

水道水質の評価及び管理に関する総合研究

研究代表者 松井 佳彦 北海道大学大学院工学研究院 教授

研究要旨

水道水質基準の逐次見直しなどに資すべき化学物質や消毒副生成物、設備からの溶出物質、病原生物等を調査し、着目すべき項目に関してそれらの存在状況、監視、低減化技術、分析法、暴露評価とリスク評価に関する研究を実施した。

給水栓におけるレジオネラ属管理指標として遊離残留塩素  $> 0.1 \text{ mg/L}$  の重要性が確認された。凝集沈澱-砂ろ過処理によるトウガラシ微斑ウイルスの除去率は 1.3 ~ 2.0-Log であり、各種の水系感染症ウイルスも同程度除去されると推察され、ウイルス対策は後段の塩素処理に大きく依存していることが改めて確認された。クリプトスポリジウム感染を防止するためには従来の 2-Log 除去ではなく、3-Log 以上の徹底が必要であった。

テフリルトリオンやイプフェンカルバゾンのように近年新しく調査対象となった農薬のうち、特に目標値の低い農薬の影響により検出指標値が上昇する傾向にあることが確認された。イプフェンカルバゾン及びジウロンは、3 ~ 4 地域で新たに検出される可能性が高まっていた。また、アミノメチルリン酸のように農薬の分解物については情報収集とモニタリングの必要性について今後検討する必要がある。農業用途や家庭用でよく用いられるフィプロニル (FIP) については ADI が低いことから検出指標値に対する寄与が比較的高い農薬である。FIP の環境中における分解物の検出事例が報告されている。既存の農薬データが少ない浄水場における実態調査を実施したところ、水道原水からは 35 種類、浄水からは 27 種類の農薬類が検出されたが、目標値を超える農薬類の検出は見られなかった。

標準品が市販されていないジクロロヨード酢酸を合成し、定量のための検量線を作成できた。ラフィド藻類 *Gonyostomum semen* のトリクロロ酢酸生成能はユーグレナ藻類 *Euglena gracilis* や緑藻類 *Micrasterias hardyi* より 45 ~ 70 倍高かった。高度浄水処理水と急速ろ過処理水について、臭気強度への指標として、全揮発性窒素が最も有効で、次いでトリクロロアミンであった。

ホルムアルデヒド濃度が  $2.6 \text{ mg/L}$  の水道水を使用すると、水道水からの揮発からのみによって室内空気濃度が基準を超過する確率は 5% であった。室内におけるホルムアルデヒドの他の発生源を考慮すると、許容される水道水中濃度はそれぞれ  $0.26 \sim 0.52 \text{ mg/L}$  であった。塩素処理に伴い、有機リン系農薬メチダチオン DMTP の大部分が速やかにオキソン体へと変換され、ChE 活性阻害性にはオキソン体が大きく寄与していることが示された。DMTP オキソン体は水質管理目標設定項目における「農薬類」では測定対象に組み込まれていないが、DMTP 原体濃度と合算して管理することが妥当であると提言された。要検討項目の 8 項目について短期間曝露を対象とした亜急性評価値 [SaRfD ( $\text{mg/kg/day}$ )] を算出した。日本水道協会発行の水道用資機材自主規格を参照し、水道資機材のめっき、塗装、樹脂、ゴムなどに用いられている化学物質のリスト化を行った。その中で要検討項目となっているものの目標値が設定されていない 6 物質の毒性情報を整理した。

GC/MS スクリーニング分析における装置性能を調べた。マトリックス負

荷により早い段階でピーク形状への影響が現れるペンシクロン等を基準にメンテナンス時期を判断した方が、分析精度を確保する上で望ましいと考えられた。

これらの成果は学術論文や学術集会で多数公表されるとともに、厚生労働省告示や厚生科学審議会生活環境水道部会、水質基準逐次改正検討会資料に資された。

研究分担者	所属機関	職名
秋葉 道宏	国立保健医療科学院	統括研究官
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
泉山 信司	国立感染症研究所 寄生動物部	主任研究官
伊藤 禎彦	京都大学 大学院工学研究科	教授
越後 信哉	京都大学 大学院工学研究科	准教授
片山 浩之	東京大学大学院工学研究科	准教授

小坂 浩司	国立保健医療科学院 生活環境研究部	主任研究官
小林 憲弘	国立医薬品食品衛生研究所生活衛生化学部	室長
高木 総吉	地独)大阪健康安全基盤研究所衛生化学部生活環境課	主任研究員
宮脇 崇	福岡県保健環境研究所水質課	研究員
広瀬 明彦	国立医薬品食品衛生研究所安全性予測評価部	部長
松本 真理子	国立医薬品食品衛生研究所安全性予測評価部	研究員
松下 拓	北海道大学 大学院工学研究院	准教授

## A. 研究目的

本研究の目的は、水道水質基準の逐次見直しなどに資すべき化学物質や消毒副生成物、設備からの溶出物質、病原生物等を調査し、着目すべき項目に関してそれらの存在状況、監視、低減化技術、分析法、暴露評価とリスク評価に関する研究を行い、水道水質基準の逐次改正などに資するとともに、水源から給水栓に至るまでの水道システム全体のリスク管理のあり方に関して提言を行うことにある。研究目的を、微生物、化学物質、消毒副生成物、リスク評価管理、水質分析法について詳述すると以下のようである。

**微生物：** 水道水は、塩素消毒が消失すると雑菌が増殖し、この雑菌を捕食増殖する自由生活性アメーバや、さらにヒトに重篤な肺炎やポントィアック熱を引き起こすレジオネラ属菌 (Legionella) が増殖することから、問題となる。そこで、貯水槽水道の給水栓を対象として、レジオネラ属菌と残留塩素濃度の関係を明らかにすることとした。

ウイルスによる水系感染症の制御に資する

ため、浄水工程におけるウイルス除去率が世界的に検討されている。本研究では、ヒトの糞便中に最も多量に存在する植物ウイルスであるトウガラシ微斑ウイルスに着目し、国内浄水場におけるトウガラシ微斑ウイルスの処理性を通年で評価し、季節変動の有無を確認することとした。また、感染価を有するウイルスを選択的に検出する Viability PCR 法が開発されてきているが、水道におけるウイルス測定法としての適用可能性を評価するため、水道水を対象とした Viability PCR 法を試みた。

クリプトスポリジウムについては、近年感染しやすい種と株が存在することは明らかとなり、感染確率を USEPA (米国環境保護庁) は 1 個が 10% 程度 (4 から 16%) の感染確率、WHO (世界保健機関) では 20% と計算の前提が更新された。本研究では、新しい感染確率を前提として、水道を介した感染症抑止の目標である  $10^{-6}$  DALYs (障害調整生存年数, disability-adjusted life year(s)), あるいは微生物許容感染リスク  $10^{-4}$ /年 (年間, 1 万人に 1 人) を達成するのに必要な除去率を改めて算出した。

**化学物質・農薬**：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。また、近年の使用量の増加している農薬について、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を行った。

**消毒副生成物**：水質基準の改正に際して重要と考えられる事項として、ヨウ素系消毒副生成物ジクロロヨード酢酸(DCIAA)の合成方法の検討と分析方法、ハロベンゾキノン類(HBQs)である2,6-ジクロロ-1,4-ベンゾキノン(DCBQ)とその生成前駆物質、ハロアセトアミド類(HAcAms)を含む消毒副生成物の実態調査、浄水処理対応困難物質の処理性、ラフィド藻類がハロ酢酸濃度に与える影響について調査を行った。臭気原因物質に関しては、全揮発性窒素(TPN)の水道水のカルキ臭強度(TON)の指標としての妥当性、臭い嗅ぎガスクロマトグラフ質量分析計(GC/O)による塩素化フェノールや未知塩素処理由来の臭気原因物質の推定、モデル化合物によるクロラミン生成試験について検討した。

**リスク評価管理**：水源から浄水・給配水に至るまでに多種多様に存在する微量化学物質等の水質リスクを明らかにし、適切に管理するための評価手法を検討するため、今年度は、揮発性を考慮したホルムアルデヒドの水道水質基準値の妥当性の評価、有機リン系農薬未知分解物の複合影響を踏まえた毒性試験法の整備、水道汚染物質の亜急性評価値に関する研究、水道器材から溶出し得る化学物質の毒性調査の研究を行った。

**水質分析法**：平常時および異常発生時の簡便かつ網羅的な水質スクリーニングを行うことができる分析手法について検討しているが、スクリーニング分析では、多成分の化合物測定を行うため、装置性能を適切に評価し、良好な状態に維持しておくことが重要になる。そこで、今年度は、装置性能、特に、試料中のマトリックス成分による汚れや劣化等により装置性能の低下については検討することとした。

## B. 研究方法

原水や水道水質の状況、浄水技術について調査研究を行うため、微生物、化学物質・農薬、消毒副生成物、リスク評価管理、水質分析法の5課題群 - 研究分科会を構築し、研究分担者13

名の他に51もの水道事業体や研究機関などから95名の研究協力者の参画を得て、各研究分担者所属の施設のみならず様々な浄水場などのフィールドにおける実態調査を行った。

