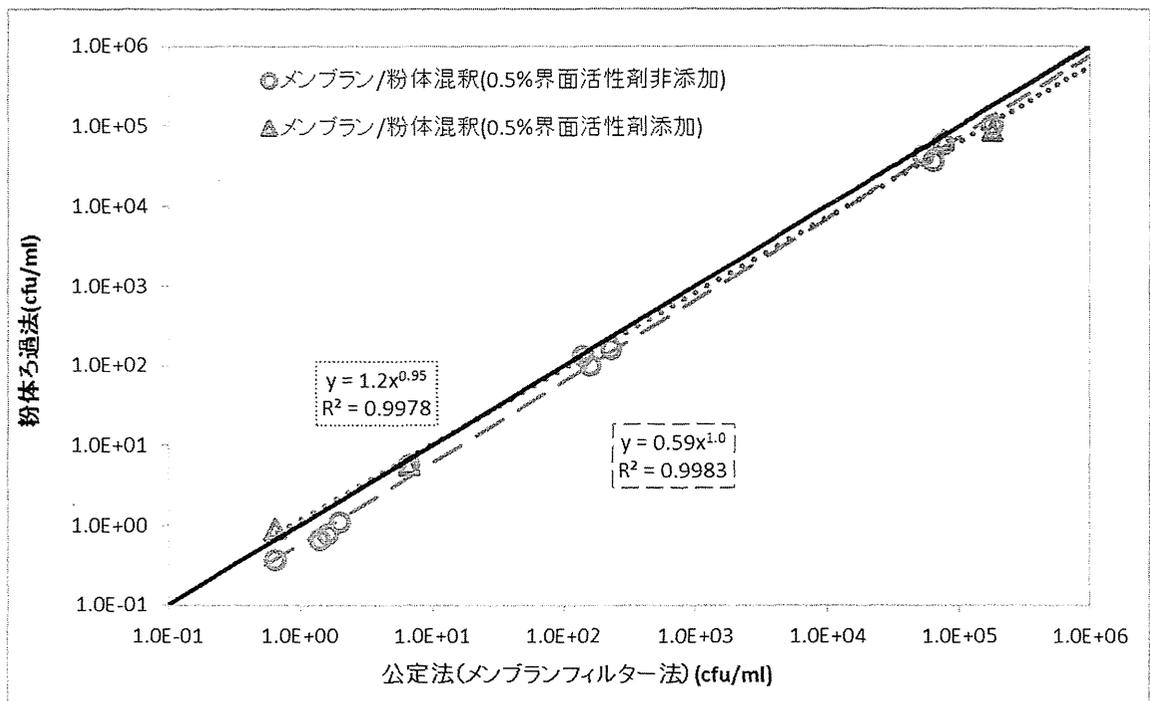


図 9 X-MG 培地・粉体ろ過法(混釈/界面活性剤添加)とメンブランフィルター法による大腸菌数

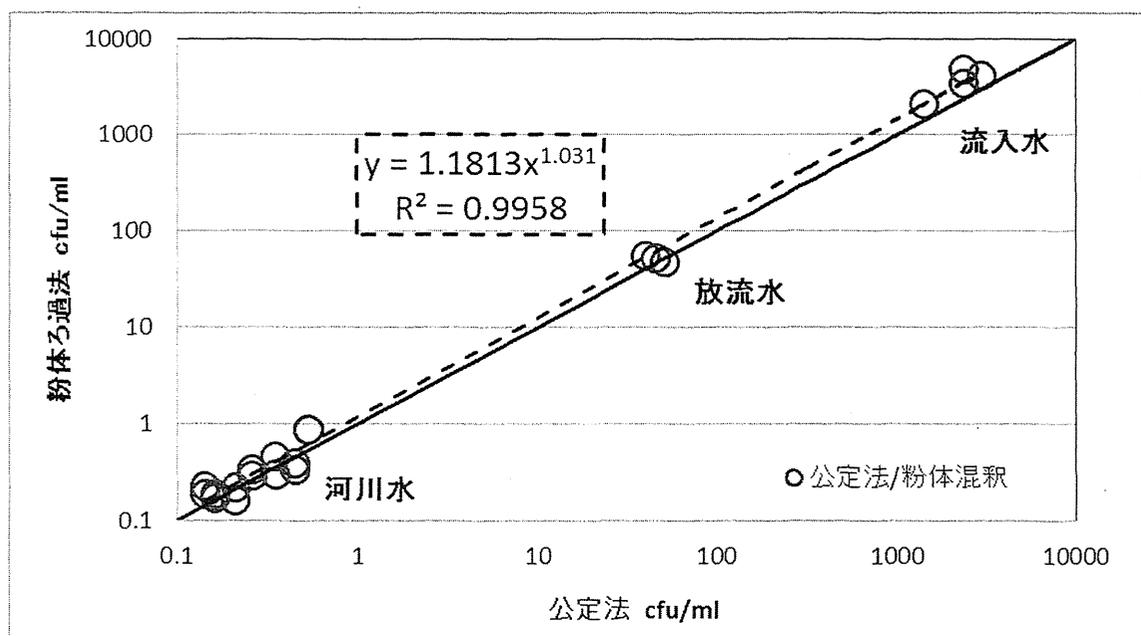


図 10 粉体ろ過法と公定法による嫌気性芽胞菌数

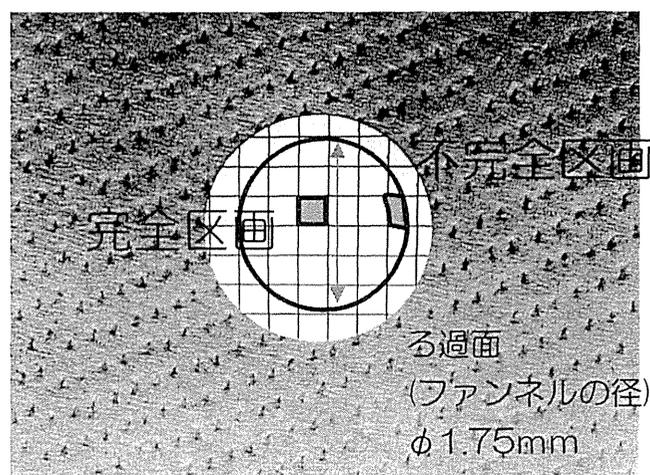


図 11 供試メンブランフィルター

表 12 ろ過方法の予備検討

フィルターホルダー	10分静置	Tween80	トレーサー計数値			n
			中央部	周辺部	比	
焼結ガラス	なし	なし	5.08(3.9)	3.94(1.2)	1.3	3
ステンレス			8.00(1.9)	4.66(1.3)	1.7	
焼結ガラス	あり		144(99)	77(12)	1.9	
ステンレス			52(29)	39(17)	1.3	
		あり	31.6(8.49)	32.3(6.18)	0.98	

表 13 完全区画 1 区画のトレーサ計数値

	全体		中央4区画		辺縁部		中間部	
	平均	SD	平均	SD	平均	SD	平均	SD
Trial 1	33.3	8.0	32.8	1.5	35.5	12.2	32.1	5.8
Trial 2	39.3	9.8	42.8	4.8	35.0	12.2	41.2	7.9
Trial 3	36.2	11.7	40.0	6.5	33.4	15.7	37.8	5.5
Trial 4	41.4	6.6	43.5	5.3	39.3	4.7	42.1	7.7
Trial 5	42.4	6.5	45.5	7.2	39.7	5.4	42.9	6.3
Trial 6	39.3	7.0	39.5	6.8	40.1	7.1	38.5	7.0
Trial 7	43.6	9.1	45.5	4.7	45.1	11.1	41.8	8.5
Trial 8	40.3	6.9	33.5	1.1	44.0	4.8	40.7	7.3
Trial 9	37.6	7.1	36.3	5.5	37.9	8.7	37.8	6.2
Trial 10	37.1	12.1	41.3	1.6	36.6	8.3	36.0	15.4
平均	39.0	-	40.1	-	38.7	-	39.1	-

