

図 24 に微粉炭添加時の遊離塩素残存率の経時変化を示す。遊離塩素は微粉炭添加によりわずかに減少した。しかしながら、いずれの水温においても、遊離塩素の減少 (図 24) は、トリクロロミンの減少 (図 23) と比べて極めて小さかった。これより、トリクロロミンと遊離塩素が共存していても、微粉炭はトリクロロミンを選択的に分解除去可能であることが分かった。すなわち、微粉炭処理を行うことにより、遊離塩素の強い消毒力を保ちつつ、トリクロロミンのみを除去できることが示された。

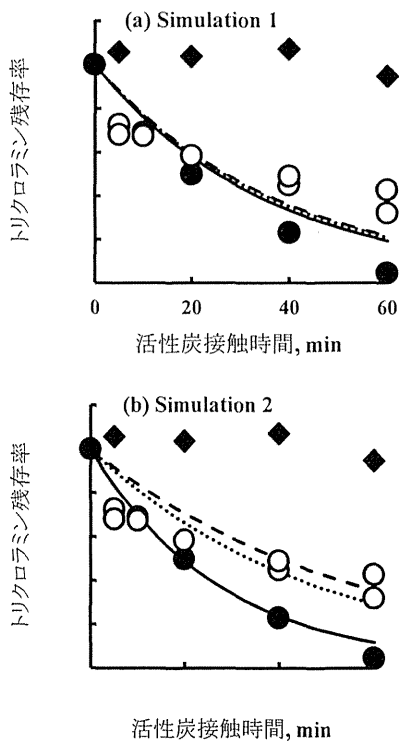


図 23 微粉炭 (木質炭 1, 1 mg/L) によるトリクロロミン分解結果 (上が Simulation 1, 下が Simulation 2)

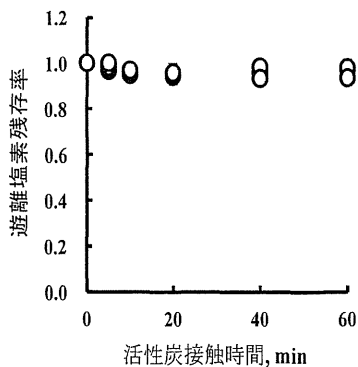


図 24 微粉炭 (木質炭 1, 1 mg/L) によるトリクロロミン分解実験における遊離塩素残存率の経時変化

(2) 活性炭の特性がトリクロロミン分解に与える影響

表 15 に、微粉炭の様々な特性とトリクロロミン表面分解速度定数の間の相関を示す。微粉炭細孔表面の塩基性官能基等量と分解速度定数の間に弱い正の相関 ($r^2 = 0.37$) が、酸性官能基等量と分解速度定数の間に中程度の負の相関 ($r^2 = 0.46$) が観察された。得られた相関自体は強くはないが、塩基性官能基等量との間に正の相関が観察されたことより、トリクロロミンは微粉炭細孔表面に存在する塩基性官能基との反応により分解された可能性が示唆された。

硫黄原子は活性炭の製造段階で容易に活性炭表面に固定化され (Donnet 1968)、スルフヒドリル基 (-SH) とジスルフヒド基 (-S-S-) は活性炭による臭素酸の還元的分解に寄与しているとの報告がある (Siddiqui et al. 1996)。スルフヒドリル基は還元性を有しているのみならず、弱い塩基として働くため (Ho 1975)、トリクロロミンは細孔表面に存在するスルフヒドリル基により還元的に分解されている可能性が考えられた。次亜塩素酸 (Pereira et al. 1973) やモノクロロミン (Jacangelo et al. 1987) は、システイン中のスルフヒドリル基と容易に反応し還元されるとの報告もあり、上述の仮説を支持しうる。

表 15 微粉炭の特性とトリクロロミンの細孔表面分解速度定数の相関

活性炭特性	相関の記号	r^2	
表面官能基等量 (meq/g)	塩基性	+	0.37
	酸性	-	0.46
元素含有率 (%)	C	+	0.00
	N	-	0.31
	S	-	0.13
	O	-	0.03
ゼータ電位 (mV)	-	0.15	
等電点	-	0.01	
電位ゼロ点	+	0.56	

4.4 東京都水道局による調査

(1) 原水水質悪化時の実態調査

調査結果を表 16 に示す。朝霞浄水場原水でアミン類が 0.18 mg/L 検出されたが、浄水場では前塩素注入を実施したため、沈殿水で大きく減少した。これは前塩素によってアミン類が他の塩素化合物に変化したためと考えられる。

また、朝霞浄水場及び三郷実験プラントでは BAC 処理でアミン類は除去された。

表 16 各処理工程でのアミン類濃度

浄水場名	原水	沈殿水	前段砂ろ過水	オン処理水	BAC 処理水	後段砂ろ過水
朝霞(5/22)	0.18	0.03	0.04	0.04	0.00	0.00
三郷実験プラント	0.02	0.05	0.06	0.05	0.00	

(2) 生物活性炭カラムによるアミン類等の処理性把握

下水処理水の割合の高い河川水を凝集沈殿、砂ろ過した後、BAC 処理でのアミン類、アンモニア態窒素の処理性を調査した。各項目の除去率を表 17 に示す。高水温ではアミン類及びアンモニア態窒素とも 90%以上の除去率が得られたが、低水温では 60%程度の除去率にとどまった。このことから、アミン類もアンモニア態窒素と同様に生物活性が低下する低水温期には、アミン類の濃度によっては BAC 池から漏洩すると考えられる。

表 17 アミン類等の BAC での処理性

項目	除去率 (%)	
	高水温 (24.7°C)	低水温 (7.8°C)
アミン類	96.4	61.8
アンモニア態窒素	91.2	63.4

(3) キャピラリー電気泳動法によるアミン類の分析

再度、下水処理水の割合の高い河川水を凝集沈殿、砂ろ過した後、アミン類等の処理性を調査すると共にキャピラリー電気泳動法によるアミン類の分析を委託で行った。各項目の除去率を表 18 に示す。高水温ではアミン類及びアンモニア態窒素とも 80%程度の除去率が得られたが、低水温では 30~40%程度の除去率にとどまった。前回よりも除去率が低下しているが、BAC の経年劣化、水温の影響が考えられた。さらに、キャピラリー電気泳動法でモノメチルアミン、ジメチルアミン、トリメチルアミン、モノエチルアミン、ジエチルアミン、トリエチルアミン、その他アミンの分析を行った。しかし、すべての試料で各項目についてエレクトロフェログラムにピークが得られず、不検出であった。例として BAC 処理水 (高水温) のエレクトロフェログラムを図 25 に示す。

キャピラリー電気泳動法は比較的 low molecular weight のアミン類を分析できることから、比色法で検出されたアミン類は分子量の大きなアミン類である可能性が示唆された。

表 18 アミン類等の BAC での処理性

項目	除去率 (%)	
	高水温 (21.1°C)	低水温 (5.0°C)
アミン類	81.7	33.3
アンモニア態窒素	82.2	44.9

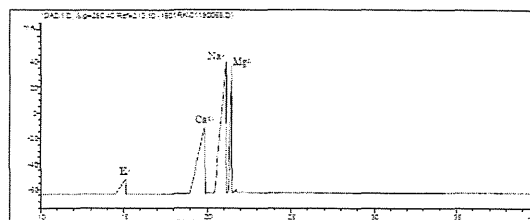


図 25 BAC 処理水 (高水温) のエレクトロフェログラム

4.5 千葉県水道局による調査

DPD 法によるクロラミン測定では、ほとんどの試料でモノクロラミン、ジクロラミン+1/2 トリクロラミンとも検出された。これに対して、インドフェノール法では、モノクロラミンはほとんど検出されず、DPD 法とインドフェノール法のモノクロラミン濃度には相関がなかった (図 26)。

図 26 の結果から、DPD 法では有機クロラミンを検出していると考えられる。また、図 27 に示すように、DPD 法によるモノクロラミンとジクロラミン+1/2 トリクロラミン濃度は一定の割合になった。この結果は各調査地点のものをまとめており、流入河川の水質により結合塩素の生成量は違うものの、モノクロラミン、ジクロラミン+1/2 トリクロラミンの比率は各地点とも似たような挙動を示すことがわかる。この結果から、有機クロラミンの原因物質は特定の排出源ではなく生活排水などに由来する可能性がある。