水質項目は多岐にわたるため、上述の研究目的に沿って5課題群に分けて、研究分科会を構成し、全体会議などを通じて相互に連携をとりながら並行的に研究を実施した。研究分科会は、微生物分科会(研究分担者4名、研究協力者18名)、化学物質・農薬分科会(研究分担者1名、研究協力者14名)、消毒副生成物分科会(研究分担者5名、研究協力者14名)、リスク評価管理分科会(研究分担者2名、研究協力者13名)、水質分析分科会(研究分担者3名、研究協力者36名)である。

微生物、化学物質・農薬、消毒副生成物、リスク評価管理、水質分析法の5課題群それぞれの研究方法の詳細は、分担研究報告書を参照されたい。

倫理面への配慮：該当しない。

## C. 研究結果と考察

### (1) 微生物

(1-1) 貯水槽水道の蛇口のレジオネラ汚染  
蛇口のレジオネラ汚染に苦慮していた貯水槽水道の給水栓を対象として、塩素の残留状況が異なる給水栓から初流水を採取し、レジオネラ属と自由生活性アメーバを測定した。図1に示すように、遊離残留塩素が0.1 mg/L以上で残留している給水栓からはレジオネラ属はすべて不検出であった。井水切り替えに伴う塩素消毒の徹底により、レジオネラ汚染は大きく改善していた。

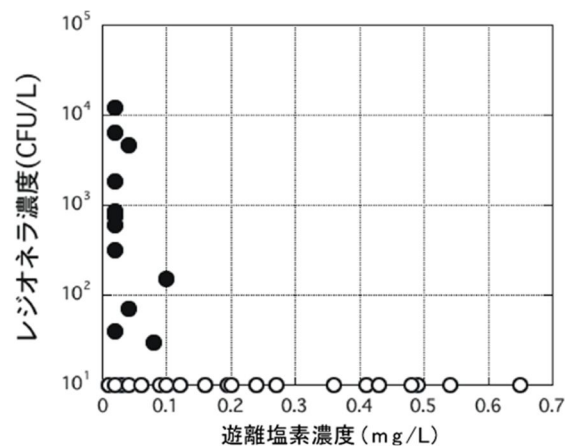


図1 給水栓水の遊離残留塩素濃度とレジオネラ濃度

## (1-2) ウイルスの処理性評価と検出

浄水場 A における凝集沈澱-砂ろ過処理によるトウガラシ微斑ウイルスの除去率は、1.3~2.0-Log であり、季節変動は小さかった(図2)。室内実験と同程度の除去率であり、実浄水場におけるウイルスの除去率を、室内実験により再現できると示唆された。トウガラシ微斑ウイルスが凝集沈澱-砂ろ過処理により 1.6-Log 除去される浄水場 A においては、各種の水系感染症ウイルスも 1.6-Log 程度除去されると推察された。浄水場における物理的処理(凝集沈澱-砂ろ過処理)によるウイルスの除去率は 2-Log 未満であり、ウイルス対策は後段の塩素処理に大きく依存していることが改めて確認された。

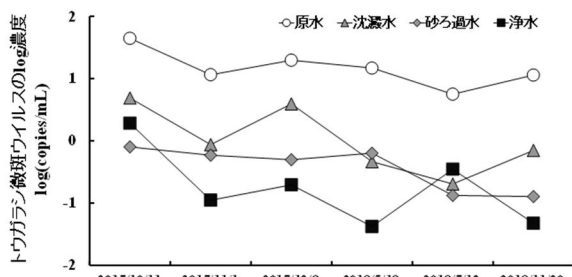


図2 浄水場 A の各処理工程水におけるトウガラシ微斑ウイルス濃度

Viability PCR 法を適用する場合、ethidium monoazide (EMA), propidium monoazide (PMA), cis-dichlorodiammineplatinum (CDDP) の中では、CDDP が最も誤陽性が少なく、さらに前処理の効果を高めるため界面活性剤SDを添加した方が高温不活化したウイルスの誤陽性が少なくなることが分かった。このことからSDを併用したCDDPがViability PCRの前処理として最も優れていることが分かった。浄水場における試料からの阻害については、PCRに対する阻害のほうがSD-CDDP前処理に対する阻害よりも大きく、浄水試料においてもSD-CDDP処理が使えることが分かった。

## (1-3) 散発的なクリプトスポリジウム感染を防止するための対策

クリプトスポリジウム感染確率は従来1個で0.4%程度とされてきた。しかし、USEPAでは新しく4から16%とされることとしたから、中間で10%を代表とし、必要な除去率を再計算した。非加熱飲水量を従来の1Lから200mLへ減少すると仮定し、 $10^{-6}$  DALYsの目標維持とすると、従来の2-Log除去ではなく、3-Log

以上の徹底が必要であった。微生物許容感染リスク $10^{-4}$ /年の目標には、4-Log以上が必要であった。総合すると3ないし5-Logの除去率が必要と考えられた。対策としては、2ないし3-Logの除去率が期待される凝集沈澱ろ過の急速ろ過によるシングルバリアだけでなく、マルチプルバリアとして紫外線処理や膜処理に、当面の対策として二段凝集の導入、集水域の管理にモニタリングや排水処理の徹底など、水質の維持向上が将来の方向と考えられた。

## (2) 化学物質・農薬

(2-1) 農薬要覧に記載のある農薬製剤別出荷量情報とFAMICが提供している農薬登録情報のうち農薬製剤別農薬原体含有率情報から都道府県別の農薬原体出荷量の算出を行った。農薬要覧2018に記載されている平成29農薬年度(平成28年10月~平成29年9月)の農薬製剤出荷量は約22.8万tで昨年とほぼ同じ量であった。農薬出荷量は1980年代以降、減少を続けている。平成29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:73340t(前年とほぼ同じ)、殺菌剤:41851t(前年とほぼ同じ)、殺虫殺菌剤:17543t(前年比3%減)、除草剤:82955t(前年とほぼ同じ)であり、全体では前年とほぼ同量となっている。平成元年比では、殺虫剤40%、殺菌剤42%、殺虫殺菌剤30%、除草剤56%で、全体では44%、20年前の平成9農薬年度比では、殺虫剤50%、殺菌剤43%、殺虫殺菌剤41%、除草剤103%で、全体では58%、10年前の平成19農薬年度比では、殺虫剤73%、殺菌剤81%、殺虫殺菌剤70%、除草剤121%で、全体では87%となっており、除草剤の出荷量は平成22農薬年度が最も少なく、その後が増加に転じているが、全体としては減少傾向を示している。登録農薬原体数は新たに12化合物が追加され、平成29年9月現在591種類で、平成16農薬年度以降増加を続けている。登録農薬製剤数は平成29年9月現在、殺虫剤:1062、殺菌剤:896、殺虫殺菌剤:481、除草剤:1551、合計:4314となっている。平成元年比で69%と減少しており、殺虫剤の登録製剤数の減少が顕著であるが、除草剤に関しては登録製剤数が増加しており、前年比でも2%増えていた(図3)。

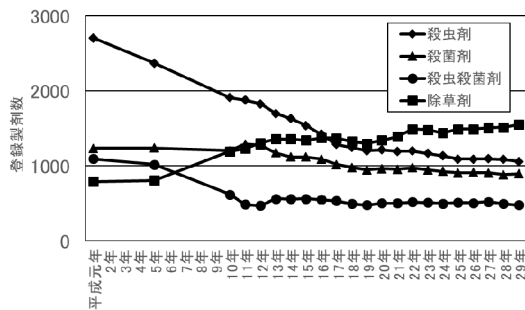


図3 用途別登録農薬製剤数の推移

(2-2) 農薬実態調査は研究協力者である全国10水道事業者(八戸圏域水道企業団,仙台市,茨城県,千葉県,神奈川県内広域水道企業団,新潟市,奈良県,神戸市,広島市,福岡県南広域水道企業団)の結果に加えて,神奈川県衛生研究所と国立保健医療科学院が相模川および全国の11浄水場から提供を受けて分析を行った測定結果をとりまとめた。平成30年度における協力研究者である全国10水道事業者と神奈川県衛生研究所と国立保健医療科学院が全国の既存の農薬データの少ない浄水場の実態調査及び神奈川県内の河川および蛇口水を測定した概要を表1に示す。

表1 平成30年度農薬実態調査の概要

	河川水, 原水	浄水
測定農薬		243
検出農薬		240
検出農薬	109	54
用途	除草剤	53
	殺虫剤	28
	殺菌剤	22
	分解物	4
	対象	69
分類	要検討	4
	その他	19
	除外	7
	未分類	10
	検出濃度	ベンタゾン 7.87
個別農薬評価値	メタミドホス 1.78	イプフェンカルバゾン 0.07
検出率	クロラントラニリプロール 54%	プロモプチド 39%
検出指標値	神奈川県 1.80	新潟市 0.10