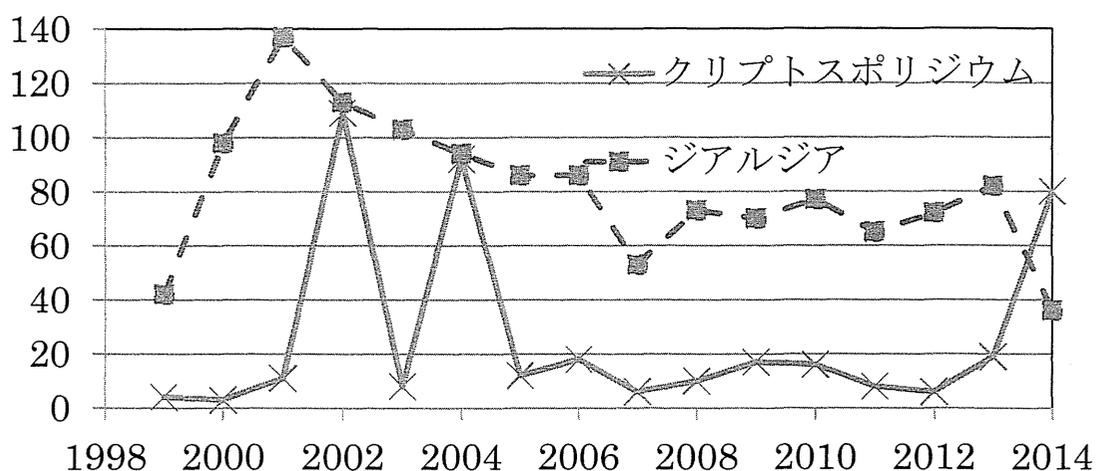


図 12 届出数の推移

1999年は4～12月、2014年は1～7月の範囲で集計されている。クリプトスポリジウムは、集団感染でピーク（2002、2004、2014年）が生じている。一方のジアルジアは比較してなだらかに推移している。

表 14 クリプトスポリジウム症感染要因、2006～2013年（n=100）

感染要因	報告数
ウシとの接触	32
海外渡航	27
性的接触 （うち男性間性的接触	11 10）
食品（ユッケ、生レバーなど）	4
その他*	2
不明（うち7例基礎疾患・免疫不全あり）	24

*肥料（有用微生物）の飲用、動物糞便扱い
（感染症発生动向調査：2014年4月22日現在報告数）

表 15 ジアルジア症感染要因、2006～2013年（n=578）

感染経路・要因	報告数
海外渡航*	253
性的接触*	71
（うち男性間性的接触	42）
下水・汚水・汚物処理等	6
集団感染（ビルの貯水槽）	4
不明	248

*複数原因の重複例を含む
（感染症発生动向調査：2014年4月22日現在報告数）

平成 26 年度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）
分担研究報告書

水道における水質リスク評価および管理に関する総合研究
－化学物質・農薬分科会－

研究代表者	松井 佳彦	北海道大学大学院工学研究院
研究分担者	浅見 真理	国立保健医療科学院 生活環境研究部 水管理研究領域
	西村 哲治	帝京平成大学 薬学部薬学科
研究協力者	相澤 貴子	（公財）水道技術研究センター
	田中 宏憲	千葉県水道局 水質センター調査課
	井上 剛	福岡県南広域水道企業団 施設部浄水場水質センター
	江崎 智昭	神戸市水道局 事業部水質試験所
	鎌田 素之	関東学院大学 理工学部理工学科
	三枝 慎一郎	広島市水道局 技術部水質管理課
	桐山 秀樹	奈良県水道局 広域水道センター 水質管理センター
	小坂 浩司	国立保健医療科学院 生活環境研究部 水管理研究領域
	佐藤 学	神奈川県衛生研究所 理化学部生活化学・放射能グループ
	中村 美早紀	茨城県企業局 水質管理センター
	西野 真之	八戸圏域水道企業団 水質管理課
	三浦 晃一	仙台市水道局 浄水部水質検査課
	高橋 英司	新潟市水道局 技術部水質管理課
	河村 裕之	神奈川県内広域水道企業団 水質管理センター

研究要旨：

水道水質に関する農薬類、化学物質の管理向上に資するため、実態調査及び情報収集を行った。農薬要覧 2014 に記載されている平成 25 農薬年度（平成 24 年 10 月～平成 25 年 9 月）の農薬製剤出荷量は約 23.6 万 t で昨年と比べて 2% 程度増加している。農薬の出荷量はこれまで減少を続けてきたが、平成元年以降はじめて増加に転じた。平成 25 農薬年度における農薬の用途別農薬製剤出荷量は殺虫剤：84,356t、殺菌剤：43,245t、殺虫殺菌剤：20,266t、除草剤：75,511t であった。平成元年比で見ると、殺虫剤 46%、殺菌剤 44%、殺虫殺菌剤 34%、除草剤 51% であり、前年比では殺虫剤 1%、除草剤 6%、全体では 1% の増加となっている。登録農薬原体数は平成 26 年 3 月現在 561 種であり、増加傾向にある。

昭和 62 年～平成 25 年度までの農薬製剤出荷量と各農薬製剤の農薬原体含有率から農薬原体出荷量を算出し、物性情報との関係について考察したところ、出荷されている農薬類全体で調査対象期間において ADI 別出荷量は大きく変化していないが、殺虫剤、殺菌剤では ADI が高い（毒性が低い）農薬の出荷量が減少し、ADI が低い（毒性が高い）農薬の割合が増加している。除草剤では ADI が高い（毒性が低い）農薬の割合が増えている。

出荷されている農薬の Kow は低い、すなわち水に溶解しやすい農薬の割合が増えている傾向にあり、特に、除草剤でその傾向が顕著であり、殺菌剤でも Kow の低い農薬の割合が増えていることが分かった。