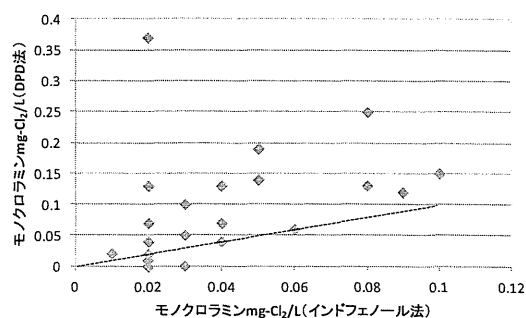


図 26 DPD 法とインドフェノール法によるモノクロラミン濃度の相関

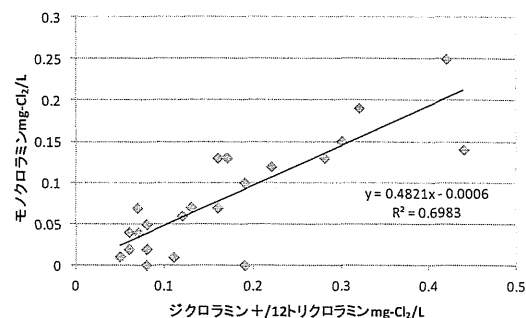


図 27 DPD 法によるモノクロラミンとジクロラミン+1/2 トリクロラミン濃度の相関

E. 結論

- ・ トリクロロ酢酸の基準強化に際して、緩速ろ過池への粒状活性炭の敷き込みが有効であること、色度をトリクロロ酢酸生成能の管理する指標として用いることが明らかとなった。
- ・ ラフィド藻増殖時に伴うハロ酢酸生成能の増大を確認した。
- ・ ジクロロベンゾキノンについて、浄水処理過程における生成能の挙動を把握した。
- ・ カルキ臭の観点から *N*-クロロアセトアルドイミンに注目し、その定量方法を確立した。
- ・ 淀川水系において *N*-ニトロソアミンの1つである NDMA の長期トレンド調査を継続し、前駆体濃度が減少傾向にあることを確認した。
- ・ 水道水中のトリクロラミンについて、広範囲にわたる生成実態を把握し、残留塩素濃度との関係を検討した。
- ・ 活性炭によるトリクロラミン分解について、拡散-反応モデルを構築した。
- ・ 揮発性含窒素化合物の分析手法を開発し、臭気強度と揮発性窒素との高い相関を見いだした。
- ・ 生物活性炭によるアミン類及びアンモニア態窒素の処理性を把握した。

F. 参考文献

American Public Health Association/American Water Works Association/Water Environment Federation: Standard Methods for Examination of Water and Wastewater, American Public Health Association, 2005.

Donnet, J.B.: The chemical reactivity of carbons, *Carbon*, 1968, 6, 161-176.

Hayduk, W. and Laudie, H.: Prediction of diffusion coefficients for non-electrolysis in dilute aqueous solutions, *AIChE J.*, 1974, 20, 611-615.

Ho, T.-L.: Hard soft acids bases (HSAB) principle and organic chemistry, *Chem. Rev.*, 1975, 75, 1-20.

Jacangelo, J.G., Olivieri, V.P. and Kawata, K.: Oxidation of sulfhydryl groups by monochloramine, *Water Res.*, 1987, 21, 1339-1344.

Pereira, W.E., Hoyano, Y., Summons, R.E., Bacon, V.A. and Duffield, A.M.: Chlorination studies II. The reaction of aqueous

hypochlorous acid with α -amino acids and dipeptides, *Biochim. Biophys. Acta - General Subjects*, 1973, 313, 170-180.

Siddiqui, M., Zhai, W., Amy, G. and Mysore, C.: Bromate ion removal by activated carbon, *Water Res.*, 1996, 30, 1651-1660.

水道水源における消毒副生成物前駆物質汚染対応方策検討会:「水道水源における消毒副生成物前駆物質汚染対応方策について」とりまとめ(平成 25 年 3 月), 2014.

益崎大輔, 田中航也, 平林達也:ヘキサメチレンテトラミンのオゾン処理生成物の同定,水道協会雑誌,2014, 83(3), 2-8.

G. 発表

1. 論文発表・著書・総説

小坂浩司, 福田圭佑, 浅見真理, 越後信哉, 秋葉道宏:トリクロラミン生成能におよぼす2段階塩素処理条件の影響, 土木学会論文集G(環境), 2014, 70 (7), III_9-III_16.

Kosaka K., Asami M., Ohkubo K., Iwamoto T., Tanaka Y., Koshino H., Echigo S. and Akiba M.: Identification of a new *N*-nitrosodimethylamine precursor in sewage containing industrial effluents, *Environ. Sci. Technol.*, 2014, 48, 11243-11250.

浅見真理, 小坂浩司, 島崎大, 武井佳奈子:塩水電解による塩素酸・過塩素酸の生成特性と電極材質に関する検討, 水環境学会誌, 2014, 14 (5), 189-195.

Kosaka K., Kobashigawa N., Nakamura R., Asami M., Echigo S. and Akiba M.: Control of trichloramine formation by two-step chlorination in water purification processes, *Water Sci. & Technol.: Water Supply*, 2014, 14 (4), 650-656.

Kosaka K., Asami M., Nakai T., Ohkubo K., Echigo S. and Akiba M.: Formaldehyde formation from tertiary amine derivatives during chlorination, *Sci. Total Environ.*, 2014, 488-489, 325-332.

Sakuma M., Matsushita T., Matsui Y., Aki T., Isaka M. and Shirasaki N.: Mechanisms of trichloramine removal with activated carbon: Stoichiometric analysis with isotopically labelled trichloramine and theoretical analysis with a diffusion-reaction model, *Water Res.*, 68, 839-848.

2. 学会発表

小坂浩司, 浅見真理, 大久保慶子, 秋葉道宏: 水道における *N*-ニトロソジメチルアミン前駆物質の実態調査, 第 49 回日本水環境学会年会講演集, 金沢, 2015.3, 83.

清宮佳幸, 小坂浩司, 浅見真理: 有機アミン類の塩素処理によるクロラミン生成に関する研究, 第 49 回日本水環境学会年会講演集, 金沢, 2015.3, 159.

中井喬彦, 小坂浩司, 浅見真理, 秋葉道宏: 塩素処理によるハロベンゾキノンの生成特性, 第 49 回日本水環境学会年会講演集, 金沢, 2015.3, 160.

小坂浩司, 福田圭佑, 浅見真理, 越後信哉, 秋葉道宏: トリクロラミン生成能におよぼす 2 段階塩素処理条件の影響, 土木学会論文集 G (環境) (環境工学研究論文集第 51 巻), 山梨, 2014.12, 70 (7), III_9-III_16.

小坂浩司, 浅見真理, 大久保慶子, 岩本卓治, 越野広雪, 越後信哉, 秋葉道宏: オゾン処理による *N*-ニトロソジメチルアミン前駆物質の排水中からの同定と淀川流域での寄与の評価, 平成 26 年度全国会議 (水道研究発表会) 講演集, 名古屋, 2014.10, 546-547.

中井喬彦, 森岡弘幸, 島孝欣, 小坂浩司, 浅見真理, 秋葉道宏: 水道原水中のジクロロベンゾキノン生成能の実態調査, 平成 26 年度全国会議 (水道研究発表会) 講演集, 名古屋, 2014.10, 544-545.

池亀翔平, 田澤しおり, 佐久間美紀, 松下拓, 松井佳彦, 白崎伸隆: フェニルアラニンの塩素処理で生成する臭気物質の同定とその活性炭除去, 平成 26 年度全国会議 (水道研究発表会) 講演集, 名古屋, 2014.10, 200-201.

佐久間美紀, 松下拓, 松井佳彦, 井阪雅仁, 安芸朋子, 白崎伸隆: 活性炭によるトリクロラミン除去メカニズムの解明: 同位体ラベリングによる化学量論的解析と拡散反応モデルによる理論的解析, 第 49 回日本水環境学会年会講演集, 金沢, 2015.3, 483.

木村亮太, 越後信哉, 伊藤禎彦, 川口佳彦: 水道水のカルキ臭評価を目的とした揮発性窒素化合物の測定手法の開発, 析, 第 49 回日本水環境学会年会講演集, 金沢, 2015.3, 158.

中山恵裕, 越後信哉, 伊藤禎彦: カルキ臭原因物質 *N*-クロロアセトアルドイミンの定量, 第 49 回日本水環境学会年会講演集, 金沢, 2015.3, 161.

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

－リスク評価管理分科会－

研究代表者	松井 佳彦	北海道大学大学院工学研究院 教授
研究分担者	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
研究分担者	小野 敦	国立医薬品食品衛生研究所・総合評価研究室 主任研究官
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 上席主任研究官
研究分担者	大野 浩一	国立保健医療科学院生活環境研究部 上席主任研究官
研究協力者	平田 睦子	国立医薬品食品衛生研究所・総合評価研究室 研究員
研究協力者	鈴木俊也	東京都健康安全研究センター 薬事環境科学部 副参事研究員
研究協力者	西村 哲治	帝京平成大学・薬学部・薬学科 教授
研究協力者	小林 憲弘	国立医薬品食品衛生研究所 生活衛生化学部 第三室室長
研究協力者	江馬 眞	国立医薬品食品衛生研究所 客員研究員
研究協力者	長谷川 隆一	国立医薬品食品衛生研究所 客員研究員
研究協力者	高橋 美加	国立医薬品食品衛生研究所・総合評価研究室 研究員
研究協力者	松本 真理子	国立医薬品食品衛生研究所・総合評価研究室 研究員
研究協力者	川村 智子	国立医薬品食品衛生研究所・総合評価研究室 研究員
研究協力者	加藤 日奈	国立医薬品食品衛生研究所・総合評価研究室 研究員
研究協力者	小林 克己	国立医薬品食品衛生研究所・総合評価研究室 研究員
研究協力者	小熊 久美子	東京大学大学院工学系研究科都市工学専攻 准教授
研究協力者	高橋 和彦	東京都水道局浄水部浄水課 水質担当課長
研究協力者	金見 拓	東京都水道局浄水部浄水課 課長補佐
研究協力者	古林 祐正	阪神水道企業団 技術部 浄水管理課 主査
研究協力者	野本 雅彦	北千葉広域水道企業団 技術部水質管理室 副主幹
研究協力者	服部 晋也	大阪市水道局工務部水質試験所 担当係長
研究協力者	森田 久男	埼玉県大久保浄水場 水質部長
研究協力者	上杉 佳寛	公益社団法人 日本水道協会 工務部 水質課 水質第一係長