河川水, 原水では109種類, 浄水では54種の農薬が検出された。検出された農薬を用途別にみると, 河川水, 原水, 浄水共に除草剤が最も多く, 約半分を占めている。農薬の分類別では対象リスト農薬掲載農薬(以下対象農薬)が河川水, 原水では69種, 浄水では34種が検出されており, 河川水, 原水では対象農薬の約6割が検出されている。それ以外の分類では河川水, 原水はその他農薬が19種, 未分類農薬が10種, 浄水ではその他農薬が11種, 未分類農薬が3

種検出された。本年度の実態調査で高い検出濃度, 個別農薬評価値, 検出率を示した農薬はこれまでの調査と大きな違いは見られなかったが, テフリルトリオンやイプフェンカルバゾンのように近年新しく調査対象となった農薬のうち, 特に目標値の低い農薬の影響により検出指標値が上昇する傾向にあることが確認された。また, アミノメチルリン酸のように農薬の分解物が上位にランクされることから水環境中における分解物の情報収集とモニタリングの必要性について今後検討する必要がある。

(2-3) 農業用途や家庭用でよく用いられるフィプロニル(以下FIP)はゴキブリ駆除剤やペット用のノミ, ダニの駆除剤, シロアリ駆除剤としても使用されている。また, ADIが低いことから検出濃度は低いが出指標値に対する寄与が比較的高い農薬である。FIPの環境中における分解物としてFIPスルフォン, FIPスルフィド(以下FIP-O), FIPデスルフィニルなどの検出事例が報告されている。

(2-4) 近年の農薬出荷量を用いて, 現行の農薬リストに記載されている農薬等の検出のおそれを再評価したところ, H24-26からH25-27へ更新した場合, 対象農薬リスト掲載農薬類で4農薬, それ以外で4農薬が抽出された。ジウロン及びイプフェンカルバゾンは, 3~4地域で新たに検出される可能性が高まっていた(表2)。一方, H25-27からH26-28へ更新した場合には検出のおそれの変化がなく, 前年度と同様の農薬を継続的に監視する必要性が示唆された。

表2 測定指標値の更新に伴い検出のおそれが増加した農薬

【H24-26からH25-27へ更新】

番号	原体名	地域数
対-006	アシュラム	1
対-044	ジウロン(DCMU)	3
対-045	ジクロベニル(DBN)	1
対-110	メコプロップ(MCPP)	1
他-019	クロチアニジン	1
追-003	イソチアニル	1
追-012	イプフェンカルバゾン	4
追-026	メタゾスルフロン	1

(2-5) 既存の農薬データが少ない全国11の浄水場における実態調査を実施したところ, 妥当性の精度を満たした農薬類167種類中, 水道原水からは35種類, 浄水からは27種類の農薬類が検出された。水道原水および浄水から目標値を超える農薬類の検出は見られなかった。水道

原水に注目すると、ジノテフラン、イプフェンカルバゾン等は東北日本海側の採水地点でのみ検出される、テフリルトリオンが採水地点山形県最上川地域で  $1 \mu\text{g/L}$  以上の高い濃度で検出されるなど、検出される農薬類には地域ごとに傾向がみられた。

### (3) 消毒副生成物

(3-1) DCIAA を 2,4,6-トリヨードフェノール (TIP) と塩素の反応から合成した。また、反応後の混合物を精製することで少なくとも数日は安定な溶液を作成することができた(半減期は約 64 日)。TIP と塩素との反応の過程で同時に生成されるクロロヨード酢酸 (CIAA) 等を分離・除去し、ICP-MS を用いた全ヨウ素 (Total-I) と LC-MSMS のよるヨウ化物イオン (I-) を測定することで、DCIAA の定量のための検量線を作成できることを示した。

(3-2) 置換基がない、あるいは p 位に置換基があるフェノール類、芳香族アミン類は、塩素処理による DCBQ 前駆物質であった。芳香族アミン類からの DCBQ の生成経路は、3,5-DCQC を経て生成することがわかった。

(3-3) 猪名川浄水場では、年間を通じてジハロアセトアミドの検出割合が高く、また、送配水過程においても HAcAms が増加した。桂川に隣接する下水処理場の放流水から HAcAms を確認した。

(3-4) 茨城県企業局の 2 浄水場ともに原水は 4 種の HAcAms について生成能を有しており、また、両浄水場とも生成能が最も高かったのは DCaAm であった。浄水については、霞ヶ浦浄水場で BCaAm, DBaAm が検出された。一方、鹿島浄水場では全て不検出であった。

(3-5) CHA の主な塩素反応物として、5 つが同定された。また、これらのピーク以外に、さらに強度が高い特徴的な 2 つのピークを検出し、その一方が「たまねぎ腐敗臭」との関連が高い臭気原因物質と推測されたが、装置付属のライブラリでは同物質を同定するには至らなかった。CHA のオゾン接触後の試料に塩素を添加すると、オゾン接触時間 18 分以上からは異臭は検知されず、また、臭気原因物質と推測されるピークの減少が確認された。

(3-6) 全ての物質について、オゾン・GAC 処理によって、浄水処理対応困難物質、ホルムアルデヒド生成能が低減された。粉末活性炭処理の場合、ジメチルヒドラジンは粉末活性炭で低減されたが、トリメチルアミン、ヘキサメチレンテトラミンはほとんど除去されなかった。

(3-7) ラフィド藻類 *G. semen* について、反応時間 4 時間(蹴上浄水場の着水井からろ過までの到達時間を想定)でのトリクロロ酢酸生成能は  $63 \mu\text{g/mgC}$  であった。これはラフィド藻類 *G. semen*  $100 \text{ cells/mL}$  とした場合、トリクロロ酢酸  $14 \mu\text{g/L}$  に相当した。ラフィド藻類 *Gonyostomum semen* は、トリクロロ酢酸生成能がユーグレナ藻類 *Euglena gracilis* や緑藻類 *Micrasterias hardyi* より 45~70 倍高いことがわかった。

(3-8) 桜井浄水場の浄水、受水池、給水末端の消毒副生成物の推移を見たところ、ジクロロ酢酸の場合、A 市受水池よりも A 市給水末端の方が低いことが多くあった。また、浄水、A 市受水池において、ジクロロ酢酸とクロロホルム相関は高かった。トリクロロ酢酸とクロロホルムの相関は、A 市給水末端で少しパラツキは見られるものの、クロロホルム濃度が高いとトリクロロ酢酸濃度も高かった。

(3-9) 粒状活性炭のメチレンブルー脱色力及びヨウ素吸着性能は、使用開始から 3 年半経過時点で、それぞれ初期値の 4 割及び 3 割程度まで低下していた。BAC 処理水の有機物指標 (TOC・E260・蛍光強度) は、粒状活性炭の劣化を反映し、年々増加した。浄水及び給水末端の総 THM・ハロ酢酸類には、有機物指標の増加に応じた濃度増加は見られなかった。

(3-10) 前駆物質と THMmax には相関があり、特に DOC と強い相関があった。THMmax は Total 次亜注入量に依存するが、水温に依存しなかった。THMmax の年間変動は小さく、消毒副生成物の指標項目として有用であると考えられた。

(3-11) 石川浄水場処理水中に含まれる CDOM の成分は 5 つに分類された (成分 1, 2 がフルボ酸, 成分 3, 4 がフミン酸, 成分 5 がタンパク質様成分)。CDOM 成分の除去率を見ると、全プロセスで約 78~97% が低減され、沈澱処理でフミン酸様の成分 3, 4 が低減していた。TOC, CDOM 各成分、導電率を説明変数として 3 種類の組み合わせにより、THM 生成能予測式を構築することができた。

(3-12) 高度浄水処理水と急速ろ過処理水について、TON と TPN, トリクロラミン濃度、遊離残留塩素濃度との関係を比較したところ、高度浄水処理水の場合、TON と各測定値の線形回帰分析による決定係数は、トリクロラミン ( $R^2 = 0.84$ ), TPN (0.78), 遊離残留塩素濃度 (0.09) の順に高かった。急速ろ過処理水の場合、TON と各測定値の線形回帰分析による決

定係数は、TPN(0.61)、トリクロラミン(0.45)、遊離残留塩素濃度(0.13)の順に高かった(図4)。したがって、TPNがカルキ臭のTONを測定する指標として有効であることが示唆された。しかし、TONが10以下程度の浄水ではTONとTPNの相関を確認できなかった。TPN以外の臭気原因物質が影響したことが示唆された。また、TPNの標準偏差が大きいデータもあり、安定した結果を得るためTPN計の改善が必要であると考えられた。

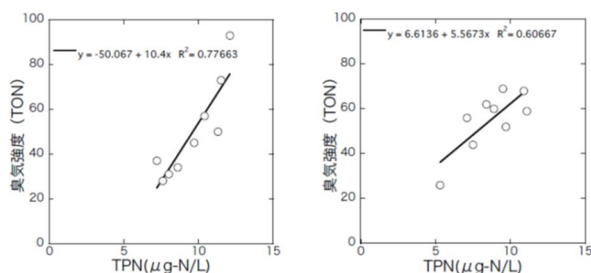


図4 TPNとTONの比較((左)高度浄水処理水,(右)急速ろ過水)

