

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）
化学物質等の検出状況を踏まえた水道水質管理のための総合研究
令和2年度 分担研究報告書

－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
	松下 拓	北海道大学大学院工学研究院
	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
研究協力者	相澤 貴子	関東学院大学工学総合研究所
	鎌田 素之	関東学院大学理工学部理工学科
	関川 慎也	八戸圏域水道企業団水質管理課
	寺嶋 誠	仙台市水道局浄水部水質検査課
	神谷 航一	茨城県企業局水質管理センター
	木下 英二	千葉県企業局水道部水質センター
	今井 美江	東京都水道局水質センター
	藤巻志津恵	神奈川県内広域水道企業団技術部水質管理センター
	高橋 英司	新潟市水道局技術部水質管理課
	高林 泰斗	奈良県水道局水質管理センター
	宮田 雅典	大阪市水道局工務部水質試験所
	平林 達也	大阪市水道局工務部水質試験所
	山口 敏彦	神戸市水道局事業部水質試験所
	吉野 泰盛	広島市水道局技術部水質管理課
	佐藤 卓郎	福岡県南広域水道企業団浄水場水質センター
	小島 健司	沖縄県企業局水質管理事務所
	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
	成田健太郎	株式会社 NJS 東部支社東京総合事務所水道部

研究要旨：

令和元農薬年度（平成30年10月～令和元年9月）の農薬製剤出荷量は約22.2万tで昨年と比べ0.6%減少した。農薬の用途別農薬製剤出荷量は殺虫剤が71727t、殺菌剤が39741t、殺虫殺菌剤が16130t、除草剤が81570tであった。登録農薬原体数は令和元年9月現在596種類で、登録農薬製剤数は令和元年9月現在、殺虫剤が957、殺菌剤が794、殺虫殺菌剤が417、除草剤が1418で、合計は3859（前年比423件減）と大きく減少していた。個別の農薬原体について見ると令和元農薬年度出荷量が100t以上あった農薬原体は60原体であり、石灰窒素や消石灰等を除いた、水道水源で農薬として監視の必要性のある合成化学物質は48種であった。

令和元年度において、分科会に参画している全国10水道事業体（研究班）による農薬類の測定結果、および神奈川県衛生研究所が全国の10浄水場から提供を受けて分析を行った農薬類の測定結果（追加調査）を取りまとめた。研究班と追加調査の浄水場の原水、浄水での検出指標値の推移を比べると、原水では両調査の値に大きな違いは見られなかったが、浄水では研究班の調査の方が低い傾向を示した。

研究班による調査において、原水では115種、浄水では31種の農薬が検出された。用

途別に見ると、原水、浄水ともに除草剤が最も多かった。対象農薬リスト掲載農薬は、原水では64種、浄水では22種が検出された。Σ値の最大値は、原水が3.16、浄水が0.15であった。個別の農薬について見ると、最大検出濃度の場合、原水では13種の農薬が1 µg/Lを超過し、浄水ではプロモブチドが2.00 µg/Lと高い値を示した。検出率の場合、原水、浄水では、それぞれ26、6種の農薬で10%を超えていた。個別農薬評価値の場合、原水では、昨年度までの調査結果と同様に、テフリルトリオンが高い値を示した。浄水では、10農薬の最大個別農薬評価値が0.01以上であった。本年度の実態調査の傾向は、これまでの調査と大きな違いは見られなかった。しかし、イプフェンカルバゾンが浄水でも比較的高い濃度、頻度で検出され、Σ値への寄与も大きいことから分類の見直しが必要と考えられた。メタゾスルフロンのように一部の事業者で一定の濃度、頻度で検出されている農薬は、全国の実態を把握する必要があると考えられた。

水道事業の農薬類の測定実施の有無は、2009年度と2017年度で大きくは変わらなかった。農薬類の検査体制は、測定回数が少ない方が委託の割合が高く、測定回数が多い場合に自己検査の割合が増える傾向にあった。測定農薬類数と1試料あたりの検査料金には、必ずしも関連は認められなかった。

昨年度構築した代謝を考慮したChE活性阻害試験と、従来の代謝を考慮しないChE活性阻害試験を組み合わせ、2つの有機リン系農薬（ダイアジノンとメチダチオン）の塩素処理に伴う毒性変動と、毒性に寄与する物質を調べたところ、代謝の有無に関わらず、塩素処理試料のChE活性阻害性は、原体とオキソン体のみで説明ができることが分かった。すなわち、水質管理目標設定項目における対象農薬の取り扱い、ダイアジノン（原体とオキソン体が対象）については妥当であり、メチダチオン（原体のみが対象）は妥当ではないと判断された。よって、メチダチオンについては、オキソン体も測定対象とすることが提言された。

23浄水場でのPFASsの実態調査の結果、原水からは18種中9種が検出され、浄水からは21種中9種が検出された。PFBA、PFPeA、PFHxA、PFOAの4種は原水あるいは浄水での検出率が50%以上であった。原水、浄水ともにPFOAの濃度が最も高かった（それぞれ39.6、14.6 ng/L）。しかし、PFOAとPFOSの合計は、最大値は原水、浄水でそれぞれ41.5、14.6 ng/Lで、目標値（50 ng/L）を超える試料は無かった。

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した。

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。また、農薬類の検査体制について、水道統計を用いた解析、アンケート調査を行った。有機リン系農薬について、代謝を考慮した場合としない場合のコリンエステラーゼ（ChE）活性阻害試験を行い、毒性（ChE活性阻害性）に寄与する分解物の特定を試みた。