研究要旨

水質事故発生時などの非常時に市民の安全と公衆衛生を確保するため、摂取制限による給水継続の対応を含めた水質異常時の対応のあり方に関する検討を行った。諸外国の事故事例や標準対応方法に関する調査および WHO 飲料水水質ガイドラインの調査の結果、公衆衛生の維持及び消火用水確保などの観点から、大規模な事業体では特に給水停止を行うことは少なく、摂取制限や煮沸勧告対応が多いことが示された。また、

対応は水道事業者と地方の水道監督機関との協議の上で決定する場合が多く、水道事業者単独で判断をすることは、調査した範囲ではほとんどなかった。短期間摂取による健康影響については専門家や衛生担当部局などに相談し、基準値とは別の健康助言値等の利用を重視している。以上の点は、平成 23 年 3 月の放射性ヨウ素暫定指針値超過による摂取制限時の広報に関する報告においても当てはまり、特に健康・公衆衛生部局との緊密な連携が重要なことが示された。

摂取制限を伴う給水継続を仮定した場合の対応について検討した結果、まずは取水停止を行うこととその判断基準を明確にすることが重要であると考えられた。また、取水停止期間が長期化した場合、水供給が停止するおそれがあり市民生活への影響が非常に大きくなる一方で、水質基準を超える水を供給した場合、施設洗浄や水替えが必要となることで影響時間が長くなる可能性もあり、短期間であれば供給停止を選択した方が影響時間は短くなることも考えられた。影響が長期間に及ぶ場合は、生活用水としての取水再開を検討することなどの案が提案された。

経口曝露換算の総潜在用量、割当率および間接飲水量の推定においては、トリハロメタン類(THMs)4 種とハロ酢酸類(HAAs)3 種の消毒副生成物を対象に解析を行った。THMs 類と HAAs 類の物性は大きく異なるが、消毒副生成物の割当率として 20 %のデフォルト割当率を使用することが妥当であると考えられ、新基準値案を含む現行の水道水水質基準値の妥当性を支持するものであった。

水道水摂取量アンケート調査の再解析により、水道水質の健康リスク評価に直接利用することのできる「潜在的な水道水摂取量 (pTWI)」が提案でき、内訳として、水道水直接摂取、ボトル水、清涼飲料水(アルコール飲料と牛乳は含まない)、水道水間接摂取(スープ類、ご飯中の水道水)の摂取量の総和で表すことが適切であることを示すことができた。

日本の水質基準項目のうち、実験動物を用いた毒性試験の結果を基に基準値が設定された 19 項目について、食品安全委員会の評価書を基に、毒性情報を収集・整理した上で、安全性評価を行い、亜急性評価値 (Subacute Reference Dose; saRfD) の算出を試みた。

複合曝露評価に関する研究では、有機リン系農薬 22 種について Hazard index 法及び Relative potency factor 法による評価を行った。

環境蓄積性汚染物質として知られているパーフルオロテトラデカン酸 (PFTeDA)及びパーフルオロヘキサデカン酸 (PFHxDA)を投与したラットの血清中のパーフルオロカルボン酸 (PFCA)類の濃度を測定した結果、PFTeDA 及び PFHxDA 以外の PFCA 類が多く検出された。被験物質中に不純物として含まれていた微量の PFCA 類が PFTeDA 及び PFHxDA の毒性発現に関与している可能性が考えられる。

A. 研究目的

平成 23 (2011)年 3 月の放射性ヨウ素暫定指針値超過による摂取制限および平成 24 (2012)

年 5 月のホルムアルデヒド前駆物質事故と給水停止対応を受けて、水質事故発生時などの非常時に市民の安全と公衆衛生を確保するた

め、摂取制限による給水継続の対応を含めた水質異常時の対応のあり方に関する検討を、昨年度に引き続き行った。

海外における水質異常時における標準的な対応について、原則給水停止を行わず使用制限等によって給水を継続すること、その理由としてトイレ用水、消防用水等の確保による衛生状態や都市機能の維持を重視していること、また、住民への通知・広報対策を重視していることなどが昨年度の研究で示された。本年度は、さらに水質異常時の対応についての調査を行うことに加えて、米国と欧州における水質異常、水質事故や緊急事態における実際の対応事例の調査を行った。加えて、WHO 飲料水水質ガイドライン文書における水質異常時の対応に関する考え方を整理した。

経口曝露換算の総潜在用量、割当率および間接飲水量の推定においては、昨年度は、生理学的薬物動態(PBPK)モデルを用いて吸入、経皮曝露量を経口曝露時の体内負荷量換算する新しい曝露量分布推定方法の適用について、クロロホルムを対象として検討を行った。本年度は昨年度の方法に飲水量分布を考慮した方法へと発展させ、クロロホルム以外のトリハロメタン類(THMs)とハロ酢酸類(HAAs)の消毒副生成物を対象に、現行の飲料水割当率、水道水質基準値の妥当性を評価し、飲水以外の水道水由来の曝露量から間接飲水量を算出することを目的とした。

過去にアンケートを行った摂水量調査のデータを再解析し、これまで示してきた全液体摂取量ではなく、水道水質の健康リスク評価に直接寄与することのできる「潜在的な水道水摂取量(pTWI)」について提案することを試みた。

水道汚染物質に関する急性/亜急性評価値に関して、昨年度は、米国環境保護庁(Environmental Protection Agency: EPA)によ

て設定された健康に関する勧告値 (Health advisory: HA)を中心に、設定方法や根拠について調査を行い、日本の基準項目について割当率、体重及び飲水量のみで換算した評価値を試算した。本年度は、実際に毒性情報を評価し亜急性評価値の算出を試みた。

水道水中の農薬に関する複合曝露評価手法を検討するために、農薬類の中で共通の作用として最も良く知られているコリンエステラーゼ (ChE)阻害作用に焦点を当て、複合曝露評価を試みた。昨年度はカルバメート系農薬について Hazard index (HI)法及び Relative potency factor (RPF)法による評価を行った。本年度は、有機リン系農薬の複合曝露評価手法に関する検討を行った。

パーフルオロカルボン酸 (PFCA)類は、環境中での残留性が高く、ヒト健康への影響が懸念されている。炭素数 12 以上の長鎖 PFCA については、炭素数が長い程毒性は弱まるということが明らかとなっている。本研究では、長鎖 PFCA 類の毒性強度の違いの要因を明らかにすることを目的としている。本年度は、炭素数 14 のパーフルオロテトラデカン酸 (PFTeDA)及び炭素数 16 のパーフルオロヘキサデカン酸 (PFHxDA)を投与したラットの血清中 PFCA 濃度を測定した。

B. 研究方法

1. 突発的水質事故時等の対応のあり方に関する研究

突発的水質事故発生時などの非常時に市民の安全と公衆衛生を確保するため、摂取制限による給水継続の対応を含めた水質異常時の対応のあり方に関する検討を行った。いくつかの水道事業者等に対して問い合わせを行い、報告を受けることで検討を行った。

本研究では、福島第一原子力発電所事故時における広報の事例報告、ホルムアルデヒド

事故を受けた用水供給事業体の対応と改善策等についての報告、受水団体への聞き取り調査を行った。また、「摂取制限等を伴い給水継続を実施」すると仮定したときの対応に関連して、取水停止・再開の判断基準、応急給水方法など摂取制限実施の際の対応、広報、保険の適用について検討を行った。

2. 海外における水質異常時や緊急事態への対応に関する調査研究

米国、欧州、オーストラリアにおける水質異常時や緊急事態における対応などの事例調査をインターネット検索、資料の調査、および聞き取り調査により実施した。また、WHO 飲料水水質ガイドラインにおける水質異常時や緊急事態対応の考え方について、ガイドライン文書第4版を用いて整理した。

3. 経口曝露換算の総潜在用量、割当率および間接飲水量の推定

水道水中の THM や HAA 類の濃度をある値に仮定したときの、経口換算の吸入、経皮、経口経由の潜在用量の総和は、飲水量や食品摂取量、入浴時間の違いなどのシナリオで異なるため、シナリオ作成を乱数発生させたモンテカルロシミュレーションを行い、曝露量の生起確率分布を求めた。曝露分布の95%値に相当する曝露量が TDI(耐容一日摂取量)に一致するような濃度を、THMs 4 物質と HAAs 3 物質について算出した。

4. 成人の潜在的な水道水摂取量の推定に関する研究

過去の研究におけるアンケート調査データを利用して2種類の再解析を行った。1つはご飯の摂取量を元に水道水由来でご飯に含まれる水分の推定、もう1つはこれまで「清涼飲料水類」の分類として一緒に計算を行っていた、清涼飲料水(ジュース類)・牛乳・アルコール飲料・その他飲料の項目の分割である。これらの項目を分割したうえで水道水、ボト