(3-13) 2つの浄水場原水を塩素処理した試料の塩素処理由来の臭気について、GC/Oを用いて解析を行ったところ、臭気の構成は原水により異なるが、共通する臭気があることがわかった。GC/O分析により得られた各臭気の臭気強度の合計が、臭気三点比較法で求めた試料の全体臭気強度を大きく上回った。この不整合は、各臭気のSPMEにおける回収率が、比較対象として添加したPANと同じであると仮定したためであると推察された。

(3-13) GC/Oによる臭気物質測定条件は、ツイスターの脱着温度によって左右され、フェノール類の測定の場合には、240に設定すると、最も測定条件が良いことがわかった。クロロフェノールの生成パターンは、添加直後の遊離残留塩素濃度が高くなるほど2,4,6-トリクロロフェノールが生成しやすく、プロモフェノール類は水中に存在する臭素イオンの影響を受ける可能性があることがわかった。

(3-15) 一級アミン類の場合、アミン類の塩素添加による結合塩素の生成は分子構造により特徴が見られた。二級アミンの場合、塩素添加による結合塩素の生成はこれまでに実験したアルキルアミンとほとんど同じ傾向で、アルキルアミンからのクロラミンの生成特性は分子構造にほとんど影響を受けなかった。

#### (4) リスク評価管理

(4-1) 揮発性を考慮したホルムアルデヒドの水道水質基準値の妥当性の評価

ホルムアルデヒドのヘンリー定数はクロロホルムと比較して約 $1/10^4$ と非常に小さく、揮発量も同様に小さいと予測される。しかし、30分の気液接触時の非平衡状態における分配係数 $K'_d$ 値を実測したところ、その比は約 $1/500$ であった(表3)。ホルムアルデヒドとクロロホルムの $K'$ 値の比と、実家庭でのクロロホルムの $K'_d$ 値の分布を用いて、ホルムアルデヒドの空气中濃度分布を作成した。空气中濃度分布の95%値が、WHOの室内空气中濃度ガイドライン値( $100 \text{ mg/m}^3$ )と等しくなるような水道水中濃度は $2.6 \text{ mg/L}$ であった。すなわち、 $2.6 \text{ mg/L}$ の濃度の水道水を使用すると、水道水からの揮発からのみによって室内空気濃度が基準を超過する確率は5%であった。しかし、室内環境におけるホルムアルデヒドの主な発生源が建材や家具などからの揮発であることを踏まえると、水道水からの揮発が主な暴露源にならないように、室内空気濃度の基準値に割当率を乗じて水道からの間接暴露量を評価する必要がある。仮にWHOの室内空气中濃度ガイドライン値の20%または10%を水道水由来の揮発分への割当率をすると、許容される水道水中濃度はそれぞれ $0.52 \text{ mg/L}$ 、 $0.26 \text{ mg/L}$ であった。これらの値はカナダのガイドライン値( $0.35 \text{ mg/L}$ )に近く、揮発分の吸入リスクを考慮している日本の水道水基準よりも大きい値であった。この結果は、日本の水道水質基準値が十分すぎる安全側の評価値であることを示唆している。

(4-2) 有機リン系農薬未知分解物の複合影響を踏まえた毒性試験法の整備

メチダチオン(DMTP)を含む水溶液を塩素処理し、DMTPからオキソン体が生成されるか否かを調べるとともに、塩素処理試料の誘発するChE活性阻害性を経時的に定量し、ChE活性阻害性へのオキソン体の寄与を評価した。図5に示すように塩素処理に伴い、DMTPの大部分(最大83%)が速やかにオキソン体へと変換され、オキソン体は1週間程度水中で安定して存在し、塩素処理試料の誘発するChE活性阻害性には、オキソン体が大きく寄与していることが示された。これらより、現行の水質管理目標設定項目における「農薬類」では測定対象に組み込まれていないDMTPオキソン体を対象に組み込み、DMTP原体濃度と合算して管理することが妥当であると提言された。

表3. ホルムアルデヒドとクロロホルムの  $K'_d$  値, ヘンリー定数および移行係数

		単位	気液接触条件		
			A	B	C
$K'_d$	ホルムアルデヒド ( $K'_d$ -formaldehyde)	( $\mu\text{g}/\text{m}^3$ )/( $\mu\text{g}/\text{L}$ )	$1.17 \times 10^{-2}$	$1.66 \times 10^{-2}$	$2.25 \times 10^{-2}$
	クロロホルム ( $K'_d$ -chloroform)	( $\mu\text{g}/\text{m}^3$ )/( $\mu\text{g}/\text{L}$ )	6.41	8.23	9.60
$K'_d$ -formaldehyde / $K'_d$ -chloroform		無次元	1 / 547	1 / 497	1 / 426
ヘンリー定数	ホルムアルデヒド ( $H_{\text{formaldehyde}}$ ) <sup>a</sup>	L·Pa/mol	92.1	29.8	50.7
	クロロホルム ( $H_{\text{chloroform}}$ ) <sup>b</sup>	L·Pa/mol	$7.66 \times 10^5$	$3.65 \times 10^5$	$4.71 \times 10^5$
$H_{\text{formaldehyde}} / H_{\text{chloroform}}$		無次元	1 / ( $8.32 \times 10^3$ )	1 / ( $1.22 \times 10^4$ )	1 / ( $9.30 \times 10^3$ )
移行係数 <sup>c</sup>	ホルムアルデヒド ( $TE_{\text{formaldehyde}}$ )	無次元	$3.30 \times 10^{-2}$	$1.09 \times 10^{-2}$	$1.83 \times 10^{-2}$
	クロロホルム ( $TE_{\text{chloroform}}$ )	無次元	0.725	0.576	0.627
	$TE_{\text{formaldehyde}} / TE_{\text{chloroform}}$	無次元	1 / 22.0	1 / 53.1	1 / 34.2

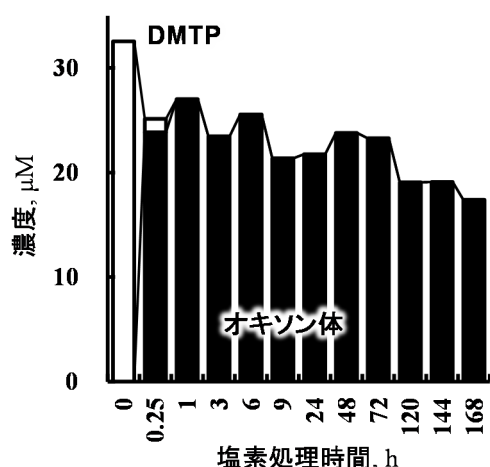


図5 DMTPの塩素処理に伴うオキソン体の生成 (低濃度: DMTP 初期濃度  $30 \text{ nM} \approx 10 \mu\text{g}/\text{L}$ )

ダイアジノンを含む水溶液を塩素処理し,その処理過程で試料の誘発する ChE 活性阻害性を定量するとともに,それに寄与する分解物を同定したところ,塩素処理に伴い,ダイアジノンの大部分(最大 80%)がオキソン体へと変換されるが,それ以外の分解物も生成されることが示されたが,生成されたオキソン体で,試料の誘発する ChE 活性阻害性が説明できることが分かった.すなわち,現行の水質管理目標設定項目における「それぞれのオキソン体の濃度も測定し,それぞれの原体の濃度と,そのオキソン体それぞれの濃度を原体に換算した濃度を合計して算出すること」との管理法はダイアジノンについて妥当であると判断された.

#### (4-3) 水道汚染物質の亜急性評価値に関する研究

水道水は,飲用,炊事,洗濯,風呂,水洗便所

のみならず,空調用水,冷却水,消防用水等の都市活動や医療活動に使用されており,都市機能や公衆衛生の維持に不可欠なものである.従って,自然災害等で汚染物質濃度が一時的に目標値を超えた場合でも,その濃度や推測される曝露期間等を考慮して慎重に対応する必要がある.本研究では,このような一時的な水質汚染の際に参考すべき値として成人及び小児を対象とした参照値を設定した.今年度は,日本の水質管理要検討項目 8 項目について亜急性参照値を算出することができた(表4).それぞれの目標値と比較して, MX, 過塩素酸, NDMA, アニリン, キノリン及び NTA に関しては約 4 倍程度, またキシレン及び 1,2,3-トリクロロベンゼンについては,約 40 倍程度高い値として亜急性参照値が設定できた.過塩素酸の水道水中の目標値は,甲状腺へのヨウ素取り込み阻害をエンドポイントとしたヒトボランティア実験から定められており, PMTDI(暫定最大 1 日耐容摂取量)を根拠として水道水中の目標値が定められている.一日単位の耐容摂取量が目標値の設定根拠であることから,本評価でも PMTDI の値を saRfD と定めた.このような項目については,水道水質汚染が生じた際に注意が必要となる.

一方,キシレン及び 1,2,3-トリクロロベンゼンのように 10 倍以上高い亜急性参照値が得られた項目については,一時的に飲料水中濃度が目標値を超えた場合でも,本研究で提案する参照値を超えない濃度であれば健康影響の懸念は低いと考えられるため,給水停止の措置は必要ないと判断することが可能となる.事故時には,緊急の判断が必要となることから,本研究で設定した値は非常に有用と考えられる.