分科会及び協力の 14 水道事業体の実態調査結果では、分解物、酸化物を含め合計 285 種類の農薬がモニタリングされ原水 83 種、浄水 34 種の農薬が検出されている。測定農薬数は昨年度の 213 種類と比べ大幅に増加しているが、検出農薬数は昨年の原水 88 種、浄水 28 種と大きく変化していなかった。2014 年 4 月に農薬の分類見直しが行われ、1 シーズン経

過したことから分析法の検討等を踏まえ測定農薬数が増加したと考えられるが検出される農薬数は大きく変化していない。

平成 26 年度の実態調査において、原水では、検出最大濃度が 1 μ g/L を超えた農薬はブロモブチド、モリネート、グリホサート、ダイムロン、メコプロップ、ベンタゾン、プロベナゾール、シメトリン、プレチラクロール、イソキサチオンオキソン、ブタクロール、フルトラニル、イマズスルフロン、アミノメチルリン酸の 14 農薬であった。昨年の 7 農薬に比べ検出農薬数は増加しており、特にイソキサチオンオキソンやアミノメチルリン酸のような分解物も検出されている。積算濃度ではブロモブチド、ベンタゾンが 20 μ g/L を超え、他の農薬と比べ特に高い値を示した。ピロキロンに関しては、検出最大濃度、積算濃度とも昨年と比べ減少している。個別農薬評価値では、モリネート、メコプロップ、テフリルトリオン、イソキサチオンオキソン、モリネート、ブロモブチド、フィプロニルが 0.1 以上の値を示した。

浄水では、検出最大濃度が 0.1 μ g/L を超えた農薬はアミノメチルリン酸、ブロモブチド、ベンタゾン、ダラポン(DPA)、ピロキロン、プレチラクロール、フルトラニル、ピラクロニルの 8 農薬であった。該当する農薬は異なるが昨年の調査とほぼ同数であったが、アミノメチルリン酸、フルトラニルが新しく加わった。ダラポンは、塩素処理由来であり、他の農薬と別の視点で対策を考慮する必要があるが、ブロモブチド、ベンタゾン、ピロキロン、プレチラクロールはこれまでも検出濃度と検出頻度が高い農薬である。また、積算濃度ではブロモブチド、ベンタゾン、アミノメチルリン酸、ダラポン(DPA)、ピロキロン、プレチラクロールが比較的高い値を示している。グリホサートの分解物であるアミノメチルリン酸は、浄水でも他の農薬と比べ高い濃度で検出されていることから今後も注視していく必要がある。個別農薬評価値が 0.01 を超えた農薬はピラクロニルとフィプロニルであった。

これまで実施されてきた農薬類実態調査結果をデータベース化し、検出されている農薬のトレンドについて検討した。2010～2014 年の実態調査における Σ 値を評価したところ、原水における Σ 値は年度によってばらつきがあるが、年度毎の平均値は 0.018～0.031 であり、増加傾向にあることが示された。また、多くの事業体では除草剤の寄与が高く、 Σ 値が最も高いのは多くの事業体で除草剤の影響を最も受ける 6 月下旬～7 月上旬であった。原水において過去 4 年間で個別農薬評価値の積算値に対する寄与が 1%以上の農薬はモリネート、ピロキロン、ブロモブチド、フィプロニル、カフェンストロール、ベンタゾン、メフェナセツト、ベノミル、プレチラクロールの 10 農薬で、4 カ年の調査ではこれら 10 農薬の寄与は 58～75%、平均 64%となった。事業体別に見ると寄与の高い農薬の種類は異なるが、これらの 10 農薬のいずれかが寄与の高い農薬として該当している事が分かった。10 農薬の用途はフィプロニルが殺虫剤、ピロキロン、ベノミルが殺菌剤であり、その他 7 農薬は全て除草剤であった。

水道統計を用いて、全国の水道事業の農薬類の検出状況について、経年的な傾向について評価したところ、平成 21～23 年度の 3 ヶ年度については、年度によって大きな傾向の違いは認められなかった。複数年の結果を見ることで、農薬類が検出されている水道事業のうち、約 1/3 で毎年度農薬が検出されているが、その他は年度により必ずしも検出されていないことが分かった。検出された水道事業体が多かった農薬類は、この分科会と農薬の詳細データを提供した協力 14 事業体のデータとほぼ同様の検出農薬であったが、ベンタゾンは H21、H23 の検出水道事業体数上位 10 位以内に入っていなかった。