ル水などとの相関解析を行うことで、各分類項目の摂取量と水道水摂取量とが補完関係にあるか否かについて検討を行った。

5. 水道汚染物質の亜急性評価値に関する研究

日本の水質基準項目のうち、実験動物を用いた毒性試験の結果を基に基準値が設定された19項目について、食品安全委員会の評価書を参考にして、亜急性評価値を求めた。

本研究では、亜急性曝露に関する評価値を亜急性参照用量(Subacute RfD: saRfD)と呼ぶこととした。saRfDは、ヒトがおよそ1か月間曝露した場合を想定し、非発がん影響に関しては、90日間曝露試験及び生殖発生毒性試験から無毒性量(NOAEL)を求め、不確実係数(UF)を適用してsaRfDを求めた。信頼性の高い90日間曝露試験がない場合は、慢性毒性試験の結果を採用した。UFは、種差10、個人差10の他、NOAELが求められない場合などは適宜追加のUFを適用した。遺伝毒性発がん物質については 3×10^{-5} 発がんリスクに相当する曝露レベル及び非発がん影響に関するsaRfD相当値を求め、より低い値をsaRfDとした。

6. 有機リン系農薬の複合曝露評価に関する研究

水質管理目標設定項目の対象農薬のうち、有機リン系殺虫剤、殺菌剤及び除草剤計22物質を対象として、コリンエステラーゼ(ChE)阻害作用に関する情報を収集・整理した上で、HI法及びRPF法による評価を行った。各物質の曝露量については、平成24年度の水道統計データより、浄水場出口水の最高値を用いた(<http://www.jwwa.or.jp/mizu/pdf/2012-b-02deg-01max.pdf>)。濃度は、区分ごとに記載されていたため、最高濃度が属する区分の上限値を用いることとした。例えば最高値が20~30の区分である場合は30を用いた。

7. 長鎖パーフルオロカルボン酸類の毒性発

現の違いに関する研究

PFTeDA 及び PFHxDA の反復投与毒性・生殖発生毒性併合試験で採取した血清サンプル中の PFCA 濃度を測定した。

標準物質および試薬

PFCA 類: パーフフルオロドデカン酸 (PFDoA)、PFTeDA、PFHxDA およびパーフルオロオクタデカン酸 (PFocDA) は Exfluor Research Corporation が合成したものを使用した。各 10mg を採り、アセトンで 10mL とし、各溶液の 1mL をメスフラスコに採り、メタノールで 100 倍に希釈した。表 1 に示したその他の PFCA 類 (2mg/L メタノール溶液) は ウェリントンラボオラトリー社 (PFC-MXA) から購入した。

サロゲート溶液: パーフフルオロオクタデカン酸の 2 重水素体 (PFOA-13C₂、ウェリントンラボオラトリー製、MPFOA) 10mg を採り、メタノールで 10mL とした。その溶液 1mL をメスフラスコに採り、メタノールで 1000 倍希釈し、1 μ g/mL の溶液を調製した。

0.5M 硫酸水素テトラブチルアンモニウム (TBAS) 溶液: TBAS の試薬特級 (和光純薬) 17.0g を採り、精製水で 80mL にし、水酸化ナトリウムで pH10 とした後、全量を 100mL とした。

0.25M 炭酸ナトリウム: 試薬特級 (和光純薬) 5.3g を採り、精製水で全量を 200mL にした。

メチルターシャリーブチルエーテル (MTBE): 水質試験用 (関東化学)

酢酸アンモニウム: 試薬特級 (和光純薬)

精製水: 水道水を純水製造装置 Elix UV5 (ミリポア製) で処理した。

メタノール: 残留農薬試験用 (和光純薬)

アセトニトリル: 高速液体クロマトグラフィー用窒素ガス

LC/MS/MS の分析条件

本実験に用いた LC/MS/MS の LC 部は Acquity SDS (ウォーターズ製)、MS/MS 部は Xevo-TQMS (ウォーターズ製) であった。LC 部の分析条件はつぎのとおりであった。カラム:

BEH C18 (粒径 1.7 μ m、2.1 x 50 mm)、移動相: A 液 10mM 酢酸アンモニウム-CH₃CN (10:90)、B 液 10mM 酢酸アンモニウム。グラジエント分析の条件: A 液 40% で 1 分間保持し、10 分後に A 液 100% になるようにグラジエントをかけ、15 分まで保持し、15.01 分から 20 分まで A 液 40% とした。カラム温度: 40°C、試料注入量: 5 μ L。MS/MS 部の分析条件はつぎのとおりであった。キャピラリー電圧: 1.5kV、イオン源温度: 120°C、脱溶媒温度: 350°C、コーンガス: 0.15L/hr、脱溶媒ガス: 650L/hr、検出器電圧: 650V。その他の分析条件は表 1 に示すとおりであった。

分岐型 PFCA の測定も行った。逆相系 ODS カラムを用いた場合、それら分岐鎖 PFCA の保持時間は、直鎖 PFCA の保持時間より若干短くなることが知られている。本研究においても、各直鎖 PFCA のすぐ手前に、親イオン>娘イオンが同じ複数のピークが認められた。分岐鎖の標準品は入手できなかったため、直鎖 PFCs のピーク面積に基づき分岐鎖 PFCA を定量した。

試験溶液の調製

血清 200 μ L を共栓ガラス製スピッツに採り、サロゲート溶液 1 μ g/mL をマイクロシリンジで 10 μ L 添加した。ついで、メタノール 400 μ L を加え、攪はん後 5 分間放置し、除タンパクを行った。TBAS (pH10) 200 μ L および 0.25M 炭酸ナトリウム 400 μ L を添加し、攪はん後 2 分間放置し、PFCs と TBAS のイオンペアを形成させた。さらに、MTBE 約 2mL を添加し、ミキサーで 1 分間攪はん後、10°C、3500rpm で 10 分間遠心分離し、MTBE 層を共栓ガラス製スピッツに分取した。再度、MTBE 約 2mL をスピッツに加え、ミキサーで 1 分間攪はん後、10°C、3500rpm で 10 分間遠心分離し、MTBE 層を分取し、先の MTBE 層と合わせた。MTBE 層を窒素気流下で乾固し、メタノール 0.2mL を加え、十分に攪はんし、これを試験溶液とした。

反復投与毒性・生殖発生毒性併合試験で、投与に使用した被験物質内の PFCA 含量を調べた。被験物質 10mg をアセトン 10mL に溶解したのち、その 1mL を正確にとり、メタノールで 100 倍希釈し、1mg/L 溶液を調製し、LC/MS/MS で測定した。

倫理面への配慮

本研究では、ラットの血清中濃度を測定しているが、実験動物に対する動物愛護等を配慮して実施した過去の別研究で採取した試料を用いているので、該当しない。

C. 研究結果

1. 突発的水質事故時等の対応のあり方に関する研究

福島第一原子力発電所事故時における広報については、以下の通りである。平成23年3月23日午前10時すぎ、前日に金町浄水場で採水した浄水から、乳児の飲料に関する暫定指標を超える放射性ヨウ素の検出が確定した。東京都水道局では直ちに検査結果を知事に報告し、協議の結果、指標値を超えた水道水がお客様に届けられるリスクを回避するため、速やかに公表することになった。午後2時頃に東京都水道局浄水部長と福祉保健局技監（医師）による共同記者会見にて、23区及び多摩地区の一部の地域で乳児の引用摂取を控える広報を行った。この会見は生中継で行われ、放送直後から多くの問い合わせが入ることとなり、電話対応は混乱を極めた。同時期に原子力発電所事故の深刻な状況が報道され、水道水のほかにも、食品、大気、土壌等の放射能汚染についての問い合わせが殺到していたことから、これらの問い合わせに一括して対応するため、東京都災害対策本部として複数の部局が共同で「原発事故による食品の放射能汚染に関する都民向け臨時相談窓口」を設置した。顧客からの問い合わせ内容で多かった内容としては、自宅の水道水がどこの浄水

場から来ているのか、妊婦への健康影響、家庭での除去方法、があった。また、水道局としては、問い合わせ対応用として、水質専門職が福祉保健局と協力して健康影響についてのQ&Aを作成し、お客様センター、営業所に配布し周知した。その後も東京都水道局では、この初めての事態に接し、厚生労働省、東京都福祉保健局、また東京都災害対策本部を所管する東京都総務局など関係各所と緊密に連携を取りながら、対応に当たった。その他、当時の広報の状況についての報告がなされた。

ホルムアルデヒド事故においては、用水供給事業者が取水停止、さらに結果的に送水停止を余儀なくされ、受水団体が断水せざるを得なくなった。この事態を受けて、用水供給事業者と受水団体との情報共有が必要と考えられた。当該事故後には、事故の状況や内容等に応じた情報の伝達方法を精査して水質事故情報の基本的な扱いを定めて現在に至っている。水源のリスク対策としては、近傍水道事業者からの融通、中間調整池の整備、受水団体と共同の水質事故訓練を継続的に実施することとした。

さらに、受水団体に対して事故時の状況についての聞き取り調査を行った結果を以下に示す。人手が足りないこと、水道部局以外の組織にも影響が及ぶこと、広報を含む住民とのコミュニケーションが十分でなかったことの3点の問題に集約されると考えられた。