表4 成人及び小児の亜急性参照値及び目標値との比較

項目	saRfD ( $\mu\text{g}/\text{kg}/\text{day}$ )	目標値 ( $\text{mg}/\text{L}$ )	成人 ( $\text{mg}/\text{L}$ )	比率	小児 ( $\text{mg}/\text{L}$ )	比率
MX (3-クロロ-4-ジクロロメチル-5-ヒドロキシ-2(5H)-フラノン)	0.55	0.001	0.01	10	0.006	6
キシレン	1500	0.4	40	100	150	38
過塩素酸	10	0.025	0.3	12	0.1	4
N-ニトロソジメチルアミン (NDMA)	0.036	0.0001	0.0009	9	0.0004	4
アニリン	7	0.02	0.2	10	0.07	4
キノリン	0.033	0.0001	0.0008	8	0.0003	3
1,2,3-トリクロロベンゼン	77	0.02	2	100	0.8	40
ニトリロ三酢酸 (NTA)	140	0.2	4	20	1	5

注意点：この表に示した亜急性参照値は、研究班による研究成果に基づくものであり公的な指針値等に相当するものではない。この参照値は現時点で使用可能な毒性学的知見を用いて算定した値であり、今後、リスク評価に関する新たな知見により変更する可能性がある。また、実際の運用等にあたっては、化学物質の物理化学的性状が利水に及ぼす影響や他法令による指針値との整合性を考慮して参照することが必要である。

#### (4-4) 水道器材から溶出し得る化学物質の毒性調査

水道用資機材から溶出し得る化学物質の中で特に毒性情報収集の必要のあると考えられる物質として、1,2-及び1,3-ブタジエン、2,4-トルエンジアミン、アクリル酸、酢酸ビニル及びヒドラジンの毒性情報を収集した。これらの物質は水道水質の要検討項目となっているものの目標値の設定はなされていないが、いずれの物質についても水道水質の目標値を導出し得る毒性情報が存在することが示された。平成15年の水質基準の見直し検討の際には、これらの物質の水道水での検出状況は不明であった。水道管の老朽化に伴う汚染の可能性も否定できないため、今後知見が収集されることが望まれる。今回調査した物質の内、ブタジエンは常温で気体であり、水に対して微溶 ( $735 \text{ mg}/\text{L}$  ( $25^\circ\text{C}$ )) であることから、資機材から溶出したブタジエンの水道水を介する曝露は非常に限定的であると推測された。また、最も低い人健康影響に対する評価値 ( $0.21 \mu\text{g}/\text{kg}/\text{day}$ ) が得られたヒドラジンは、エポキシ樹脂粉体塗装の熱硬化剤として用いられているが、粉体塗装焼き付け後に資機材に残留する可能性は低いと推測されることから、エポキシ樹脂粉体塗装由来のヒドラジンの曝露量も極めて限定的であると考えられた。しかしながら、ヒドラジンは水に易溶であり、かつ毒性の高い物質であることが示された事から、河川、湖沼、地下水、又は水道水等での検出状況等などと照らし合わせ、必要に応じて今後要検討項目として注力すべき物質であることが示唆された。

#### (5) 水質分析法

23種の農薬とGC部の注入口の汚れに敏感なキャプタホルの計24物質の他に、市販のGC/MS装置性能評価物質18物質を性能評価用の候補物質として選び、検討試験を行った。水質マトリックスとして河川水の抽出液を注入し、マトリックス負荷による装置性能評価物質にどのような影響が生じるのかを調べた。

その結果、マトリックス負荷による定量値や保持時間への影響に関しては、24物質と18物質の間で大きな差はなかったが、ピーク形状への影響のタイミングについては明らかな差が認められた。マトリックスの注入回数に伴い、キャプタンやペンシクロン等の一部の農薬について、定量値やピーク形状に影響を及ぼすことが明らかになった。ただし、GC部のインサートライナー交換やキャピラリーカラム切断等のメンテナンスを実施した後は、これらの影響はほぼ改善され、初期状態に近い装置性能に戻っていることが確認された。また、本試験で選定した装置性能評価物質は、市販のGC-MS装置性能評価物質と比べ、早い段階でピーク形状に影響が現れることがわかった。これらのことは、水道水質の検査スクリーニング分析におけるメンテナンスの時期を判断する上で有用な知見になると考えられる。すなわち、早い段階でピーク形状への影響が現れるペンシクロン等(水道クライテリア)を基準にメンテナンス時期を判断した方が、分析精度を確保する上で望ましいと考えられる。本試験の成果は、水道水質の検査スクリーニング分析法を実用化する上で有用な情報になると期待される。

## D. 結論

### (1) 微生物

レジオネラ属は遊離残留塩素 > 0.1 mg/L の給水栓ではすべて不検出であった。浄水場 A における凝集沈澱-砂ろ過処理によるトウガラシ微斑ウイルスの除去率は 1.3 ~ 2.0-Log であり、各種の水系感染症ウイルスも同程度除去されると推察され、ウイルス対策は後段の塩素処理に大きく依存していることが改めて確認された。クリプトスポリジウム感染を防止するためには従来の 2-Log 除去ではなく、3-Log 以上の徹底が必要であった。さらに、微生物許容感染リスク  $10^{-4}$ /年の目標には、4-Log 以上が必要と考えられた。

### (2) 化学物質・農薬

農薬出荷量は 1980 年代以降、減少を続けている。しかし、農薬要覧 2018 に記載されている平成 29 農薬年度の農薬製剤出荷量は約 22.8 万 t で昨年とほぼ同じ量であった。除草剤の出荷量は平成 22 農薬年度が最も少なく、その後が増加に転じている。登録農薬原体数は新たに 12 化合物が追加され、平成 29 年 9 月現在 591 種類で、平成 16 農薬年度以降増加を続けている。国内 10 水道事業体、国立保健医療科学院（全国の既存の農薬データの少ない浄水場を対象）及び神奈川県内の調査において、河川水・原水では 109 種類、浄水では 54 種の農薬が検出された。河川水、原水では対象農薬の約 6 割が検出されている。それ以外の分類では河川水、原水はその他農薬が 19 種、未分類農薬が 10 種、浄水ではその他農薬が 11 種、未分類農薬が 3 種検出された。テフリルトリオンやイプフェンカルバゾンのように近年新しく調査対象となった農薬のうち、特に目標値の低い農薬の影響により検出指標値が上昇する傾向にあることが確認された。また、アミノメチルリン酸のように農薬の分解物については情報収集とモニタリングの必要性について今後検討する必要がある。農業用途や家庭用でよく用いられるフィプロニル（以下 FIP）については ADI が低いことから検出指標値に対する寄与が比較的高い農薬である。FIP の環境中における分解物の検出事例が報告されている。近年の農薬出荷量を用いて、現行の農薬リストに記載されている農薬等の検出のおそれを再評価したところ、H24-26 から H25-27 へ更新した場合、対象農薬リスト掲載農薬類で 4 農薬、それ以外で 4 農薬が抽出された。ジウロン及びイプフェンカルバゾンは、3~4 地域で新たに検出される可能性が高まっていた。既存の農薬データが少ない全

国 11 の浄水場における実態調査を実施したところ、水道原水からは 35 種類、浄水からは 27 種類の農薬類が検出された。水道原水および浄水から目標値を超える農薬類の検出は見られなかった。

### (3) 消毒副生成物

ジクロロヨード酢酸を 2,4,6-トリヨードフェノールと塩素の反応から合成した。合成過程で生成されるクロロヨード酢酸等を分離・除去し、ICP-MS を用いた全ヨウ素と LC-MSMS のよるヨウ化物イオンを測定することで、ジクロロヨード酢酸定量のための検量線を作成できた。芳香族アミン類からの 2,6-ジクロロ-1,4-ベンゾキノンの生成経路は、3,5-ジクロロキノ-4-クロロイミドを経て生成することがわかった。猪名川浄水場では、年間を通じてジハロアセトアミドの検出割合が高かった。茨城県企業局の 2 浄水場ともに原水は 4 種のハロアセトアミド生成能が確認された。シクロヘキシルアミンの主な塩素反応物として、5 つが同定された。シクロヘキシルアミンのオゾン 18 分以上接触後の試料には異臭は検知されなかった。ラフィド藻類 *Gonyostomum semen* のトリクロロ酢酸生成能は、ユーグレナ藻類 *Euglena gracilis* や緑藻類 *Micrasterias hardyi* より 45 ~ 70 倍高いことがわかった。反応時間 4 時間でのトリクロロ酢酸生成能は 63  $\mu\text{g}/\text{mgC}$  であった。北千葉浄水場において、粒状活性炭のメチレンブルー脱色力及びヨウ素吸着性能は、使用開始から 3 年半経過時点で、それぞれ初期値の 4 割及び 3 割程度まで低下していた。高度浄水処理水と急速ろ過処理水について、臭気強度への指標として、全揮発性窒素が最も有効で、トリクロラミンがその次に有効であった。2 つの浄水場原水を塩素処理した試料の塩素処理由来の臭気について、ガスクロマトグラフィー官能試験法 (GC/O) を用いて解析を行ったところ、臭気の構成は原水により異なるが、共通する臭気があることがわかった。アルキルアミンの塩素処理によるクロラミンの生成特性は分子構造にほとんど影響を受けなかった。