農薬類以外の化学物質として、有機フッ素

化合物（PFASs）を対象に、浄水場での実態調査を行った。

B. 研究方法

1) 農薬の出荷量に関する調査

農薬要覧 2020¹⁾に記載のある農薬製剤別出荷量情報と（独法）農林水産消費安全技術センター（FAMIC）が提供している農薬登録情報²⁾の農薬製剤別農薬原体含有率情報から、各都道府県における農薬原体出荷量の算出を行った。また、農林水産省が提供している農薬登録情報³⁾とFAMICが提供して失効農薬情報²⁾から新規登録された農薬と農薬登録が失効した農薬についても取りまとめた。

2) 全国水道事業者の農薬類実態調査結果のまとめ

分科会に参画している全国11水道事業者

(八戸圏域水道企業団、仙台市水道局、茨城県企業局、千葉県企業局、神奈川県内広域水道企業団、新潟市水道局、奈良県水道局、大阪市水道局、神戸市水道局、広島市水道局、福岡県南広域水道企業団)と神奈川県衛生研究所による農薬類の測定結果を取りまとめた。

3) 各水道事業体における農薬類実態調査

研究班の12水道事業体において、浄水場やその水源の農薬類の実態調査を行った。

4) 神奈川県内の水道水源河川の実態調査

直接注入-LC/MS/MS法を用い、神奈川県内の主要な水道水源河川である相模川と酒匂川について180種の農薬類(異性体、分解物等を含む)の実態調査を行った。採取地点は、相模川の中流～下流域の河川水10地点と相模川を原水とする水道水1地点、また酒匂川の中流～下流域の河川水7地点と酒匂川を原水とする水道水1地点とした。

5) 農薬類の検査体制の評価

水道統計により、2017年度の農薬類の測定回数や測定農薬類数を解析した。その結果を踏まえ、2017年度に農薬類を調査していた大臣認可の水道事業を対象に、2020年度の農薬類の検査体制についてアンケート調査を行った。

6) 代謝を考慮したChE活性阻害試験の構築とそれを用いた有機りん系農薬の塩素処理に伴い生成される毒性を誘発する物質の推定

(1) バッチ式塩素処理実験

ダイアジノンあるいはメチダチオン標準品を、10 mMのリン酸バッファー(pH 7.0)に30~40 μM程度になるように添加した。これらを、マグネティックスターラーにてひと晩攪拌した後にろ過(PTFE、φ=0.45 μm)し、未溶解の農薬を除去することにより試料を調整した。ここに、次亜塩素酸ナトリウムを添加し、20℃暗所にて塩素処理を行った。塩素処理過程にて経時的にサンプルを採取し、亜硫酸ナトリウムにて残留塩素を消去した。これらに代謝活性化を施した後、あるいは代謝活性化を施さずに、ChE活性阻害試験に供して毒性を評価するとともに、農薬原体とオキソンの濃度をLC/MSにて定量した。

(2) 代謝活性化

本研究では、Ames試験にて広く用いられ

る代謝活性化法⁴⁾をサンプルに適用した。前処理後のサンプルについて、後述のChE活性阻害試験に供するとともに、農薬原体とオキソンの濃度をLC/MSにて定量した。

(3) ChE活性阻害試験

Matsushita et al.⁵⁾の手法に微修正を加えた*in vitro*細胞非依存ChE活性阻害試験を行った。前処理後のサンプルのChE阻害性を、以下の式により算出した。

$$AAA = \frac{Ch_c - Ch_s}{Ch_c - Ch_b} \quad (1)$$

但し、AAA:ChE活性阻害性(anti-acetylcholine activity)、Ch_c:コントロールのコリン(Ch)濃度、Ch_s:サンプルのCh濃度、Ch_b:ブランクのCh濃度である。

①ChE活性阻害試験への代謝活性化の組み込み

薬物代謝酵素群(S9)は酵素であるため熱による失活を期待し、S9mixを加熱処理し、加熱処理後のS9mixと農薬の反応性を検討した。膜処理により、シトクロムP450と農薬類の分離を検討した。超遠心により、S9と農薬の分離を検討した。次に、超遠心が試料中の農薬濃度に影響を与えないことを確認した。さらに、超遠心によりS9mixが分離可能であることを、ChE様活性の観点から検討した。

②代謝を考慮したChE活性阻害試験によるダイアジノンとオキソンの毒性評価

段階的に希釈をしたダイアジノンとオキソンの水溶液を作製し、S9mix溶液と混合し、37℃にて20分間プレインキュベートした。この試料を遠心分離し、S9mixを分離除去した。この上清に、ChE(ヒト由来)を加え、37℃にて30分間プレインキュベートした。さらに、アセチルコリン溶液を加え、37℃にて2時間インキュベートした。その後、アセトニトリルで10倍希釈し、ChEの酵素反応を停止させ、試料中に遊離したChをLC-MSにより定量した。

7) 浄水場におけるPFASsの実態調査

2021年1月、全国23浄水場の原水、浄水について、21種のPFASs[ペルフルオロブタンスルホン酸(PFBS)、ペルフルオロペンタンスルホン酸(PFPeS)、ペルフルオロヘキサ

ンスルホン酸 (PFHxS)、ペルフルオロヘプタン
 スルホン酸 (PFHpS)、ペルフルオロオクタ
 スルホン酸 (PFOS)、ペルフルオロノナン
 スルホン酸 (PFNS)、ペルフルオロデカンス
 ルホン酸 (PFDS)、ペルフルオロドデカンス
 ルホン酸 (PFDoS)、ペルフルオロブタン酸
 (PFBA)、ペルフルオロペンタン酸 (PFPeA)、
 ペルフルオロヘキサン酸 (PFHxA)、ペルフル
 オロヘプタン酸 (PFHpA)、ペルフルオロオク
 タン酸 (PFOA)、ペルフルオロノナン酸
 (PFNA)、ペルフルオロデカン酸 (PFDA)、
 ペルフルオロウンデカン酸 (PFUdA)、ペルフル
 オロドデカン酸 (PFDoA)、ペルフルオロトリ
 ドデカン酸 (PFTTrDA)、ペルフルオロテト
 ラデカン酸 (PFTeDA)、ペルフルオロヘキサ
 デカン酸 (PFHxDA)、ペルフルオロオクタデ
 カン酸 (PFODA) の調査を行った。3 物質
 (PFDoS、PFHxDA、PFODA) は、原水の回
 収率試験の真度と回収率が低かったため、浄
 水のみを対象とした。23 浄水場のうち、1 浄
 水場は 2 種の原水について調査した。