ホルムアルデヒド事故による送水停止、断水への対応の問題点について：

1. 職員数が必要となる

- 1) 初期の混乱期と対応期間が長期化における職員不足
- 2) 広報に多くの労力
- 3) 情報共有の難しさ

2. 水道部局だけでは対応出来ない

- 1) 応援協定の発効に時間がかかった。体制が機能していない部分があった。

- 2) 水運用による応援の難しさ
- 3) 休日、夜間でも対応出来る体制となっていない

3. 異常時対応における住民とのコミュニケーション

- 1) 水道事業者が、減・断水が生死にかかわる施設や、損害の大きい施設を把握できていなかった
- 2) 住民への事前通知ができていなかった。住民の理解が十分には得られていなかった。

「摂取制限を伴い給水継続を実施」の選択肢を仮定した場合の対応については以下の通りである。淀川を水源とする用水供給事業者（阪神水道企業団）の例として、まず、取水停止・再開の判断基準を検討した。これまでの判断基準は「浄水処理により除去することが困難となった場合」に取水停止することとしており、具体性に欠けるものとなっていた。その後、水安全計画を策定する中で、水質危害の発生原因を抽出し、管理措置を定めた。このことも含め、取水停止の判断基準をより具体化した取水停止・再開の判断基準を検討した。検討中の基準を表2に示す。取水停止については、毒物、VOC、油、海水流入、濁度、病原性微生物・クリプトスピリジウム、かび臭物質の7項目について検討中である。また、取水停止・再開の判断フローとしての検討例を図1に示す。取水停止期間が長期化した場合は、構成市（受水団体）への供給が停止するおそれがある。供給停止に至ると飲料用水はもとより市民の生活や都市活動が停滞することとなるため、影響が非常に大きい。その一方で、前述したように水質基準を超える水を供給した場合、最終的には施設の洗浄や水替えが必要となることで影響時間が長くなる可能性もあることから、短期間であれば供給停止を選択した方が影響時間は短くなることも考えられる。取水再開においては、水運用

への影響や影響時間等を考慮しながら判断する必要がある。影響が長期間に及ぶ場合や構成市からの取水再開の要請があった場合には、その都度、取水再開を検討する。また、水質事故時等の摂取制限実施時には、調整池等の水を応急給水用水として確保しながら、生活用水を供給することを考えている。阪神水道の応急給水用に確保可能な貯留水量は、約50,000m³であり、1人1日2Lとした場合、構成市の給水人口250万人に対して概ね10日分の飲用水の確保が可能である。

摂取制限方策が行われると仮定した際の住民への広報については、報道機関に対する記者発表、広報誌（月1回）、受水団体への周知（用水供給事業者の場合）、メール、ホームページ、テレビ、広報車、電話、FAXなどが挙げられた。

応急給水方法に関連して、ある用水供給事業者が受水団体（市町）の自己水の占有率を調査したところ図2のようになった。占有率20%以下の事業者が最も多く、自己水での給水可能時間は4～8時間の配水所が多いことが一例として示された。また、上水道事業者の応急給水手法として、広域避難場所等へ仮設給水層を設置する拠点給水と重要施設の貯水槽へ応急給水車を使用する運搬給水の主に2通りが計画されていること、その他に災害時に自動的に弁が閉まり、消火用、飲料用水として貯水機能を持たせた耐震性貯水槽が区域内に30箇所程度設置されていることが紹介された。

摂取制限等を伴う給水継続対応時に適用できる保険について検討を行った。その結果、水道賠償責任保険については、今回の事象の一部に対応できるかもしれない。しかし、水道賠償責任保険は、水道により供給した水によって生じた身体障害や財物損壊を対象としており、法律上の損害賠償責任を負うことによって被る損害賠償金等の損失を保険金として支払うものとしている。摂取制限等を伴う

給水継続は、法律上の損害賠償責任が、今のところ不明確なため、この保険で対応できるかについては不明確である。摂取制限等を伴う給水継続により法律上の損害賠償責任が無くなるようになれば、水道賠償責任保険の必要性が無くなることが考えられる。

摂取制限等を伴う給水継続対応時に適用できる保険については、他事業体に応援を依頼し、費用が発生した場合や緊急時の水質検査費用等を想定し新たに作る必要がある。設定にあたっては、水源地質事故はどこまでが水道事業体の責任かが難しく、水安全計画を策定することとなっており、策定していない事業体は保険金が支払われない可能性があるため、法律上の責任等を考慮する必要がある。

2. 海外における水質異常時や緊急事態への対応に関する調査研究

米国のウエストバージニア州において 2014 年 1 月、4-メチルシクロヘキサメタノール (MCHM) という化学物質の河川への流出事故が起きた。約 30 万人の住民に対して水道水の” Do Not Use (DNU)”、トイレを流す用途以外には水を使用しないこと、という指示が出され、州知事とオバマ大統領による非常事態宣言が発令されるに至った。MCHM には皮膚への刺激性や甘いにおいがあったことから、皮膚の炎症、発疹、吐き気などと言った軽い症状ではあるものの健康被害も起きた事例であった。表 3 に 2014 年の MCHM 流出事故以降に米国で起きた特徴的な水質事故の例を示す。上の 3 つの水質事故は影響人数が 30 万人以上と大きな影響を与えたものである。3 つの水質事故に対する勧告の内容が DNU、DND (Do Not Drink、飲料水・調理用水への使用禁止)、BWA (Boil Water Alert、煮沸勧告) とそれぞれ異なっている。これは汚染の原因物質の性質によるリスクの違いに基づいている。米国の場合、これらの決定は政

府が各州などに委任している安全飲料水法の施行責任機関（以下、監督機関とする）と水道事業体との協議のもとに行われる。法的な根拠は、安全飲料水法中の（違反時）公衆通知規則 (Public Notification Rule) である。規則違反時の通知として 3 階級 (Tier1~3) があるが、その中で短期曝露により健康に深刻な悪影響がでる可能性がある場合は第 1 級 (Tier 1) の状況となり、状況を認識してから 24 時間以内に給水対象者に状況について通知をすること、また、州の監督機関あるいは環境保護庁 (EPA) と協議を開始することが義務づけられている。給水停止は考慮しない訳ではなく、給水停止を選択した際に結果として起こる、基本的な衛生状態を確保出来ないこと、消火用水がなくなることなどのリスクを考慮すると、特に大規模の水道システムでは給水停止という選択は考えにくいということだと思われる。例えば、表 3 の下 2 つの事故は油類の流出事故であるが、取水停止をした結果として一部地域で断水が起きた。これらの事故は給水人口の小さい地域で起きている。意思決定には、断水時の応急給水措置がそれほど困難ではないこと、また、油の流出事故はその流出時間の推定ができ、油を浄水場に取水してその復旧にかかる労力よりも、取水停止で油をやり過ぎた方が結果として損失が少ないという判断が寄与している可能性がある。

MCHM 流出事故時の DNU 意思決定に至る過程や事故に関する広報を中心に調査を行った。この水質事故は大都市ではなく、給水人口 30 万人の中規模都市地域で起きた。また、水質規制値に含まれている物質ではなく、そもそも物性も毒性もよくわからない物質であり、意思決定までの猶予も数時間しかないような状況であった。毒性自体は飲料水助言値が 1ppm とそれほど大きな物質ではなかつ

たものの、においによる不快感や吐き気をもたらすことや皮膚への刺激があるなど、特徴のある物質だった。浄水場の中央ラボも廃止してしまっており、外部ラボにサンプル分析を依頼しなければならない状態だった。この重大水質事故に対する緊急対応としての特徴は以下のようにまとめることができる。

- ・事故発生の認識から浄水場に汚染水が流入するまでの数時間の間に、水道事業者と州の健康・環境部局（監督機関）が連携して、化学物質の物性、毒性、処理性などを含めた調査をできる範囲で行った。

- ・DNU の意思決定は水道事業者と州の監督機関の協議の上で、州の監督機関によって決定された。DNU 発表の際には、水道会社社長、州知事、州国土安全保障局長による緊急記者会見が行われた。その他広報手段としては、インターネット、SNS、自動応答電話システム、郡の緊急警報システム、ラジオ、テレビの緊急バナーなどであった。ビラの配布は行わなかった。

- ・MCHM を含む流出が疑われた化学物質の毒性評価は、州からの依頼を受けた CDC/ATSDR（疾病予防管理センター/毒性物質疾病登録局）が迅速に助言値として短期曝露スクリーニング値を評価し公表した。その際、EPA など他の機関からのレビューも受けた。訂正およびアップデートがある場合も公表を行った。妊婦に対して追加助言を行った際は住民の混乱を大きくした可能性があり、州公衆衛生局と共同で FAQ を作成し、追加の広報を行った。

欧州においては、大きな事故として 1986 年にバーゼル市で発生した薬品倉庫火災によるライン川の汚染がある。しかしながら、それ以外にライン川沿いのドイツ、オランダに着目して水質事故事例の調査を行ったが、水道分野で対応を要した具体的事例は見当たら

なかった。オランダでは水道原水の多くは地下水系で、地表水は全体のわずか 16%（2008 年）である。またドイツでは地表水の多くはバンクフィルトレーションもしくは浸透濾過の後に取水しているため、水質が平準化され、突発的な水源汚染に対するバッファ機能を有している。以上より、オランダ、ドイツは水源の突発的汚染による給水停止や利用制限はそもそも生じにくいことが示唆された。