全国を 10 地域及び都道府県に分けて、検出可能性指標値に基づいて、検出のおそれのある農薬を地域または都道府県ごとに選定した。その結果、都道府県別の測定農薬において、対象農薬リスト掲載農薬 120 項目の内、検出のおそれのある農薬数は 48 から 94 の範囲で、

地域によって異なること、全ての農薬を測定する必要性がないことが示された。

神奈川県内の 11 河川で調査を実施したところ 30 種類の農薬が検出された。この中でオリサストロビンが、11 河川および 4 回の採水のほぼすべてから検出され、検出率が 90% を超えた。最大個別農薬評価値はいずれの農薬も 1 を下回ったが、渋田川で検出されたテフリルトリオンは 0.568 と高い値を示した。調査河川別に見ると流域に水田が多い鈴川、渋田川、金目川は検出農薬数が多く、上水取水河川である相模川、酒匂川、狩川から低濃度ながら 12~17 農薬が検出された。尚、今回検出された農薬は、いずれも神奈川県内での出荷が確認されている。

鶴見川における調査では、鶴見川における実態調査では検出濃度が高かった農薬としてテブコナゾール (1.60 $\mu\text{g/L}$)、ピラゾスルフロンエチル (0.63 $\mu\text{g/L}$)、アメトリン (0.51 $\mu\text{g/L}$)、検出頻度が高かった農薬としてテブコナゾール(93%)、オリサストロビン (71%)、ブロマシル (57%)、最大検出濃度を水道における目標値で除した個別農薬評価値が高かった農薬としてテフリルトリオン (0.182)、キンクロラミン (0.034)、シアナジン (0.030) となった。測定毎の個別農薬評価値の合計である検出指標値の最大は 0.189 であり、その殆どが水田適用の除草剤であるテフリルトリオンに由来するものであった。また、田面水とこの田面水が流入する直下の浅山橋におけるテフリルトリオンの濃度は 0.01 $\mu\text{g/L}$ と 0.03 $\mu\text{g/L}$ となり、河川水中の濃度がテフリルトリオンを使用している田面水の濃度より高いケースが認められた。亀甲橋における連続採水では、36 回の測定で計 19 種類の農薬が検出され、一回の測定では最大 11 種の農薬が検出され、連続採水期間における検出指標値の最大は 0.040、最小は 0.004、平均は 0.012 であったが、テフリルトリオンの寄与が極めて高く、調査期間の平均で 72%、最大で 92%であった。

相模川水系におけるネオニコチノイド系農薬等 10 物質 (アセタミプリド、イミダクロプリド、クロチアニジン、ジノテフラン、チアクロプリド、チアメトキサム、ニテンピラム、テブコナゾール、ブロマシル、テフリルトリオン) の実態調査を行った。調査期間中、10 物質すべてが検出された。テブコナゾールは春季から夏季にかけては検出率が低く、検出されても低濃度であったが、秋季以降、冬季に入ってから複数の河川で濃度が上昇した。テフリルトリオンは水道水の目標値に対して高い濃度で検出され、ブロマシルは多くの採水地点で調査期間中継続して検出された。

アセタミプリド、イミダクロプリド、チアクロプリド、ニテンピラム、チアメトキサム、ジノテフラン、クロチアニジンの各原体の最大設定濃度の 1mg/mL 以下、およびそれぞれの 3 時間塩素処理生成物、6 時間塩素処理生成物および 24 時間塩素処理生成物の抽出物濃度が 1mg/mL に相当する濃度以下のいずれの濃度についても、本検討の PC12 細胞に対する結果では、細胞致死作用を及ぼす恐れはみられなかった。一方、神経系に分化した PC12 細胞に対する結果では、ジノテフランおよびクロチアニジンの原体及び塩素処理生成物抽出物において、一部の曝露条件で細胞致死毒性を示す恐れが示された。

これまで水質事故の原因となった化学物質について、リスト化を行ない、水源の情報収集や事故防止対策を図るべき物質として、ヘキサメチレンテトラミン、臭化物等の消毒副生成物前駆物質に加え、シクロヘキシルアミン、3,5-ジメチルピラゾール、フェノール類、硫酸アミド等塩素との反応性が高く、分解物や異臭の原因となる物質、塩素酸・過塩素酸などの陰イオン、界面活性剤・油等活性炭に吸着しやすい物質が、浄水処理困難化学物質及びそれに準じて扱う物質として指定される元となった。