研究班の 6 水道事業体において、浄水場や
 その水源の PFASs の実態調査を行った。

C. 研究結果および D. 考察

1) 農薬類の出荷量に関する調査

図 1 に、平成元年以降の用途別農薬製剤出
 荷量と登録農薬原体数の推移を示す。令和元
 農薬年度（平成 30 年 10 月～令和元年 9 月）
 の農薬製剤出荷量は約 22.2 万 t で昨年と比べ
 0.6% 減少した。¹⁾用途別農薬製剤出荷量は殺
 虫剤が 71727t、殺菌剤が 39741t、殺虫殺菌剤
 が 16130t、除草剤が 81570t であった。10 年
 前の平成 21 農薬年度と比べると殺虫剤 78%、
 殺菌剤 83%、殺虫殺菌剤 71%、除草剤 114%
 で、全体では 88% となっていた。

登録農薬原体数は令和元年 9 月現在 596 種
 類で、登録農薬原体数は平成 16 農薬年度以
 降、増加が続いている。図 2 に、平成元年以
 降の用途別農薬製剤出荷量と登録農薬原体数
 の推移を示す。登録農薬製剤数は令和元年 9
 月現在、殺虫剤が 957、殺菌剤が 794、殺虫殺
 菌剤が 417、除草剤が 1418 で、合計は 3859
 （前年比 423 件減）と大きく減少していた。

個別の農薬原体について見ると令和元農薬

年度出荷量が 100 t 以上あった農薬原体は 60
 原体であり、石灰窒素や消石灰等を除いた、
 水道水源で農薬として監視の必要性のある合
 成化学物質は 48 種であった。このうち、出荷
 量が 1,000 t 以上と特に多かった農薬原体は、
 D-D、クロルピクリン、グリホサートカリウ
 ム塩、ダゾメット、グリホサートイソプロピ
 ルアミン塩、マンゼブ、プロベナゾールの 7
 種であった。

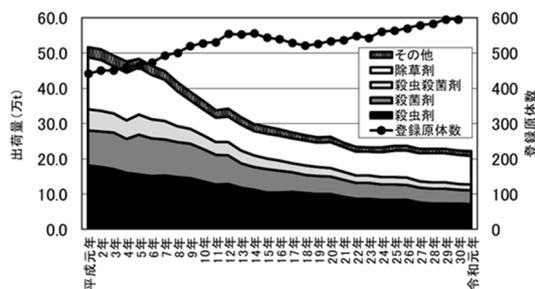


図 1 農薬製剤出荷量と登録原体数の推移

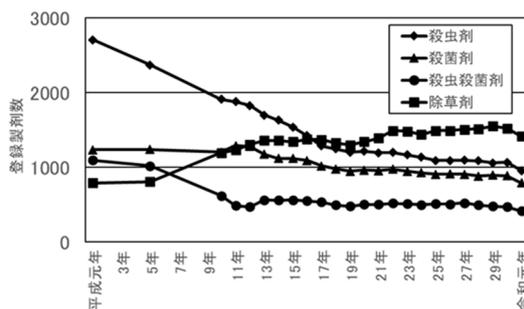


図 2 用途別登録農薬製剤数の推移

令和元農薬年度の出荷量が 10t 以上、前年
 比で 50% 以上出荷量が増加した農薬として
 16 農薬が該当した。特にトルプロカルブは平
 成 28 農薬年度、メタゾスルフロンは平成 25
 農薬年度、スルホキサフロルは平成 30 農薬年
 度、フルオピラムは平成 28 農薬年度、フルフ
 ェナセットは平成 27 農薬年度の出荷開始か
 ら数年度出荷量が急速に増加してきた農薬で
 あった。

以上より、農薬の出荷量は大きく変化して
 いないが、農薬原体数は引き続き増加傾向に
 あった。新規登録から数年が経過し出荷量
 が増加し監視の必要性が高まる可能性が高い農
 薬が散見される一方、これまで監視の必要性

の高かった農薬が失効する事例も確認され、農薬の出荷量を精査して、効率的なモニタリングを行う必要がある。なお、対象農薬リスト掲載農薬と要検討農薬の都道府県別および地域ブロック別の出荷量および出荷量を目標値で除した値については厚生労働省 医薬・生活衛生局 水道課 HP で掲載予定である。

2) 全国水道事業体の農薬類実態調査結果のまとめ

表1に、令和2年度の研究班による農薬類の実態調査結果の概要を示す。原水では115種、浄水では31種の農薬および分解物が検出された。用途別に見ると、原水、浄水ともに除草剤が最も多かった。対象農薬リスト掲載農薬は、原水では64種、浄水では22種が検出された。また、原水で検出された農薬のうち、未分類であったのはカルベンダジム(MBC)、クロラントラニリプロール、メタゾスルフロン、プロピリスルフロン、ピリミスルファン、ピリフタリド、フェノキサスルホン、メソトリオンであった。

原水の検出濃度は、13農薬の最大検出濃度が1 μ g/Lを超過し、未分類のメタゾスルフロン、グリホサートの分解物であるアミノメチルリン酸、要検討農薬であるイプフェンカルバゾンが含まれていた。浄水では、ブロモブチドが2.00 μ g/Lと高い値を示し、これ以外に8農薬が0.1 μ g/L以上であった。昨年と比べると検出濃度は全般に低い傾向にあったが、目標値が設定されていないカルベンダジムと未分類のメタゾスルフロンが上位にランクされていた。