一方、英国においては 1988 年のキャメルフォード市の浄水場において大きな事故事例があった。これは、凝集剤の硫酸アルミニウム 20 トンを輸送トラック運転手が配水池に誤投入した。基準値の 3000 倍を超える 620mg/L もの Al を含む水道水が給水され、居住者 2 万人と非居住者 1 万人に影響したものである。このとき、水道会社 SWWA は事故後 2 日で薬品の誤投入を疑い、6 日後には事実を確認していた。しかし事故 16 日後まで事実を公表せず、誤投入した運転手に口止めまでしていた。事態を把握していたにもかかわらず、給水停止や異常周知を怠ったとして大規模な裁判に発展し、SWWA は罰金と住民補償に莫大な支払いを余儀なくされた。当該地区には、未だに事故水を飲んで健康被害を受けたと信じている住民が多数おり、事故の影響は深刻かつ長期にわたっている。人為的な原因による水道水質事故では、水質事故発生そのものよりも事故発生後の対応がその後の事態を大きく左右することが示された。

オーストラリアにおける水道水質管理の基本となるものは、オーストラリア飲料水ガイドラインである。オーストラリアの行政機関は、連邦、州、地方自治体からなる。連邦は、このガイドライン値に法的な遵守義務を水道事業者にかけておらず、各州の法令で規定されることによって、事実上遵守義務が発生している。ガイドラインの基本的な考え方とし

て、工程管理のモニタリングによる短期的モニタリング評価を重視しており、「検査頻度や結果が出るまでの時間などから、飲用水水質検査では、安全でない水の供給を防ぐことはできず、飲用水水質検査は工程管理モニタリングに取って代わることはできない」と明示されている。州の事例としては、ニューサウスウェールズ州を取り上げた。州保健省は理化学項目超過時の対応について、衛生飲料水モニタリングプログラム 2005 の中で実施要綱を定めている。実施要綱によると基準超過が発生した場合、まず、水道事業者と衛生部局は、超過項目の濃度や原因などから急性毒性があるかどうか判断し、急性の健康影響がある場合は、水道事業者は衛生部局や NSW 水局の指示のもと、是正措置、広報、代替水の供給、調査監視等緊急対応を実施する。“Do not drink” 勧告等の実施を決定する権限は、公衆衛生法上、保健省の健康部局長に与えられているが、各地方の衛生部局の長に委任されおり、その指示のもと、水道事業者が勧告を交付することとしている。緊急性がない場合は、水道事業者は公衆衛生部局や水局と協議しながら更なる原因や影響調査を実施する。評価のために、健康項目は年 12 回以上の測定結果の 95 パーセンタイル値を、生活関連項目は年 12 回以上の測定結果の平均値を用いるとしている。

WHO 飲料水水質ガイドライン第 4 版において、水質異常時および緊急事態における対応の考え方は第 8 章化学的観点の 8.7 化学物質による水質問題や緊急事態に対応する際の地域活動の特定、および第 4 章水安全計画の 4.4 管路による給水システムの管理手順、を中心に示されている。以下に重要なポイントについてまとめる。これらの点を考慮にいれながら水質異常時や緊急事態における対応

を検討すべきである、とガイドラインは示している。

- ・推奨されるガイドライン値のほとんどは、生涯を通しての耐容量に関する曝露レベルに関係している。ガイドライン値を超えても公衆衛生に影響を与えない量や期間というものは、個々の物質によって異なり、適正な保健行政担当者が受容性の判断をする必要がある。緊急事態では、公衆衛生官署が適切な対応について助言すべきである。

- ・化学汚染物質が飲料水供給に混入した場合、第一の目標は水供給を必要以上に妨げることなく、悪影響を最小限に抑えることである。いかなる緊急事態においても、担当者間、特に水供給事業者と衛生官署との良好なコミュニケーションが重要である。衛生官署が最終決定をすることが一般的であるが、最適な決定を下すためには飲料水供給およびその性質に対する知識が非常に重要である。

- ・化学物質に対して迅速な意思決定が必要な場合、短期間（たとえば数日間）について飲料水に TDI の 100% を割り当てることは可能である。発がんリスクから導出されたガイドライン値に関しては、短期曝露（数ヶ月から 1 年）においては、ガイドライン値の 10 倍までの濃度では推定がんリスクの増加はほんのわずかである。

- ・急性参照用量 (ARfD) は 24 時間以内の摂取では消費者に対して感知されるほどの健康リスクが認められない化学物質の量として定義され、TDI 設定に適用できる化学的概念のほとんどを同様に ARfD の設定に適用できる。ARfD の 100% を飲料水に割り当てることで、健康に基づく値を設定するために使うことができる。ただし、これら短期曝露による指標を適用する際には、血液毒性、免疫毒性、急性神経毒性、肝毒性、腎毒性、内分泌作用、発達影響といった短期曝露と関連する毒性に

ついて注意することが重要である。また、感受性の高い集団に対する検討は重要である。

・水供給が途絶えると、公衆衛生に対するリスクを伴う。急性の短期曝露に対する健康に基づく値は、そのような緊急事態に汚染物質を含んだ水の供給するリスクと水を供給しないこととのリスクのバランスを決定する際の助けになる。

・消費者の受容性は、水を飲料または調理に使うべきか否かについて、消費者への助言を決める際の最も重要な要素かもしれない。

・煮沸勧告、水使用禁止勧告は、水供給事業者は公衆衛生官署とともに手続きを作成すべきである。手続きは事故が起こる前に準備し、水安全計画に組み込まれるべきである。事故中に対応を策定することは、意思決定を複雑にし、意思伝達に障害を来し、公衆からの信頼を損なう可能性がある。

・水安全計画は、予測可能な事態および定義されない緊急事態の両方に対応する計画も含めるべきである。

3. 経口曝露換算の総潜在用量、割当率および間接飲水量の推定

THMsについて、現行の水道水質基準値と本研究で推定した総曝露量分布の95%値がTDIと一致する濃度は次のようになった。クロロホルム：60 $\mu\text{g/L}$ と114 $\mu\text{g/L}$ 、プロモジクロロメタン：30 $\mu\text{g/L}$ と52 $\mu\text{g/L}$ 、ジブロモクロロメタン：100 $\mu\text{g/L}$ と138 $\mu\text{g/L}$ 、プロモホルム90 $\mu\text{g/L}$ と179 $\mu\text{g/L}$ 。これらの評価から、現行の水質基準値は水道水由来の高曝露を考慮したとしてもTDIを上回ることはなく健康影響が懸念されないことが示された。曝露量分布の95%（高曝露群）と中央値（中曝露群）、またそれらの内訳について、クロロホルムの結果を図3に示す。高曝露群と中曝露群の曝露量の違いは、飲水量の違いにも関係しているが、違いの多くは吸入曝露に関係して

いる。高曝露群と中曝露群では、曝露濃度が異なっているためであり、高曝露群では換気などが不十分なため室内空気の濃度が高いことが推論されている。THMs全体について見ると、中曝露群の水道水由来の吸入と経皮曝露は1.3から1.8 Leq/dayの仮想的な飲水すなわち間接飲水量に相当している。高曝露群では間接飲水量はさらに大きく、2.9から5.8 Leq/dayであった。このように多い間接飲水量は水道水からの揮発経由の吸入曝露による。間接飲水量に対する経皮曝露の寄与は低いと推定された。

HAAsについても同様に、高曝露群の曝露量がTDIを下回るような濃度の最大値を求めると、モノクロロ酢酸は25.6 $\mu\text{g/L}$ 、ジクロロ酢酸は118 $\mu\text{g/L}$ 、トリクロロ酢酸は65.5 $\mu\text{g/L}$ であった。モノクロロ酢酸の例を図4に示す。これらの値はそれぞれ、現行の水道水質基準値または新基準値案の値よりも高かった。高曝露群ではTDIの43から70%、中曝露群でもTDIの25から35%が食品摂取経由の水道水由来であった。すなわち、水道水を使い調理された食品の摂取がHAAsの大きな曝露源になっていることを示唆している。吸入や経皮曝露は大きな曝露源にはなかった。

THMsでは、揮発による室内空気を經由した間接摂取が大きな曝露ルートになっていたが、HAAsでは食品を經由した間接摂取が大きな曝露ルートになっていることが明らかとなった。これはHAAsの親水性に関係していると思われる。HAAsの間接飲水量は、中曝露群で1.2から2.4 Leq/d、高曝露群で2.0から4.7 Leq/dであった。

4. 成人の潜在的な水道水摂取量の推定に関する研究

ご飯の摂取量から水道水由来でご飯に含まれる水分としては、日本食品標準成分表 2010

より穀物の精白米における水分が可食部 100g あたり 15.5g、めしの精白米における水分は同 60.0g とされていることから、ご飯 100g あたりに含まれる水道水の量は 52.7g と推定された。この割合と 2012 年夏のアンケート調査におけるご飯の 1 日摂取量を元に、ご飯から摂取する水道水由来の水は、算術平均 141~153mL/day、メジアン 105~132 mL/day、95%値は 316~325 mL/day と計算された（調査日は平日 2 日と休日 1 日）。また、これまで「清涼飲料水類」という分類において清涼飲料水（ジュースなど）、牛乳、アルコール飲料、その他飲料の項目を全て合算して、かつ潜在的な飲料水として考慮してきたが、その妥当性について検討を行った。それぞれの項目を分離して、水道水やボトル水との相関分析を行うことで、各項目の摂取量が水道水摂取量と補完関係にあるかどうかを調べた結果、水道水摂取量とボトル水、および清涼飲料水の間には有意な負の相関が見られた。このことから、水道水摂取量とボトル水、清涼飲料水は補完の関係にあることが示された。一方、牛乳、アルコール飲料、その他飲料については、正の相関が見られる傾向があった。特に水道水関連の摂取量の方を「水道直接摂取+ボトル水+清涼飲料水」と定義した場合、牛乳、アルコール飲料、その他飲料と正相関が全て有意となった。このことは、水道水の摂取量の多い人が牛乳、アルコール飲料、その他飲料の摂取量も多くなっていることを意味している。これはお互いを補完する関係ではない。以上の検討により、潜在的な水道水摂取量（pTWI）を「水道水直接摂取」+「ボトル水」+「清涼飲料水」+「水道水間接摂取（スープとご飯中から摂取する水道水）」とできることが示された。