A. 研究目的

水道水源で使用される化学物質・農薬の状況を把握し、水道の水質管理の向上に資する

ため、実態調査を実施し、検出傾向の解析を行った。特に水源となる流域に開放的に使用される化学物質として量が多い農薬について

重点的に解析を行う。

水田使用の農薬と非水田使用の農薬の出荷量を算出し、それぞれの出荷量に基づく検出可能性を表す指標を作成するとともに、より効率的な監視農薬の選定方法を検討した。

また、近年の使用量の増加しているネオニコチノイド系農薬について、実態調査に関する検討、実態調査、浄水処理性に関する検討、様々な反応生成物を含むバイオアッセイ手法に関する検討を行った。

農薬以外の化学物質については、過去の事故事例等の情報収集を行い、検出状況に関して検討を行うと共に、化学物質の管理のあり方について提案を行う。

B. 研究方法

1) 農薬の使用量推移等に関する検討

我が国における農薬使用実態に関する統計情報は(社)日本植物防疫協会が出版する農薬要覧にまとめられている。これまで農薬要覧の発刊後、記載されている都道府県別農薬製剤出荷量と各農薬製剤の原体含有率から都道府県別の農薬原体出荷量の算出を行い、水道水源における監視農薬の選定の基礎資料を作成してきた。本年度も、農薬要覧 2014 に記載されている農薬製剤別都道府県別出荷数量と登録農薬情報(農薬製剤に含まれる農薬原体の種類と割合)から農薬原体別都道府県別出荷量を算出した。

また、昭和 62 年～平成 25 年度までの農薬製剤出荷量と各農薬製剤の農薬原体含有率から農薬原体出荷量を算出し、物性情報との関係について考察した。具体的には、農薬要覧で原体出荷量を算出できた 608 農薬原体に関して、調査期間において年間 10t 以上の出荷量があった農薬(389 農薬原体)を抽出し、NIHS が公開している ADI に関するデータベースもしくは厚生労働省が示している水道における目標値から逆算 ADI が明らかになった 336 農薬原体について物性情報を USEPA が公開している EPISuite を用いて物性情報を算出した。これらの農薬に関して、出荷量と ADI、Kow、生分解の変化について調査した。

2) 農薬類実態調査結果の解析

分科会及び協力の 14 水道事業体の実態調

査結果から農薬検出濃度、検出頻度及び検出指標値(Σ 値)の集計を行った。

3) 各水道事業体における農薬実態調査の解析
農薬類の測定結果について、各地域での使用状況、土地利用状況、用途、天候等により検出状況の考察を行った。

4) 水道統計を用いた農薬の経年的検出状況

農薬の経年的な検出状況を把握するために、出荷量以外に、平成 21～23 年度の水道統計を用いて、農薬類の検出状況を解析した。値の精査が必要と考えられた場合は、電話等により聞き取りを行った。

5) 用途別出荷量、分解性等による検出可能性に関する検討

各農薬の検出可能性指標値の算定には、農薬出荷量、目標値 GV、降水量及びスコア値を用い、水田用とそれ以外(以下、畑地農薬という)に分けて以下のとおり算定した。

・水田農薬の検出可能性指標値 (ton / (μg/L) / km³) = 水田農薬出荷量 (ton) × 10 (スコア Y + スコア Z - 6) ÷ GV (μg/L) ÷ 降水量 (km³)

・畑地農薬の検出可能性指標値 (ton / (μg/L) / km³) = 畑地農薬出荷量 (ton) ÷ GV (μg/L) ÷ 降水量 (km³)

農薬出荷量及び降水量は、流域を考慮した地域単位(全 10 地域)または都道府県単位で設定した。農薬の検出実績は H19～H22 年度(4 ヶ年)の水道統計(水質編)13)-16)及び厚生労働科学研究・農薬分科会における収集データ(旧 2 群, 旧 3 群の測定結果)によった。

6) 新規農薬の実態調査と浄水処理性に関する検討

神奈川県河川流域 11 ヶ所を対象に、ネオニコチノイド系農薬の実態調査を行い、変動等に関する考察を行った。

7) 新規農薬の実態調査

神奈川県主要な水源である相模川流域の 10 地点において、年 20 回ネオニコチノイド系農薬等の実態調査を行った。

8) 新規農薬の安全性評価手法に関する検討

ネオニコチノイド系殺虫剤であるアセタミプリド、イミダクロプリド、チアクロプリド、ニテンピラム、チアメトキサム、ジノテフラン、クロチアニジンについて、ラット副腎髄質褐色腫から単離して株化された PC12 細胞

を用いて、細胞影響評価を行った。

また、遊離塩素初期濃度(0時間目)が1mg/Lとなるように塩素水を調製し、試験対象の農薬を5mg/L水溶液になるように1Lの塩素水に加え、室温で、3時間、6時間および24時間と攪拌し、試料採取し、固相抽出用カートリッジに通水した。