検出率の場合、原水では、26農薬の検出率が10%を超過し、そのうち10農薬は検出率が20%を超過していた。メタゾスルフロン、プロピリスルフロン、ピリミスルファン、ピリフタリドは検出率が10%を超えているが測定を行っている事業体が限られていた。浄水では、6農薬の検出率が10%を超過しており、テフリルトリオンの分解物であるCMTBAが高い検出率は示していた。メタゾスルフロンも30%と高い値を示しているが前述の通り測定を実施している事業体は限られていた。

個別農薬評価値の場合、原水ではテフリルトリオンが高い値を示している。7農薬の最

大個別農薬評価値が0.1を超過した。浄水では、10農薬の最大個別農薬評価値が0.01以上であった。

検出指標値(Σ 値)の推移を見ると、最大値は、原水が3.16、浄水が0.15であった。原水で Σ 値が1を超えるケースが2回確認されたが、いずれも小河川においてテフリルトリオンを高濃度で検出されたことに起因していた。このような例を除くと、 Σ 値は概ね0.5を下回っていた。浄水の Σ 値もこれまでと比べて低い値で推移していた。

以上より、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。しかし、イプフェンカルバゾンは浄水でも比較的高い濃度、頻度で検出され、 Σ 値への寄与も大きいことから分類の見直しが必要と考えられた。これ以外にもメタゾスルフロンのように一部の事業体で一定の濃度、頻度で検出されている農薬は、全国の実態を把握する必要があると考えられた。

表1 令和2年度の研究班による農薬類実態調査結果の概要

	原水	浄水	
測定農薬	246	243	
検出農薬	115	31	
用途	除草剤	57	17
	殺虫剤	27	3
	殺菌剤	21	8
	分解物	10	2
	対象	64	22
分類	要検討	9	1
	その他	18	2
	除外	6	1
	未分類	8	2
検出濃度	ブロモブチド 6.70	ブロモブチド 2.00	
個別農薬評価値	テフリルトリオン 2.25	クロルニトロフェン(CNP) 0.06	
検出率(%)	メタゾスルフロン 69.2	テフリルトリオン代謝物 61.5	
検出指標値	3.16	0.15	

3) 各水道事業体における農薬類実態調査

八戸圏域広域水道企業団では、白山浄水場の馬淵川系原水、新井田川系原水、白山浄水場浄水について、73種の農薬類を調査した。原水では馬淵川系で21種、新井田川系で17種の農薬類が検出された。浄水からはブロモブチド、ブロモブチドデブromo、ベンタゾンが検出され、ほぼ例年同様の検出状況であった。馬淵川系原水での Σ 値の最高は、採水前日の降雨の影響もあり0.099と過去5年で最高であった。新井田川系原水での Σ 値の最高

は 0.060 であった。このときテフリルトリオン、ピラクロニル、フィプロニル、プロモブチドによる寄与が大きかった。浄水のΣ値の最高は 0.005 であった。

仙台市水道局では、89 種の農薬類について調査した。調査対象農薬類のうち、14 種が検出された。最大個別農薬指標値が 0.01 を超えた農薬は、原水ではプレチラクロール、ピラクロニル、テフリルトリオンが該当したが、浄水で該当するものはなかった。Σ 値について見ると、原水では 5 月の福岡浄水場原水で最も高く 0.26 で、主にテフリルトリオンが原因であった。浄水では 5 月の福岡浄水場浄水で最も高く Σ 値 0.02 で、主にピラクロニルやプレチラクロールが原因であった。茂庭浄水場浄水の Σ 値は、調査期間を通じ管理目標である Σ 値 0.05 を常に下回っていた。

茨城県企業局では、10 浄水場を対象に、110 種の農薬について測定を行った。原水では、全地点で農薬が検出され、1 地点あたりの検出項目数は河川系で最大 19 項目、湖沼系で最大 5 項目となった。検出頻度が比較的高い項目は、シメトリン、テフリルトリオン、ピロキロン、プロモブチドであった。最大の個別指標値を示した農薬はテフリルトリオン(6 月 9 日の涸沼川取水場で 0.48) であった。浄水では、河川系全ての浄水場でプロモブチドが検出され、最大濃度は 0.21 μg/L であった。検出指標値は、4 月の水戸、涸沼川浄水場を除く浄水場で 0.02 であった。

千葉県企業局では、127 種の農薬類について調査した。江戸川の矢切取水場(ちば野菊の里浄水場及び栗山浄水場原水)からは、テフリルトリオン、ピラクロニルの 2 種類が検出され、最大個別農薬評価値はテフリルトリオンの 0.1 であった。印旛沼の印旛取水場(柏井浄水場東側施設原水)からは、MCPA、キノクラミン(ACN)、テフリルトリオン、ピラクロニル、プロモブチドの 5 種類が検出され、最大個別農薬評価値はテフリルトリオンの 0.45 であった。利根川の木下取水場(柏井浄水場西側施設、北総浄水場原水)からは、テフリルトリオン、ピラクロニル、プロモブチドの 3 種類が検出され、最大個別農薬評価値はテフリルトリオンの 0.15 であった。高滝ダ

ム湖の高滝取水場(福増浄水場原水)からは、ピラクロニルが検出され、最大個別農薬評価値は 0.01 であった。なお、各浄水場浄水における農薬類検出状況は、いずれも最大個別農薬評価値 0.01 未満であった。

東京都水道局では、利根川・荒川水系、多摩川水系、相模川水系の 8 浄水場の原水、浄水について、84 種の農薬類の調査を行った。検出された農薬は 7 種で、全て除草剤であった。検出された地点は、江戸川水系、荒川水系の原水(金町、三郷、朝霞、三園、東村山 1 急系)のみであった。浄水では、全ての浄水場において、全て不検出であった。検出された農薬のうち、個別農薬評価値が 1%を超えて検出されたのはテフリルトリオン、ピラクロニル、モリネートであった。その中で、評価値が最も高かったのはテフリルトリオンで、朝霞浄水場原水では 6 月に 20%を超えていた。