5. 水道汚染物質の亜急性評価値に関する研究

① シアン化物イオン及び塩化シアン

B6C3F₁ マウスにシアン化ナトリウムを 13

週間飲水投与した結果、300 ppm 投与群の雌に体重減少、同投与群の雄には左精巣上体及び精巣上体尾部の絶対重量の低下が認められたことが報告されている。NOAEL は 100 ppm（シアンイオンとして 8.6 mg/kg/day）と判断された。F344/N ラットを用いたシアン化ナトリウムの 13 週間飲水投与試験では、300 ppm 投与群の雄に尿量の減少及び尿比重の増加が認められた。さらに、雄では、300 ppm 投与群において、左精巣上体及び精巣の絶対重量の低下や精巣あたりの精子数の減少がみられ、NOAEL は 100 ppm（シアンイオンとして 4.5 mg/kg/day）と考えられる。

ヒトにおけるシアン化物の平均致死量は 1.52 mg/kg であり、呼吸困難、消化器障害、振戦、昏睡、代謝性アシドーシス等の急性症状が報告されている摂取量は 0.57~229 mg/kg（シアンイオンとして）である。上述のラットの 13 週間試験から求められた NOAEL 4.5 mg/kg/day を UF100 で割ると、45 µg/kg/day となるが、ヒトにおける急性毒性用量を考慮すると、この値をシアン化物イオン及び塩化シアンの saRfD とすることは適切ではないと考えられる。

② 四塩化炭素

雄の SD ラットに 12 週間（週 5 日）強制経口投与した試験（溶媒：コーンオイル）では、33 mg/kg 投与群において、SDH、GPT、OCT 等の血清酵素の増加や肝臓の病理組織学的変化が見られたことが報告されている。この試験では、10 mg/kg 投与群においても、SDH 及び GPT の増加がみられ、肝臓では軽度の小葉中心空胞変性が観察された。1 mg/kg（0.71 mg/kg/day）投与群では有害な影響は観察されなかった。

その他に、CD-1 マウス（雌雄）を用いた 2 種の 90 日間強制経口投与試験の報告がある。12 ~ 1200 mg/kg/day の用量で連続投与した

試験では、すべての投与群で肝臓の病理組織学的変化や血清酵素の増加などが認められた。1.2 ~ 120 mg/kg の四塩化炭素をコーンオイルもしくは 1%polysorbate60 水懸濁液に溶解させ、週 5 日投与した試験では、コーンオイルを溶媒とした、12 mg/kg 以上の投与群及び 1%polysorbate60 水懸濁液を溶媒とした、120 mg/kg 投与群で血清中 ALT、AST 及び LDH 活性が増加し、壊死や脂肪変性などの肝細胞の変化が観察された。NOAEL は 1.2 mg/kg (0.86 mg/kg/day) と判断された。

最も低い NOAEL 0.71 mg/kg/day を UF100 で割り、saRfD は 7.1 µg/kg/day と算出された。

③ シス-1,2-ジクロロエチレン及びトランス-1,2-ジクロロエチレン

シス体に関しては、SD ラットを用いた 90 日間強制経口投与試験、トランス体に関しては、Sprague-Dawley ラット及び CD-1 マウスを用いた 90 日間飲水投与試験及び F344/N ラット及び B6C3F1 マウスを用いた 14 週間混餌投与試験の報告がある。トランス体は、シス体よりも低用量で毒性を示し、また、1,2-ジクロロエチレンの毒性に対するマウスの感受性は、ラットよりも高いことが知られていることから、基準値と同様にトランス体に関するマウスの反復投与試験をもとに saRfD を求めることとした。

14 週間混餌投与試験では、1830 mg/kg/day 以上の投与群で体重への影響が認められたものの、その他に変化は見られず、NOAEL は 915 mg/kg/day と考えられた。一方、90 日間飲水投与試験では、用量相関性は明確ではないものの、175 mg/kg/day 以上の投与群の雄で、血清 ALP 活性が有意に増加し、NOAEL は 17 mg/kg/day と判断された。

最も低い NOAEL 17 mg/kg/day を UF100 で割り、saRfD は 170 µg/kg/day と算出され

た。

④ ジクロロメタン

B6C3F1 マウス及び F344 ラットを用いた 3 か月間飲水投与試験が報告されている。マウスでは、586 mg/kg/day 以上の投与群で肝臓に脂肪変性が観察され、NOAEL は 226 mg/kg/day と判断された。一方、ラットでは、166 mg/kg/day 以上のすべての投与群で、肝細胞空胞形成、ALT 上昇、尿 pH の低下などが認められ、NOAEL は求められなかった。最低用量群では、10/15 例の雄及び 13/15 例の雌で肝細胞空胞化が見られており、この値を POD とするのは不適切と考えられたことから、慢性毒性試験を基に saRfD を設定することとした。

B6C3F1 マウスの 104 週間飲水投与試験では、234-238 mg/kg/day 投与群で肝細胞の脂肪変性が認められ、NOAEL は 172-177 mg/kg/day と判断された。F344 ラットを用いた 104 週間飲水投与試験では、52-58 mg/kg/day 以上の投与群で赤血球数及びヘモグロビン濃度の増加がみられ、肝臓では変異肝細胞巣が観察されたことから、NOAEL は 6 mg/kg/day と考えられた。この NOAEL 6 mg/kg/day を UF100 で割り、saRfD は 60 µg/kg/day と算出された。

⑤ クロロ酢酸

B6C3F1 マウスの 13 週間強制経口投与試験では、200 mg/kg/day 投与群で死亡率の増加、体重減少、肝細胞の空胞変性などが認められた。さらに、150 mg/kg/day 以上の投与群において、コリンエステラーゼ値の減少がみられ、NOAEL は 100 mg/kg/day と判断された。F344 ラットの 13 週間強制経口投与試験では、42.9 mg/kg/day 以上の投与群で、死亡率の増加、心臓の単核性炎症細胞の集積及び筋原線維の変性、ALT 及び AST の増加等が認められ、21.4 mg/kg/day 以上のすべての投与群で

血清コリンエステラーゼ活性の低下が認められた。SD ラットを用いたクロロ酢酸ナトリウムの 90 日間強制経口投与試験では、60 mg/kg/day 投与群において、慢性腎症や脾臓の色素沈着の増加が観察され、最低用量群においても血中クレアチニン、ALP、BUN の増加などが認められた。この試験の最小毒性量 (LOAEL) は 15 mg/kg/day (クロロ酢酸として 12 mg/kg/day) と考えられる。

最も低い LOAEL 12 mg/kg/day を用いて saRfD を算出した。この LOAEL 12 mg/kg/day で観察された変化は軽微かつ病理組織学変化や臓器重量の変化を伴うものではないことから、UF は 300 とすることが適切と考えられる。従って、saRfD は 40 µg/kg/day と算出された。

⑥クロロホルム

雄の B6C3F1 マウスに 4 日間強制経口投与した試験では、34 mg/kg/day 以上のすべての投与群で肝細胞腫大、空胞化や尿細管壊死などが観察された。3 週間(週 5 日)強制経口投与した試験では、64 mg/kg/day 以上の投与群で同様の変化が認められたものの、24 mg/kg/day 投与群では毒性影響は見られなかった。雌の B6C3F1 マウスに 4 日間または 3 週間(週 5 日)強制経口投与した試験では、24-34 mg/kg/day 以上の投与群で肝細胞の好酸性増加や空胞変性が観察されたが、7.1-10 mg/kg/day 投与群では毒性影響は見られなかった。雌の B6C3F1 マウスに 4 日間飲水投与した試験では、54 mg/kg/day 以上の投与群で肝細胞の好酸性増加がみられたが、26 mg/kg/day 以下の投与群では肝臓の病理変化は見られなかった。雌の B6C3F1 マウスに 16~329 mg/kg/day の用量で 3 週間飲水投与した試験では肝臓の病理変化は見られなかった。CD-1 マウス (雌雄) の 90 日間強制経口投与試験では、50 mg/kg/day 以上のすべての投

与群で肝臓重量の増加、125 mg/kg/day 以上の投与群で肝ミクロソーム活性低下及びヘキサバルビタール誘起麻酔時間増加、250 mg/kg/day 投与群で血中グルコース増加、体液性もしくは細胞性免疫の低下が見られた。