また、ミトコンドリアの活性障害を指標とする評価も実施した。

9) 水質事故原因物質に関する検討

規制項目以外の化学物質等について、水質事故事例などの収集を行い、水質事故の原因となった化学物質の特性等について考察を行った。

C. 研究結果及びD. 考察

1) 農薬の使用量推移等に関する検討

農薬要覧 2014 に記載されている平成 25 農薬年度 (平成 24 年 10 月～平成 25 年 9 月) の農薬製剤出荷量は約 23.6 万 t で昨年と比べて 2%程度増加している。農薬の出荷量はこれまで減少を続けてきたが、平成元年以降はじめて増加に転じた。平成 25 農薬年度における農薬の用途別農薬製剤出荷量は殺虫剤：84,356t、殺菌剤：43,245t、殺虫殺菌剤：20,266t、除草剤：75,511t であった。平成元年比で見ると、殺虫剤 46%、殺菌剤 44%、殺虫殺菌剤 34%、除草剤 51%であり、前年比では殺虫剤 1%、除草剤 6%、全体では 1%の増加となっている。登録農薬原体数は平成 26 年 3 月現在 561 種であり、増加傾向にある。

図 2 に示すように、出荷されている農薬類全体では調査対象期間において ADI 別出荷量は大きく変化していないが、殺虫剤、殺菌剤では ADI が高い (毒性が低い) 農薬の出荷量が減少し、ADI が低い (毒性が高い) 農薬の割合が増加している。除草剤では ADI が高い農薬の割合が増えている。

図 3 に示すように、出荷されている農薬の Kow は低い、すなわち水に溶解しやすい農薬の割合が増えている傾向にあり、特に、除草剤でその傾向が顕著であり、殺菌剤でも Kow の低い農薬の割合が増えていることが分かった。

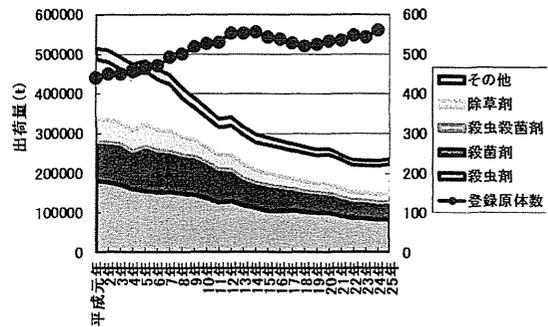


図 1 農薬出荷量と登録原体数の推移

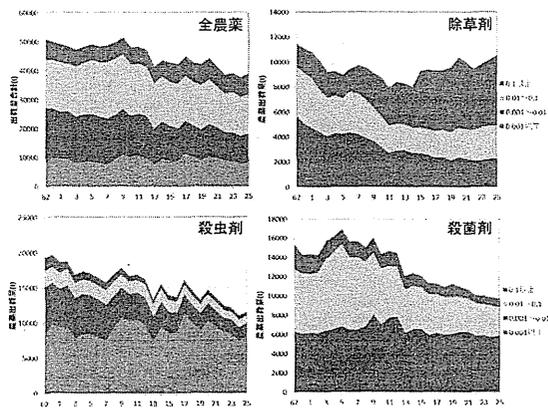


図 2 ADI 別農薬出荷量の推移

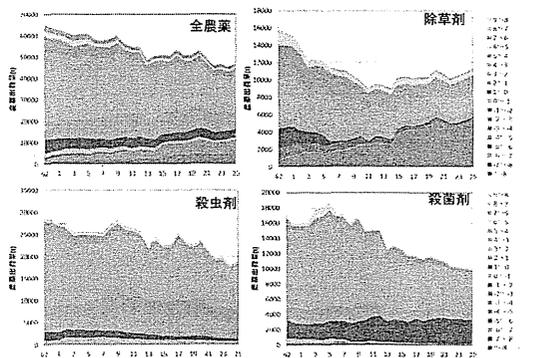


図 3 Kow 別農薬出荷量の推移

2) 農薬類実態調査結果の解析

今年度は全国 14 水道事業者 (八戸圏域水道企業団、仙台市、茨城県、千葉県、東京都、埼玉県、神奈川県、神奈川県内広域水道企業団、新潟市、奈良県、大阪市、神戸市、広島市、福岡県南広域水道企業団) で行われた農薬実態調査結果を集計し、検出された農薬についてとりまとめた。