神奈川県内広域水道企業団では、水源、原水、浄水について、144 種の農薬類を測定した。原水で検出されたのは 14 項目で、濃度が高かったものはプロモブチド(0.6 μg/L)であった。また、最大個別農薬指標値が高かったものはテフリルトリオン(0.125)、キノクラミン(0.060)であった。浄水で検出されたのはダラポン(0.3 μg/L)、プロモブチド(0.1 μg/L)であった。酒匂川系原水における Σ 値の最大値は 0.149、相模川系原水の最大値は 0.053 であった。一方、浄水の Σ 値の最大値は、酒匂川系が 0.004、相模川系が 0.001 であり、酒匂川系はダラポン、相模川系はプロモブチドの検出が主な要因であった。

新潟市水道局では、5 浄水場と水源河川を対象に、31 種の農薬類について調査を行った。Σ 値の推移を見ると、4 月下旬から西川水系、阿賀野川水系での検出がみられ、全体的に 6 月上旬で検出ピークとなっていた。7 月の下旬まで緩やかな下降線を示し、その後は不検出となった。Σ 値の最大は、6 月上旬の阿賀野川水系の河川水で 0.36 であった。全水系の河川水でテフリルトリオンが検出され、Σ 値に占める割合は最も大きかったが、塩素処理により分解されるため浄水では検出されなかった。イプフェンカルバザンも全水系で検出され、信濃川水系、西川水系、阿賀

野川水系の浄水でも検出された。また、執行農薬であるクロロニトロフェンの検出がみられた。信濃川水系では5月から9月にかけて複数回検出された。

大阪市水道局では、淀川本川8地点、淀川支川5地点、柴島浄水場、庭窪浄水場、豊野浄水場の各原水と浄水について、114種の農薬類と酸化物等を測定した。原水で個別農薬評価値の1%を超過して検出した農薬は、14物質であった。テフリトリオンは、最大で個別農薬評価値の34%で検出された。浄水で目標値の1%を超過して検出した農薬はなかった。

奈良県水道局では、137種の農薬を測定した。桜井浄水場の原水では、26種の農薬が検出された。Σ値の最高は、6月15日、6月22日、6月29日、7月27日、8月11日、8月17日および8月24日の0.02で、直近の5ヶ年では最も低かった。浄水では4種の農薬が検出された。Σ値は、調査期間を通じて0.01未満であった。

神戸市水道局では、水源10地点、千刈浄水場の原水、浄水を対象に、114種の農薬類を測定した。検出された農薬は、テフリトリオンやイプフェンカルバゾン、ピラクロニルなどの除草剤の比率が高く、次いで、フィプロニルやプロモブチドなどの殺虫剤であった。最も検出の回数が多かったのはテフリトリオンで、各地点合計19回の検出であった。目標値を超えて検出されたのは水源での1回だけであったが、他の水源からも目標値の95%で検出された。浄水場の原水では、7月までテフリトリオンが検出されたが、目標値の5%程度であった。浄水からの農薬の検出は一年を通じなかった。

広島県水道局では、高陽・緑井浄水場の原水、浄水について、103種の農薬類を調査した。原水で10農薬、浄水で4農薬が検出された。個別の農薬項目で指標値が0.01以上となったのは、原水におけるテフリトリオンのみで最大0.105であった。Σ値の最大は原水0.118(高陽5月18日)、浄水0.007(緑井6月4日)であった。

福岡県南広域水道企業団では、104種の農薬について測定した。荒木浄水場の原水から

56種の農薬が検出された。Σ値の最高値は6月9日の試験の0.125(前年度:0.29)で、テフリトリオンの影響によるものであった。浄水では、Σ値の最高値はMCPA(除草剤)、2,4-D(除草剤)の影響により、4月14日の0.0068(前年度:0.0043)で、平均では0.0010(前年度:0.0005)であった。

4) 神奈川県内の水道水源河川の実態調査

2020年4月下旬より12月下旬までの実態調査において、相模川の原水からは39種類、水道水からは6種類の農薬類が、酒匂川の原水からは27種類、水道水からは9種類の農薬類が検出された。全体的な傾向として、検出率、検出濃度の最大値共に相模川水系の方が高くなる傾向がみられた。

5) 農薬類の検査体制の評価

2017年度において、原水、浄水を測定した水道事業の割合はそれぞれ44%と29%、原水、浄水のいずれかで農薬類を測定した水道事業は55%であった。2009年度と2017年度では、水道事業数や対象農薬数は異なるが、検査状況は変わっていないことが示された。2017年度において、測定回数が1回である水道事業が最も多く358であった。原水で、測定回数が年1回の水道事業のうち、20%が全項目を測定していた。また、浄水でも測定回数が年1回の水道事業が最も多かった。

農薬類の検査実施機関についてアンケートしたところ、回答のあった202水道事業のうち、91水道事業で農薬類の自己検査を行っていた(そのうち、34は他の選択肢も回答)。2水道事業では、農薬類の測定は行っていなかった。2017年度の情報を元に、2020年度の状況を調査したためであった。農薬類の測定回数と検査体制の関係を見たところ、測定回数が少ない方が、20条分析機関への委託の割合が高く、測定回数が増えるにつれて自己検査の割合が高いことが示された。

20条分析機関に委託していると回答した水道事業のうち(複数回答であった場合を含む)、1回あたりの検査料金の回答があった機関は120であった。原水または浄水の料金として回答した機関はその値を、原水と浄水の料金を回答した機関は、その半分の料金を採用し、1試料あたりの料金として評価したと

ころ、測定農薬類数は異なるが、10,875～1,126,800 円の範囲であった。測定農薬数と1試料あたりの検査料金の関係について見たところ、両者の間に関連性は認められず、検査料金は必ずしも測定農薬類数に依存しないと考えられた。