### (4) リスク評価管理

ホルムアルデヒドのヘンリー定数はクロロホルムと比較して約  $1/10^4$  と非常に小さいが、シャワーや入浴時を想定した 30 分の気液接触時の非平衡状態における分配係数  $K_d$  値の比は約 1/500 であった。この値を用いて、の空气中濃度分布を作成した。ホルムアルデヒド濃度が 2.6 mg/L の水道水を使用すると、水道水からの揮発からのみによって室内空気濃度が基準を

超過する確率は5%であった。しかし、室内環境におけるホルムアルデヒドの主な発生源が建材や家具などからの揮発であることを踏まえると、水道水からの揮発が主な暴露源にならないように、室内空気濃度の基準値に割当率を乗じて水道からの間接暴露量を評価する必要がある。仮にWHOの室内空気中濃度ガイドライン値の20%または10%を水道水由来の揮発分への割当率をすると、許容される水道水中濃度はそれぞれ0.52 mg/L、0.26 mg/Lであった。これらの値はカナダのガイドライン値(0.35 mg/L)に近く、揮発分の吸入リスクを考慮している日本の水道水基準よりも大きい値であった。

塩素処理に伴い、有機リン系農薬DMTPの大部分(最大83%)が速やかにオキソン体へと変換され、ChE活性阻害性にはオキソン体が大きく寄与していることが示された。DMTPオキソン体は水質管理目標設定項目における「農薬類」では測定対象に組み込まれていないが、DMTP原体濃度と合算して管理することが妥当であると提言された。また、ダイアジノンを含む水溶液を塩素処理した場合、オキソン体以外の分解物も若干生成されるが、ChE活性阻害は弱く、現行の水質管理目標設定項目における管理法(原体とオキソン体の合算)は妥当であると判断された。

水道汚染物質の亜急性評価値に関する研究では、事故や災害などにより一時的に水質汚染の可能性のある化学物質の管理のために、今年度は要検討項目の8項目について短期間曝露を対象とした亜急性評価値[SaRfD(mg/kg/day)]を算出した。

水道用資機材から溶出し得る化学物質の毒性調査としては、日本水道協会(JWWA)発行の水道用資機材自主規格(JWWA規格)を参照し、水道資機材のめっき、塗装、樹脂、ゴムなどに用いられている化学物質のリスト化を行った。その中で水道水質の要検討項目となっているものの目標値が設定されていない6物質を本研究の調査対象物質に選定し、毒性情報を整理した。

#### (5) 水質分析法

GC/MSスクリーニング分析における装置性能を調べるため、23農薬を含む水道水質関係24物質とGC/MS性能評価用の18物質を用いて評価試験を行った。その結果、マトリックス負荷による定量値や保持時間への影響に関しては、両物質間で大きな差はなかったが、ピーク形状への影響のタイミングについては明らか

な差が認められた。このことは、早い段階でピーク形状への影響が現れるペンシクロン等を基準にメンテナンス時期を判断した方が、分析精度を確保する上で望ましいと考えられた。

今後の展望および課題としては以下があげられる。病原ウイルスとトウガラシ微斑ウイルスの原水・浄水における実態、実浄水場における塩素処理を含む処理性をより詳細に調べ、ウイルス指標としてのトウガラシ微斑ウイルスの有効性を確認し、具体的な指標を提案する。レジオネラ属管理指標としても遊離残留塩素>0.1 mg/Lの重要性を周知する。イプフェンカルバゾンやアミノメチルリン酸、有機リン系農薬メチダチオンDMTPのオキソン体、フィプロニルとそれらの分解物のなど今後監視の必要性が高い農薬があげられ、さらなる農薬の実態調査の実施と水源における存在状況の確認を行い、水質基準逐次改正検討会などにおける農薬リストの見直しのために基礎資料としての提供が期待される。全揮発性窒素については、臭気強度(TON)の補完測定法として、その標準化が期待される。亜急性参照値、要検討項目の毒性情報についても逐次改正検討会などに今後の検討資料として供される可能性がある。GC/MSスクリーニング分析における装置性能の成果は、水道水質の検査スクリーニング分析法として実用化する上で有用な情報になると期待され、スクリーニング分析の適用により水道水質の安全性確保に貢献できると考えられる。

#### E. 健康危険情報

なし

#### F. 研究発表

##### 1. 論文発表

Miura T, Gima A, Akiba M. Detection of norovirus and rotavirus present in suspended and dissolved forms in drinking water sources. Food Environ Virol. 11(1):9-19, 2019.

Nishikawa, S., Matsui, Y., Matsushita, T. and Shirasaki, N., Assessment of indirect inhalation exposure to formaldehyde evaporated from water, Regulatory Toxicology and Pharmacology, 106, 43-49, 2019.

Tsuchioka H, Izumiyama S, Endo T, Wada T,

Harada H, Hashimoto A. Hydroxyapatite powder cake filtration reduces false positives associated with halophilic bacteria when evaluating *Escherichia coli* in seawater using Colilert-18. *J Microbiol Methods*. 2019 Feb 22;159:69-74.

Canh, V.D., Kasuga, I., Furumai, H., Katayama, H., 2019. Viability RT-qPCR Combined with Sodium Deoxycholate Pre-treatment for Selective Quantification of Infectious Viruses in Drinking Water Samples. *Food Environ. Virol.* 11, 40-51.

小林憲弘, 土屋裕子, 堀池秀樹, 増田潤一, 五十嵐良明: 液体クロマトグラフィータンデム質量分析による水道水中の 141 農薬の一斉分析法の開発. *水環境学会誌*, 42(1), 13-25 (2019).

木下輝昭, 山崎貴子, 中川慎也, 小田智子, 小西浩之, 守安貴子: アミトラスおよびその分解物の LC-MS/MS による同時分析および消毒剤による分解挙動. *水環境学会誌*, 42(2), 73-78 (2019).

Shirasaki, N., Matsushita, T., Matsui, Y. and Yamashita, R. (2018). Evaluation of the suitability of a plant virus, pepper mild mottle virus, as a surrogate of human enteric viruses for assessment of the efficacy of coagulation-rapid sand filtration to remove those viruses. *Water Research* 120: 460-469.

Kosaka K., Iwatani A., Takeichi, Y., Yoshikawa, Y., Ohkubo, K. and Akiba, M.: Removal of haloacetamides and their precursors at water purification plants applying ozone/granular activated carbon treatment, *Chemosphere*, 2018, 198, 68-74.

Akiyama, M., Matsui, Y., Kido, J., Matsushita, T. and Shirasaki, N., Monte-Carlo and multi-exposure assessment for the derivation of criteria for disinfection byproducts and volatile organic compounds in drinking water: allocation factors and liter-equivalents per day, *Regulatory Toxicology and Pharmacology*, 95, 161-174, 2018.

大屋日登美, 鈴木美雪, 政岡智佳, 中嶋直樹, 古川一郎, 前川純子, 倉文明, 泉山信司, 黒木俊郎, 医療機関の給水設備におけるレジオネラ属菌の汚染実態, *感染症誌* 92: 678 ~ 685, 2018.

Matsumoto, M., Furukawa, M., Kobayashi, K, Iso, T., Igarashi, T., Yamada, T., Hirose, A. A 28-day repeated oral-dose toxicity study of insecticide

synergist N-(2-ethyl-hexyl)-1-isopropyl-4-methylbicyclo[2.2.2]oct-5-ene-2,3-dicarboximide in rats, *Fundam. Toxicol. Sci.*, 5, 1-11, 2018.

小杉有希, 渡邊喜美代, 鈴木俊也, 小西浩之, 守安貴子: 専用水道の水道水中の非イオン界面活性剤の偽陽性事例. *水道協会雑誌*, 87(7), 17-21 (2018).

2. 著書  
なし

3. 解説・総説  
なし

4. 学会発表

佐藤 学, 仲野 富美, 上村 仁, 前田 暢子, 浅見 真理. 全国の浄水場における農薬類の実態調査. 第 28 回環境化学討論会 (発表予定)

高力聡史, 白崎伸隆, 松下拓, 松井佳彦 (2019). PMAxx-Enhancer-PCR 法による水道原水中の感染性ウイルスの選択的定量. 第 53 回日本水環境学会年会, 甲府, 2019/3/7-9.

松村拓哉, 高力聡史, 白川大樹, 白崎伸隆, 松下拓, 松井佳彦 (2019). トウガラシ微斑ウイルスを挙動指標とした膜ろ過浄水施設におけるウイルスの処理性評価. 第 53 回日本水環境学会年会, 甲府, 2019/3/7-9.

西川峻登, 松井佳彦, 松下拓, 白崎伸隆, 揮発性を考慮したホルムアルデヒドの水道水質基準値の妥当性の評価. 第 53 回日本水環境学会年会, 甲府, 2019/3/7-9.