雌の F344 ラットに 4 日間または 3 週間(週 5 日)強制経口投与した試験では 24-34 mg/kg/day 以上の投与群で嗅粘膜の病変、71-100 mg/kg/day 以上の投与群で肝臓の退行性変化、肝細胞増殖増加及び尿細管上皮細胞の再生性増殖の増加、143-200 mg/kg/day 以上の投与群で腎皮質尿細管の変性及び壊死が観察された。雄の F344 ラットに 4 日間強制経口投与した試験では、34 mg/kg/day 以上の投与群で、腎尿細管の変性および肝臓の類洞内への白血球停滞、90 mg/kg/day 以上の投与群で、肝細胞中心部の退色及び壊死等が認められた。10 mg/kg/day 投与群では毒性影響は見られなかった。雄の F344 ラットに 3 週間(週 5 日)強制経口投与した試験では、129 mg/kg/day 投与群で腎尿細管の変性、肝細胞の単細胞壊死、好酸性化、空胞変性等が認められたが、64 mg/kg/day 以下の投与群ではこれらの変化はみとめられなかった。

CD-1 マウスに強制経口投与した連続繁殖試験では、41.2 mg/kg/day 投与群で F1 雌動物に肝毒性を示唆する病理組織学的変化が観察されたが、15.9 mg/kg/day 投与群では毒性所見は見られなかった。受胎能または生殖に関する有意な影響は見られなかった。

クロロホルムの亜急性毒性に関するこれらの結果は、短期暴露でも慢性暴露と同程度もしくはそれ以上の影響が出ることを示唆している。最も低い NOAEL は雌マウスに 3 週間経口投与した試験から得られた 7.1 mg/kg/day である。この値に UF100 を適用し、saRfD は 71 µg/kg/day と算出された。

⑦プロモジクロロメタン

B6C3F1 マウスの 13 週間強制経口投与試験では、143 mg/kg/day 投与群の雌に肝細胞変性、71.4 mg/kg/day 投与群の雄には腎の近位尿細管上皮の壊死及びネフローゼが観察された。35.7 mg/kg/day 投与群では毒性影響は見られなかった。F344/N ラットの 13 週間強制経口投与試験では、214 mg/kg/day 投与群で、死亡率が増加し、肝細胞変性や腎臓の変性・壊死が観察された。107 mg/kg/day 以上の投与群では、体重が低下し、NOAEL は 53.6 mg/kg/day と判断された。

F344 ラットに 52 週間飲水投与し、生殖機能への影響を調べた試験では、39 mg/kg/day 投与群で精巣上体尾部における精子の直線、平均軌道及び曲線での平均速度の低下がみられた。22 mg/kg/day 投与群では、毒性影響は見られなかった。Sprague-Dawley ラットの 2 世代連続飲水投与試験では、すべての投与群で飲水量が減少し、11.6~48.8 mg/kg/day 以上の投与群では、死亡、鼻漏、体重増加抑制、亀頭包皮分離の遅延などが認められた。さらに、29.5~138.6 mg/kg/day 投与群では、軟便、膈開口の遅れ、離乳時の脳、脾臓等の重量低下が観察された。NOAEL は 4.1~15.8 mg/kg/day と判断された。

F344 ラットの妊娠 6-15 日に強制経口投与した試験では、50 mg/kg/day 以上の投与群で全腹児吸収が認められ、NOAEL は 25 mg/kg/day と考えられる。Sprague-Dawley ラットの妊娠 6-21 日に飲水投与した発生毒性試験では、すべての投与群で飲水量が減少し、45 mg/kg/day 以上の投与群で体重増加抑制が見られた。82 mg/kg/day 投与群では児の指骨及び後肢の中足骨と指骨の骨化の遅延が認められたが、極軽度かつ可逆的な変化であることから、母毒性による二次的な変化と考えられた。NOAEL は 18.4 mg/kg/day と判断された。New Zealand White ウサギの妊娠

6-29 日に飲水投与した試験では、35.6 mg/kg/day 以上の投与群で母動物の体重増加抑制が見られたが、13.4 mg/kg/day 投与群では毒性影響はみられなかった。胎児への影響はみられなかった。

最も低い NOAEL 4.1 mg/kg/day に UF は 100 を適用して、saRfD は 41 µg/kg/day と算出された。

⑧ジプロクロロメタン

B6C3F1 マウスの 90 日間強制経口投与試験では、178.6 mg/kg/day 投与群で腎尿細管の変性又は石灰化、肝臓では壊死及び空胞化が認められた。89.3 mg/kg/day 以下の投与群では毒性影響はみられなかった。F344/N ラットの 90 日間強制経口投与試験では、178.6 mg/kg/day 投与群で生存率及び体重の低下、腎尿細管細胞変性、肝小葉中心性壊死が観察され、42.9 mg/kg/day 投与群では肝細胞の脂肪変性が増加した。NOAEL は 21.4 mg/kg/day と判断された。Sprague-Dawley ラットに 90 日間強制経口投与した試験では、50 mg/kg/day 以上のすべての投与群で肝細胞脂肪変性や腎尿細管細胞変性が認められた。

ICR マウスに飲水投与した多世代生殖試験では、最低用量群 (17 mg/kg/day) で観察された変化は、F2 世代の児重量の軽微な低下のみであった。171 mg/kg/day 以上の投与群では、体重低値、肝臓の病理組織学変化、同腹児数、児の生存率及び体重低下などがみられた。685 mg/kg/day 投与群では、さらに、受胎率、妊娠率、生存率の低下も認められた。NOAEL は 17 mg/kg/day と考えられる。

以上の結果から、最も低い NOAEL 17 mg/kg/day に UF100 を適用して、saRfD は 170 µg/kg/day と算出された。

⑨トリクロロ酢酸

亜急性/亜慢性毒性に関する信頼性の高い報告は、雄の SD ラットを用いた 90 日間飲水

投与試験のみであった。この試験では、5.0 mg/L (355 mg/kg/day)投与群で、体重増加抑制、肝臓及び腎臓の相対重量増加、肝細胞腫大、肝臓へのグリコーゲン蓄積などが認められ、NOAELは36.5 mg/kg/dayと判断された。雌ラットを用いた信頼性の高い亜急性/亜慢性試験の報告がないことから、慢性毒性試験の結果を基にsaRfDを算出することとした。B6C3F1マウスを用いた104週間飲水投与試験ではすべての投与群で肝臓の変異細胞巢発生頻度の増加が認められ、LOAELは6 mg/kg/dayと考えられた。なお、ラットを用いた複数の発生毒性試験の報告があり、胎児への影響が認められているが、いずれも母動物への影響が認められる高用量での影響であり、200 mg/kg/day以下の用量での影響については報告がない。

慢性毒性に関するLOAEL 6 mg/kg/dayにUF 1000を適用して、saRfDは6µg/kg/dayと算出された。

⑩プロモホルム

B6C3F1マウスの13週間強制経口投与試験では、143 mg/kg/day投与群の雄に肝細胞空胞形成が観察され、NOAELは71.4 mg/kg/dayと判断された。F344/Nラットの13週間強制経口投与試験では、35.7 mg/kg/day投与群の雄で肝細胞空胞形成が有意に増加したことから、NOAELは17.9 mg/kg/dayと判断された。

CD-1マウスに105日間強制経口投与した試験では、最高用量群(200 mg/kg/day)でも、受精(胎)能や生殖への影響はみられなかった。

以上から、最も低いNOAEL 17.9 mg/kg/dayにUF100を適用してsaRfDは179 µg/kg/dayと算出された。

⑪ホルムアルデヒド

Sprague-Dawleyラットの90日間飲水投与試験では、100 mg/kg/day以上の投与群で体

重増加抑制が認められ、NOAELは50 mg/kg/dayと考えられた。ビーグル犬の90日間混餌投与試験では、100 mg/kg/day投与群で体重増加抑制がみられ、NOAELは75 mg/kg/dayと判断された。いずれの試験においても血液学的変化および病理組織学的変化は見られなかった。

生殖毒性に関しては、雄のWistarラットに単回投与した試験において、200 mg/kg投与群で精子頭部異常が観察された。100 mg/kg投与群ではこのような影響は見られなかった。CD-1マウスの妊娠6~15日に経口投与した発生毒性試験では、148 mg/kg/day投与群で1/35例、185 mg/kg/day投与群では22/34例の母動物が死亡した。催奇形性は認められなかった。NOAELは74 mg/kg/dayと考えられる。

ラットの90日間飲水投与試験の結果から求められたNOAEL 50 mg/kg/dayにUF100を適用してsaRfDは500 µg/kg/dayと算出された。

⑫ホウ素及びその化合物

ラットを用いた発生毒性試験を基に基準値が設定されており、この試験の結果をもとにsaRfDを算出することが適切と考えられる。この試験では、SDラットの妊娠0~20日にホウ酸を混餌投与した結果、12.9 mg B/kg/day以上の投与群で、胎児の体重減少と第13肋骨の短縮及び波状肋骨の発生頻度の増加がみられ、NOAELは9.6 mg B/kg/dayと判断された。この値に、UF100を適用し、saRfDは96 µg/kg/dayと算出された。

⑬トリクロロエチレン

基準値は、ラットの生殖発生毒性試験の結果を基に求められており、この試験の結果を基にsaRfDを求めることが適切と考えられる。この試験では、Sprague-Dawleyラットの交配前2か月間及び妊娠期間中(20日間)に飲水