6) 代謝を考慮した ChE 活性阻害試験の構築とそれをを用いた有機りん系農薬の塩素処理に伴い生成される毒性を誘発する物質の推定

(1) ダイアジノンについての検討

①ダイアジノンとオキソン体の ChE 活性阻害性

ダイアジノン原体は、代謝を考慮しない ChE 活性阻害性試験では毒性を誘発しなかったが、代謝を施した後に ChE 活性阻害性試験に供すると、用量依存的に毒性が誘発された。一方、ダイアジノンのオキソン体は、代謝を考慮しない ChE 活性阻害性試験にて毒性を誘発した。このように、代謝により、ダイアジノンの毒性は大きく増加し、オキソン体の毒性はいくぶん減少した。すなわち、従来の、代謝を考慮しない *in vitro* の細胞非依存性 ChE 活性阻害試験でのみ毒性を評価することは不十分であり、代謝を考慮した毒性試験も行い、その結果を総合して毒性評価をすることが重要であると提言された。

今後、本研究では、代謝を施した後に ChE 活性阻害試験を行った際に誘発された毒性を「間接毒性」、代謝を施さずに ChE 活性阻害試験を行った際に誘発された毒性を「直接毒性」と呼ぶ。

②塩素処理に伴う毒性変動

②-1 直接毒性

ダイアジノンは塩素と速やかに反応し、10分の接触時間で完全に消失し、一部はオキソン体へと変換された。

ダイアジノン水溶液は、塩素処理前には、直接毒性を誘発しなかったが、塩素添加後は、誘発するようになった。オキソン体は直接毒性を誘発することが示されているため、塩素処理試料で誘発された直接毒性に寄与する可能性が高いと推察された。しかし、ダイアジノンのオキソン体の変換率は最大0.63であり、少なくとも残りの0.37は、他の分解物へと変換されたと判断された。実際、塩素処理試料

中には、2-イソプロピル-6-メチル-ピリミジン-4-オール (IMP)、リン酸ジエチル、リン酸ジメチルが検出されていた。これら3種の分解物の標準品を用い、ChE 活性阻害試験により直接毒性を評価した。その結果、これら3種の分解物は、0.1～10 μM の濃度範囲では、直接毒性を誘発しないことがわかった。塩素処理試料には、同定された4種の分解物以外に、未検出・未同定の分解物が存在し、これらが直接毒性を誘発している可能性も考えられた。

②-2 間接毒性

直接毒性とは異なり、塩素処理前のダイアジノン水溶液は、間接毒性を誘発した。この間接毒性は、ダイアジノン由来であると推察された。また、塩素処理に伴い、誘発された間接毒性は緩やかに減少したため、少なくともダイアジノンの一部は、塩素処理により、間接毒性を誘発する分解物へと変換されることがわかった。塩素処理により生成されたダイアジノンオキソンは間接毒性を誘発するため、塩素処理試料にて観察された間接毒性に寄与する可能性が高いと推察された。一方で、それ以外の3種の分解物は、間接毒性を示さなかったため、これら以外の未検出・未同定の分解物が間接毒性に寄与する可能性は否定できない。

③塩素処理試料が誘発した毒性に寄与する分解物の推定

各塩素処理試料中のオキソン体濃度から、オキソン体の用量-反応関係を用い、その試料に含まれるオキソン体が誘発する毒性を算出した。一方、塩素処理前試料中にはダイアジノンのみが含まれるため、同様の手法により、ダイアジノン由来の毒性を算出した。

まず、塩素処理前試料に含まれるダイアジノン濃度では、直接毒性が誘発されないと算定された。次に、いずれの塩素処理試料についても、塩素処理試料にて観察された直接毒性と、試料中のオキソン体濃度から算出した直接毒性が概ね一致した。すなわち、塩素処理試料が誘発した直接毒性は、オキソン体のみで説明できることが示された。加えて、オキソン体以外の分解物（同定された3種も、それ以外の未検出・未同定の分解物も）は、直接毒性に寄与しないことがわかった。

塩素前試料にて誘発された間接毒性は、試料中のダイアジノン濃度から算定した値と概ね一致し、塩素前試料が誘発する間接毒性は、ダイアジノンのみで説明できることがわかった。さらに、塩素処理試料にて誘発された間接毒性は、試料中のオキソン体濃度から算定した値と概ね一致した。また、オキソン体以外の分解物は、試料が誘発した間接毒性に寄与しないこともわかった。

以上より、塩素処理前後のダイアジノン水溶液が誘発する直接毒性も間接毒性も、試料中のダイアジノンとオキソン体でのみ説明することができ、オキソン体以外の分解物は毒性に寄与しないことがわかった。したがって、現行の水質管理目標設定項目の農薬類におけるダイアジノンの取り扱い、「オキソン体の濃度も測定し、原体の濃度と、オキソン体濃度を原体に換算した濃度を合計して算出する」という方法は妥当で、オキソン体以外の分解物を測定する必要はないと判断された。

④代謝により生成された間接毒性に寄与する代謝物の推定

ダイアジノンとオキソン体の間接毒性の用量-反応関係は概ね一致したことから、代謝により、ダイアジノンとオキソン体が共通の代謝物へと変換され、その代謝物が毒性を誘発しているのではないかと考えた(図3)。ダイアジノン標準品とオキソン体標準品に代謝を施した試料をLC/MS(ポジティブイオンモード)に供し、トータルイオンクロマトグラムを比較した。いずれの試料にも、いくつかのピークが確認されたが、コントロール(リン酸バッファーとS9mixを混合し、インキュベーションしたもの)には存在せず、ダイアジノンとオキソン体の代謝後サンプルにのみ共通して存在したピークが2つあることがわかった。このうち、一方はIMP(LC保持時間7分頃のピーク#1)であった。