三浦尚之, 鈴木知美, 儀間ありさ, 越後信哉, 秋葉道宏. 病原ウイルスの表流水中存在形態を考慮した汚染指標に関する検討, 第 53 回日本水環境学会年会講演集, 254, 2019.

多田悠人, 奥田恵理香, José Andrés Cordero, 小坂浩司, 越後信哉, 船岡英彰, 倉田彰弘, 伊藤禎彦. ラフィド藻類に由来するトリクロロ酢酸前駆物質の特定解析, 第 53 回日本水環境学会年会講演集, 甲府, 2019. 3, 644.

鈴木知美, 本田恵理, 塩川敦司, 越後信哉, 吉田伸江, 秋葉道宏. ヨウ素化ハロ酢酸の生成特

性に関する調査，第 53 回日本水環境学会年会講演集，甲府，2019 . 3 ， 221 .

Huang, Y., Ohmori, K., Fujita, Y., Matsushita, T., Matsui, Y., Shirasaki, N. and Puspita, R. L. (2019) Identification of cholinesterase-inhibiting transformation products generated during chlorination of organophosphorous pesticide malathion by using orbitrap tandem mass spectrometry, The 53rd Annual Conference of Japan Society on Water Environment (7□9 March 2019), Kofu, Japan.

佐藤 学，仲野 富美，上村 仁 . 「LC/MS/MS 一斉分析法を用いた神奈川県相模川流域における農薬類の実態調査」. 神奈川県衛生研究所 . 第 52 回日本水環境学会年会 . 2018.3.15-17. 年会講演集 p.213. 3/15-17

森智裕，谷口佳二 . フィプロニル分解物の水源河川と浄水処理工程における実態調査 . 日本水道協会関西支部 . 2018.11

三浦尚之，儀間ありさ，荒川直子，篠原成子，松村諭，越後信哉，原本英司，秋葉道宏 . 地下水における病原ウイルス汚染実態調査に向けた検討，平成 30 年度水道研究発表会講演集，770-771，2018 .

白川大樹，白崎伸隆，松下拓，松井佳彦(2018). 培養困難なウイルスの浄水処理性評価に向けた遺伝子封入ウイルス様粒子の創製. 第 26 回衛生工学シンポジウム，札幌，2018/11/8-9.

白崎伸隆，松下拓，松井佳彦 (2018). 浄水処理におけるウイルスの処理性評価と処理技術の高度・高効率化. 外力支援型バイオアッセイ技術コンソーシアム 第 1 回技術セミナー・技術交流会，東京，2018/6/8. 招待講演

山下玲菜，高力聡史，白崎伸隆，松下拓，松井佳彦 (2018). 実浄水処理場におけるウイルスの処理性評価：ナノセラム陽電荷膜とタンジェンタルフローUF 膜を併用した大容量濃縮法の適用. 第 52 回日本水環境学会年会，札幌，2018/3/15-17.

白川大樹，白崎伸隆，松下拓，松井佳彦 (2018). 培養困難な水系感染症ウイルスの浄水処理性評価に向けた遺伝子封入型ウイルス様粒子の創製. 第 52 回日本水環境学会年会，札幌，2018/3/15-17.

岩本和也，目黒健，堀場世樹，宮崎誠生，泉山信司，橋本温，二種の抗クリプトスポリジウムモノクローナル抗体によるオーシスト二重染色の試み，日本水環境学会年会，2018 年 3 月，北海道札幌市

中野勲，山口裕太郎，泉山信司，橋本温，レジオネラ菌のろ過濃縮に用いるメンブレンフィルターおよびろ過法の評価，日本水環境学会年会，2018 年 3 月，北海道札幌市

大河内由美子，泉山信司，前川純子，貯水槽水道で滞留した水道水からのレジオネラ属菌および関連微生物の検出状況，日本防菌防黴学会，2018 年 11 月，東京都

浅野峰子，泉山信司，クリプトスポリジウム対策を目的とした浄水場濁度管理への粒子計の活用，日本水道協会平成 30 年度全国会議（水道研究発表会），2018 年 10 月，福岡県

古川紗耶香，山本貢平，赤坂遼平，泉山信司，河川水からのジアルジア (*Giardia microti*) の検出，日本水道協会水道研究発表会，2018 年 10 月，福岡県

泉山信司，汚染される理由と事例，講演会・シンポジウム「医療機関の給湯・給水系に潜むレジオネラ感染リスク - 実態と予防策 - 」，2018 年 10 月，東京都

泉山信司，水道における病原性微生物への対策，市民公開講座「安全な水道水をめざして - 水質基準に関する研究の最前線」，2018 年 5 月，東京都

泉山信司，浅野峰子，クリプトスポリジウム対策を目的とした浄水場濁度管理への粒子計の活用，2018 年 3 月，東京

Kosaka K. Control of trace pollutants in water during conventional and accidental occurrence, 2018 Busan Waterworks International Workshop, Busan, Korea, 5-6 Sep., 2018, 107-127.

施昊，川口佳彦，越後信哉，小坂浩司，伊藤禎彦 . 全揮発性窒素を用いた水道水のカルキ臭分析手法の検討，第 55 回環境工学研究フォーラム講演集，京都，2018 . 12 ， 11 .

林寛之，畑瀬大樹，松下拓，松井佳彦，白崎伸隆 . GC-MS-O による消毒副生成物の水道水カ

ルキ臭への寄与の評価，第 26 回衛生工学シンポジウム，2018，札幌，2018．11.

鈴木知美，越後信哉，浅見真理，秋葉道宏．全国における塩素酸の存在実態とその要因 -最新の国際的動向を踏まえた解析-，平成 30 年度全国会議(水道研究発表会)講演集 福岡 2018．10，734-735.

牛江裕行，武村盛史，横山直輝，阿部功介，越後信哉，浅見真理，秋葉道宏．水道水中ヨウ素化トリハロメタンの全国実態調査，平成 30 年度全国会議(水道研究発表会)講演集，福岡，2018．10，720-721.

岩谷梓，武市裕貴，吉川雄介，小坂浩司，大久保慶子，秋葉道宏．オゾン/生物活性炭処理によるハロアセトアミド生成能の低減，第 27 回日本オゾン協会年次研究講演会講演集，東広島，2018．6，97-100．

Ohmori, K., Fujita, Y., Huang, Y., Matsushita, T., Matsui, Y. and Shirasaki, N. (2018) Toxicological contributions of transformation products derived from organophosphorus pesticides during chlorination, IWA World Water Congress 2018 (16-21 September 2018), Tokyo, Japan.

Hirose A, Matsumoto M, Kawamura T, Yamada T, Inoue K, Setting of the subacute guidance value for risk management of emerging issues at the drinking water quality, ASAITOX 2018, (2018.6.19) Pattaya, Thailand

Mariko Matsumoto, Tomoko Kawamura, Kaoru Inoue, Takashi Yamada, Norihiro Kobayashi, Akihiko Hirose : Updates and overview of derivation of subacute guidance values for contaminants in drinking water in Japan, EUROTOX 2018 (2018 年 9 月、ベルギー)

小林憲弘：水質検査の現状の課題と最新の検討状況．第 27 回環境化学討論会 自由集会「水質検査の将来のあり方について考える(その 2)」(2018.5.23 沖縄県那覇市)．

高木総吉：GC/MS スクリーニング分析法に用いる検量線の比較．第 27 回環境化学討論会自由集会「水質検査の将来のあり方について考える(その 2)」(2018.5.23 沖縄県那覇市)．

宮脇崇：GC/MS スクリーニング分析における装置性能評価．第 27 回環境化学討論会自由集

会「水質検査の将来のあり方について考える(その 2)」(2018.5.23 沖縄県那覇市)．

安達史恵，吉田仁，高木総吉，小泉義彦，中島孝江，北村雅世，鳥居将士，吉田直志，小林憲弘：水道原水および浄水中における農薬類代謝物の分析方法の検討および実態調査．第 27 回環境化学討論会(2018.5.24 沖縄県那覇市)．

高木総吉，小林憲弘，宮脇崇，安達史恵，吉田仁，木下輝昭，中川慎也，梅津萌子，仲野富美，辻清美，上村仁，大窪かおり，門上希和夫：ガスクロマトグラフ-質量分析計を用いた水道水中農薬類のスクリーニング分析法の検討．第 27 回環境化学討論会(2018.5.24 沖縄県那覇市)．

小林憲弘，土屋裕子，高木総吉，宮脇崇，門上希和夫，五十嵐良明：GC/MS スクリーニング分析法を用いた水道原水・水道水中農薬の実態調査．第 27 回環境化学討論会(2018.5.24 沖縄県那覇市)．

小林憲弘，土屋裕子，高木総吉，宮脇崇，門上希和夫，五十嵐良明：水道水中農薬の GC/MS スクリーニング分析法の開発と実試料への適用．第 21 回日本水環境学会シンポジウム(2018.9.4 島根県松江市)．

小林憲弘，土屋裕子，高木総吉，宮脇崇，門上希和夫，五十嵐良明：GC/MS スクリーニング分析による水道原水・水道水中の 176 農薬の実態調査．環境科学会 2018 年会(2018.9.10 東京都北区)．

小林憲弘：水道水質検査のためのスクリーニング分析法の開発と適用．環境科学 2018 年会シンポジウム「スクリーニング分析法を用いた水道水質検査」(2018.9.11 東京都北区)．

高木総吉：GC/MS を用いた農薬類のスクリーニング分析における定性・定量精度評価．環境科学 2018 年会シンポジウム「スクリーニング分析法を用いた水道水質検査」(2018.9.11 東京都北区)．

宮脇崇：GC/MS スクリーニング分析における装置性能の評価．環境科学 2018 年会シンポジウム「スクリーニング分析法を用いた水道水質検査」(2018.9.11 東京都北区)．

木下輝昭:環境水中でのアミトラズおよびその分解物の挙動. 環境科学 2018 年会シンポジウム「スクリーニング分析法を用いた水道水質検査」(2018.9.11 東京都北区).