分科会及び協力の 14 水道事業者の実態調査結果では、分解物、酸化物を含め合計 285 種類の農薬がモニタリングされ原水 83 種、浄

水 34 種の農薬が検出されている。測定農薬数は昨年度の 213 種類と比べ大幅に増加しているが、検出農薬数は昨年と同数である。2014 年 4 月に農薬の分類見直しが行われ、1 シーズン経過したことから分析法の検討等を踏まえ測定農薬数が増加したと考えられるが検出される農薬数は大きく変化していない。

平成 26 年度の実態調査において、原水では、検出最大濃度が $1\mu\text{g/L}$ を超えた農薬はプロモブチド、モリネート、グリホサート、ダイムロン、メコプロップ、ベンタゾン、プロバナゾール、シメトリン、プレチラクロール、イソキサチオンオキシソン、ブタクロール、フルトラニル、イマズスルフロン、アミノメチルリン酸の 14 農薬であった。昨年の 7 農薬に比べ検出農薬数は増加しており、特にイソキサチオンオキシソンやアミノメチルリン酸のような分解物も検出されている。積算濃度ではプロモブチド、ベンタゾンが $20\mu\text{g/L}$ を超え、他の農薬と比べ特に高い値を示した。昨年はこれにピロキロンを加えた 3 種の農薬が $20\mu\text{g/L}$ であったが、ピロキロンに関しては、検出最大濃度、積算濃度とも昨年と比べ減少している。個別農薬評価値では、モリネート、メコプロップ、テフリトリオン、イソキサチオンオキシソン、モリネート、プロモブチド、フィプロニルが 0.1 以上の値を示した。

浄水では、検出最大濃度が $0.1\mu\text{g/L}$ を超えた農薬は、アミノメチルリン酸、プロモブチド、ベンタゾン、ダラポン(DPA)、ピロキロン、プレチラクロール、フルトラニル、及びピラクロニルの 8 農薬であった。該当する農薬は異なるが昨年の調査と同数であった。アミノメチルリン酸およびフルトラニルが新しく加わった。ダラポンは、塩素処理由来であり、他の農薬と別の視点で対策を考慮する必要があるが、プロモブチド、ベンタゾン、ピロキロン、プレチラクロールはこれまでも検出濃度、頻度が高い農薬である。また、積算濃度ではプロモブチド、ベンタゾン、アミノメチルリン酸、ダラポン(DPA)、ピロキロン、プレチラクロールが比較的高い値を示している。グリホサートの分解物であるアミノメチルリン酸が浄水でも他の農薬と比べ高い濃度

で検出されていることから今後も注視していく必要がある。個別農薬評価値が 0.01 を超えた農薬はピラクロニル、フィプロニルであった。

これまで実施されてきた農薬類実態調査結果をデータベース化し、検出されている農薬のトレンドについて検討した。2010～2014 年の実態調査における Σ 値を評価したところ、原水における Σ 値は年度によってばらつきがあるが、年度毎の平均値は 0.018～0.031 であり、増加傾向にあることが示された(図 4)。また、多くの事業体では除草剤の寄与が高く、 Σ 値が最も高いのは多くの事業体で除草剤の影響を最も受ける 6 月下旬～7 月上旬であった。原水において過去 4 年間で個別農薬評価値の積算値に対する寄与が 1%以上の農薬はモリネート、ピロキロン、プロモブチド、フィプロニル、カフェンストロール、ベンタゾン、メフェナセット、ベノミル、プレチラクロールの 10 農薬で、4 カ年の調査ではこれら 10 農薬の寄与は 58～75%、平均 64%となった。事業体別に見ると寄与の高い農薬の種類は異なるが、これらの 10 農薬のいずれかが寄与の高い農薬として該当している事が分かった。10 農薬の用途はフィプロニルが殺虫剤、ピロキロン、ベノミルが殺菌剤であり、その他 7 農薬は全て除草剤であった。

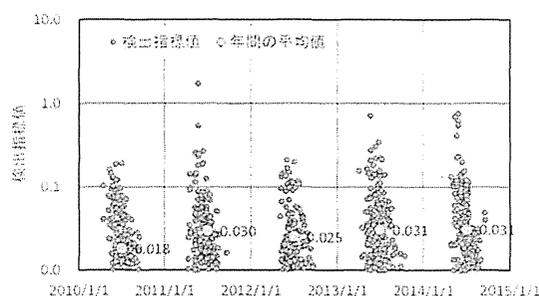


図 4 浄水における個別検出指標値の推移

3)各水道事業体における農薬実態調査の解析(八戸圏域) 両原水で 22 種の農薬類(対象リスト掲載農薬類 20 種・その他農薬類 1 種・除外農薬類 1 種)が検出された。浄水は例年の検出傾向同様、ベンタゾン、プロモブチド、プレチラクロールの 3 種が検出された。今年