一方、LC保持時間9分頃のピーク#2では、ダイアジノンとオキソン体の代謝後サンプルにおけるピーク#2の面積値と、これらの試料の毒性の間に相関があり、また、ダイアジノンとオキソン体で同一曲線に乗ることがわかった。さらに、代謝後の塩素処理試料中のピーク#2の面積値とこの図から、塩素処理試料

中にてピーク#2として検出された代謝物が誘発すると期待される毒性を算出し、それらを塩素処理試料にて観察された間接毒性と比較したところ、いずれの試料も概ね一致することがわかった。以上より、ピーク#2として検出された代謝物が、毒性を誘発する可能性が高いと判断された。

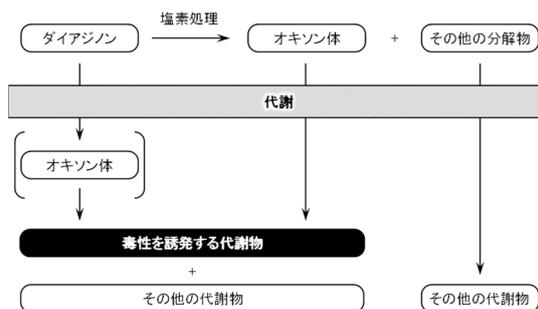


図3 塩素処理と代謝によるダイアジノンの推定変換経路

そこで、この物質の推定を試みた。まず、LC/MSによりポジティブイオンモードで精密質量を測定したところ、ピーク#2の m/z は305.1256であった。この精密質量を基に、質量精度3ppm以内で分子式を予測したところ、 $C_{12}H_{22}O_5N_2P$ (理論的 m/z , 305.1261; 質量誤差, -1.6ppm)であると判断された。よって、ピーク#2として検出された代謝物の分子式は $C_{12}H_{21}O_5N_2P$ であると考えられた。ここで、オキソン体の分子式から、この代謝物は、代謝によりオキソン体が酸素原子が1つ付加された(酸化された)ものであると想像し得た。ベンゼン環が開裂しないとの仮定の下、オキソン体に酸素原子が1個付加された構造として、6種(S11a~f)の構造が考えられた。

次に、構造を決定するため、異なる衝突エネルギー(10、30、50 eV)にてピーク#2をMS/MS分析し、得られたマススペクトルを、異なるアルゴリズムをもつ2種のフラグメント解析ソフトウェアを用いて分析した。その結果、S11a~dの4つの構造では、全てのフラグメントイオン(16イオン)に対して親イオンからの生成が説明できたのに対し、S11eとS11fの2つの構造では3つのフラグメントイオンの生成が説明できなかった。よって、

後者2つの構造を、ピーク#2として検出された代謝物の構造候補から外すこととした。

体内での物質酸化への貢献が最も大きい酵素はシトクロム P450 (CYP) であり、本研究で用いた S9 は、CYP が存在するミクロソーム画分を含む。したがって、この毒性代謝物の生成の原因となるオキソン体への 1 酸素付加は、CYP によるものであると考えることができる。そこで、残された候補をさらに絞り込むために、CYP による代謝部位を予測する 4 つの異なる *in silico* ツール (FAME 2、<https://nerdd.zbh.uni-hamburg.de/glory/> ; RS-WebPredictor、<http://reccr.chem.rpi.edu/Software/RS-WebPredictor/> ; SMARTCyp、https://smartcyp.sund.ku.dk/mol_to_som ; SOMP、<http://www.way2drug.com/SOMP/>) を用いて、オキソン体において最も 1 酸素付加が生じる可能性の高い部位の推定を試みた。それぞれのツールで、可能性の高い順に部位をランク付けし、ランキングの平均値が小さい部位に 1 酸素付加が生じる可能性が高いと判断した。なお、RS-WebPredictor、SMARTCyp、SOMP では、それぞれ CYP の 9 つ、3 つ、5 つのアイソザイムの平均値をランキング値とした。その結果 (表 2)、S11a と S11c のランキング値より、S11b と S11d のランキング値の方が小さかった。すなわち、残された 4 つの構造 (S11a~d) のうち、S11b と S11d が、オキソン体の 1 酸素付加により生成される可能性が高いと判断された。以上より、ダイアジノンの

の塩素処理試料から代謝により生成される ChE 活性を阻害する代謝物は、S11b (6-(hydroxymethyl)-2-(propan-2-yl) pyrimidin-4-yl phosphate) あるいは S11d (diethyl 2-(2-hydroxypropan-2-yl)-6-methyl pyrimidin-4-yl phosphate) である可能性が高いと推察された。これら 2 つの代謝物は、動物体内におけるダイアジノンの代謝実験でも生成の報告があり⁶⁾、後者は *in vitro* 代謝実験でも生成の報告がある⁷⁾。なお、これらの物質は生体内での代謝後に生成される物質であり、(おそらく) 水道水中には存在しないと考えられるため、水質管理目標設定項目における対象農薬 (の分解物) に追加する必要はないと判断された。

(2) メチダチオンについての検討

①メチダチオンとオキソン体の ChE 活性阻害性

メチダチオン原体は、代謝を考慮しない ChE 活性阻害性試験では毒性を誘発しなかったが、代謝を施した後に ChE 活性阻害性試験に供すると、用量依存的に毒性が誘発された。一方、メチダチオンのオキソン体は、代謝を考慮しない ChE 活性阻害性試験にて毒性を誘発した。代謝を施してもオキソン体は毒性を誘発したが、代謝なしと比較すると、その毒性はいくぶん減少した。

②塩素処理に伴う間接毒性の変動

メチダチオンは塩素と速やかに反応し、20 分の接触時間で完全に消失し、これにともない、オキソン体が生成されたが、その後の塩素処理の延長 (4 日間) により減少した。