吉田仁:農薬類代謝物の分析法検討及び浄水場における検出状況. 環境科学 2018 年会シンポジウム「スクリーニング分析法を用いた水道水質検査」(2018.9.11 東京都北区).

Norihiro Kobayashi, Yuko Tsuchiya, Sokichi Takagi, Takashi Miyawaki, Kiwao Kadokami, Yoshiaki Ikarashi: Monitoring of 176 agricultural chemicals in raw water and tap water by GC/MS screening analytical method. SETAC North America 39th Annual Meeting (2018. 11. 5 Sacramento, CA, USA).

Sokichi Takagi, Norihiro Kobayashi, Takashi Miyawaki, Fumie Adachi, Jin Yoshida, Yuko Tsuchiya, Kiwao Kadokami: Development of an analytical screening method for agricultural chemicals in drinking water using GC-MS. SETAC North America 39th Annual Meeting (2018. 11. 5 Sacramento, CA, USA).

小池真生子, 長谷川有紀, 安達史恵, 吉田仁, 高木総吉, 小泉義彦, 中島孝江, 北村雅世, 鳥居将士, 吉田直志, 小林憲弘: 大阪府内河川および浄水場における農薬代謝物の検出状況と浄水処理評価. 平成 30 年度地方衛生研究所全国協議会 近畿支部理化学部会研修会 (2018.11.22 大阪府東大阪市).

小池真生子, 長谷川有紀, 安達史恵, 吉田仁, 高木総吉, 小泉義彦, 中島孝江, 北村雅世, 鳥居将士, 吉田直志, 小林憲弘: 水環境における農薬代謝物の検出状況と浄水処理評価. 第 55 回全国衛生化学技術協議会年会 (2018.11.29 神奈川県横浜市).

長谷川有紀, 小池真生子, 高木総吉, 安達史恵, 吉田仁, 小林憲弘: 水環境における除外農薬類の検出特性. 第 55 回全国衛生化学技術協議会年会 (2018.11.29 神奈川県横浜市).

土屋裕子, 小林憲弘, 高木総吉, 宮脇崇, 門上希和夫, 五十嵐良明: 水道原水・水道水中の 176 農薬の GC/MS スクリーニング分析による実態調査. 第 55 回全国衛生化学技術協議会年会 (2018.11.29 神奈川県横浜市).

高木総吉, 小林憲弘, 宮脇崇, 安達史恵, 吉田仁, 土屋裕子, 木下輝昭, 中川慎也, 梅津萌子, 仲野富美, 辻清美, 上村仁, 大窪かおり, 門上希和夫: 176 種農薬を対象とした GC-MS によるスクリーニング分析法の定量精度について. 第 55 回全国衛生化学技術協議会年会 (2018.11.30 神奈川県横浜市).

高木総吉: 質量分析計を用いた水質分析におけるターゲットスクリーニング分析法の適用について. 平成 30 年度市町村水道水質共同検査水質講演会 (2018.12.5 大阪府大阪市).

## F. 知的財産権の出願・登録状況

1. 特許取得  
(該当なし)

2. 実用新案登録  
(該当なし)

3. その他  
(該当なし)

## G. 謝辞

本研究課題の遂行に際しては, 表 A に示す研究協力者及びその所属組織より協力を頂いた. ここに記して謝す.

表 A

### < 微生物分科会 >

栗田 志広	神奈川県内広域水道企業団
大谷 喜一郎	特定非営利活動法人グリーンサイエンス 2 1
今井 美江	東京都水道局
中嶋 健二	浜松市上下水道部浄水課水質管理グループ
渡邊 洋大	神奈川県企業庁水道水質センター
植木 健一	新潟市水道局
浅野 峰子	横浜市水道局
中嶋 直樹	神奈川県衛生研究所
安藤 正典	水・環境分析技術支援ネットワーク
橋本 温	県立広島大学生命環境学部
大河内 由美	麻布大学生命環境科学部

子	
春日 郁朗	東京大学大学院工学研究科
白崎 伸隆	北海道大学大学院工学研究院
三浦 尚之	国立保健医療科学院
島崎 大	国立保健医療科学院
浅田 安廣	国立保健医療科学院
遠藤 卓郎	国立感染症研究所細菌第一部
田部井 由紀子	東京都健康安全研究センター

< 化学物質・農薬分科会 >

相澤 貴子	(公財)水道技術研究センター
鎌田 素之	関東学院大学理工学部
関川 慎也	八戸圏域水道企業団
三浦 晃一	仙台市水道局
浅見 真紀	茨城県企業局
石橋 美幸	千葉県水道局
笠原 典秀	神奈川県内広域水道企業団
高橋 英司	新潟市水道局
桐山 秀樹	奈良県水道局
谷口 佳二	神戸市水道局
友永 裕一郎	広島市水道局
井上 剛	福岡県南広域水道企業団
佐藤 学	神奈川県衛生研究所
成田 健太郎	株式会社 NJS 東部支社

< 消毒副生成物分科会 >

小牧 裕佳子	静岡県立大学
辻 正仁	東京都水道局
柴 雅彦	茨城県企業局
木村 直広	北千葉広域水道企業団
仲田 義信	川崎市上下水道局
船岡 英彰	京都市上下水道局
北本 靖子	大阪市水道局
孝石 健	大阪広域水道企業団
中村 英靖	阪神水道企業団
倉田 彰弘	奈良県水道局
塩川 敦司	沖縄県企業局
市川 豊	東京都水道局
清宮 佳幸	千葉県水道局
庭山 秀一	新潟市水道局

< リスク評価管理分科会 >

井上 薫	国立医薬品食品衛生研究所
------	--------------

	所
山田 隆志	国立医薬品食品衛生研究所
鈴木 俊也	東京都健康安全研究センター
西村 哲治	帝京平成大学
城島 光司	国立医薬品食品衛生研究所
江馬 眞	国立医薬品食品衛生研究所
長谷川 隆一	国立医薬品食品衛生研究所
小野 敦	国立医薬品食品衛生研究所
川村 智子	国立医薬品食品衛生研究所
山口 治子	国立医薬品食品衛生研究所
五十嵐 智女	国立医薬品食品衛生研究所
磯 貴子	国立医薬品食品衛生研究所
町田 高広	公益社団法人日本水道協会

< 水質分析法分科会 >

五十嵐良明	国立医薬品食品衛生研究所
内野 正	国立医薬品食品衛生研究所
土屋 裕子	国立医薬品食品衛生研究所
吉田 仁	地独)大阪健康安全基盤研究所
安達 史恵	地独)大阪健康安全基盤研究所
古閑 豊和	福岡県保健環境研究所
鈴木 俊也	東京都健康安全研究センター
小西 浩之	東京都健康安全研究センター
木下 輝昭	東京都健康安全研究センター
山崎 貴子	東京都健康安全研究センター
門上希和夫	北九州市立大学
大窪かおり	佐賀県衛生薬業センター
山田 早紀	佐賀県衛生薬業センター
上村 仁	神奈川県衛生研究所



仲野 富美	神奈川県衛生研究所
辻 清美	神奈川県衛生研究所
川元 達彦	兵庫県立健康生活科学研究所
井上 亘	兵庫県立健康生活科学研究所
栃本 なお子	兵庫県立健康生活科学研究所
鈴木 雅和	兵庫県立健康生活科学研究所
寺中 郁夫	埼玉県企業局水質管理センター
齋藤 賢知	埼玉県企業局水質管理センター
柿沼 良介	川崎市上下水道局
野村あづみ	川崎市上下水道局
林 幸範	横須賀市上下水道局
平林 達也	大阪市水道局工務部水質

	試験所
古川 浩司	一財)三重県環境保全事業団
中村 弘揮	一財)岐阜県公衆衛生検査センター
岩間 紀知	一財)岐阜県公衆衛生検査センター
粕谷 智浩	一財)千葉県薬剤師会検査センター
浴口 典幸	一財)千葉県薬剤師会検査センター
豊崎 緑	千葉県衛生研究所
横山 結子	千葉県衛生研究所
坂田 脩	埼玉県衛生研究所
渡邊 弘樹	埼玉県衛生研究所
大家 寿彦	横須賀市健康安全科学センター