表 2 4 つの *in silico* 代謝部位予測ツールを用いた毒性代謝物候補のランキング

	S11a	S11b	S11c	S11d
FAME 2	2	3	4	1
RS-WebPredictor	2.3	1.0	2.9	2.9
SMARTCyp	3.7	1.0	3.3	2.0
SOMP	3.4	1.6	3.4	1.6
平均ランキング	2.9	1.7	3.4	1.9

一方、塩素処理前のメチダチオン水溶液は、間接毒性を誘発した。塩素処理前のメチダチオン溶液には、メチダチオンのみが含まれていたことに加え、メチダチオンは間接毒性を誘発することから、この間接毒性は、メチダチオン由来であると推察された。また、20分間の塩素処理により間接毒性は増加した。すなわち、塩素処理により、少なくともメチダチオンの一部が間接毒性を誘発する分解物へと変換されたと考えられた。塩素処理により生成されたメチダチオンオキソンは間接毒性を誘発するため、塩素処理にともない増加した間接毒性に寄与する可能性が高いと推察された。しかしながら、塩素処理20分間におけるメチダチオンのオキソン体への変換率は40%であったため、オキソン体以外の分解物が生成されたと考えられた。また、20分の塩素処理により増加した間接毒性は、その後4日間の塩素処理により減少した。

③塩素処理試料が誘発した間接毒性に寄与する分解物の推定

塩素前試料にて誘発された間接毒性は、試料中のメチダチオン濃度から算定した値と概ね一致した。すなわち、塩素前試料が誘発する間接毒性は、メチダチオンのみで説明できることがわかった。さらに、塩素処理試料にて誘発された間接毒性は、試料中のオキソン体濃度から算定した値と概ね一致した。すなわち、塩素処理試料が誘発する間接毒性は、オキソン体のみで説明できることが示された。また、オキソン体以外の分解物は、試料が誘発した間接毒性に寄与しないこともわかった。

一方、既に我々は、塩素処理にともなうメチダチオンの直接毒性の変動について調べており、塩素処理試料が直接毒性を誘発することと、誘発された直接毒性は、塩素処理により生成されたオキソン体のみで説明ができることを報告している^{5,8)}。

以上より、塩素処理前後のメチダチオン水溶液が誘発する直接毒性も間接毒性も、試料中のメチダチオンとオキソン体でのみ説明することができ、オキソン体以外の分解物は毒性に寄与しないことが分かった。したがって、現行の水質管理目標設定項目の農薬類におけるメチダチオンの取り扱い、すなわち、「メチ

ダチオンのみを測定対象とする」ことは妥当ではなく、「オキソン体の濃度も測定し、原体の濃度と、オキソン体濃度を原体に換算した濃度を合計して算出する」という枠組みにすべきであると提言された。

④代謝により生成された間接毒性に寄与する代謝物の推定

毒性に寄与する代謝物を調べるため、代謝後の塩素処理試料をLC/MSにて分析したところ、これらの試料からいずれもオキソン体が検出された。塩素処理前のメチダチオン濃度に対する、これらの残存オキソン体濃度は極めて小さく、最大でも0.15%程度であったが、これらの残存オキソン体がChE活性を阻害していた可能性が考えられた。そこで、各サンプル中のオキソン体濃度と、オキソン体の用量-反応関係より、各サンプル中のオキソン体が誘発すると期待されるChE活性阻害性を算出したところ、塩素処理試料が誘発した間接毒性と（いくぶん大きい）ほぼ同程度であることがわかった。すなわち、ダイアジノンのケースとは異なり、代謝後のメチダチオン塩素処理試料（あるいは塩素処理前試料）で観察されたChE活性阻害性は、代謝後も残存していたオキソン体由来であると示唆された。

7) 浄水場におけるPFASsの実態調査

23浄水場でのPFASsの実態調査の結果、原水からは18種中9種が検出され、浄水からは21種中9種が検出された。PFBA、PFPeA、PFHxA、PFOAの4種は原水あるいは浄水での検出率が50%以上であった。原水、浄水ともにPFOAの濃度が最も高かった（それぞれ39.6、14.6 ng/L）。しかし、PFOAとPFOSの合計は、最大値は原水、浄水でそれぞれ41.5、14.6 ng/Lで、目標値（50 ng/L）を超える試料は無かった。

原水と浄水を比べると濃度はほとんど変わらない場合が多かったが、粒状活性炭処理や粉末活性炭処理を行っているところでは、浄水中の濃度が低下した。ただし、生物活性炭処理のところ、注入率が高くはない粉末活性炭処理のところでは濃度はあまり変わらなかった。

千葉県企業局では、6浄水場の原水と浄水

ついて、21種のPFASsを測定した。原水からは、PFBA、PFPeA、PFHxA、PFHpA、PFOA、PFNA、PFBS、PFHxS、PFOSの計9物質が検出され、浄水からは、上記9物質のうちPFHxS、PFOSを除く7物質が検出された。原水の総PFASs濃度は19～92 ng/L、浄水の総PFASs濃度は9～35 ng/Lであり、PFBA、PFHxA、PFOAが高い割合であった。

東京都水道局では、11浄水場の原水、浄水、給水について、PFOS、PFOAを測定した。表流水系の浄水場では、原水、浄水ともに全ての箇所定量下限(5 ng/L)未満であった。一方、伏流水系の砵浄水場、砵下浄水所では、14～25 ng/Lで検出された。給水の場合、ほとんどの地点で定量下限(5 ng/L)未満であり、最大でも7 ng/Lであった。定量下限以上で検出された地点は砵浄水場、砵下浄水所の系統の地点であるが、いずれも他の浄水場の浄水と混合されて配水されており、PFOS、PFOA濃度は低い値に抑えられていた。

神奈川県内広域水道企業団では、3原水、4給水について、PFOS、PFOAを測定した。原水の一つ(社家吸水井)から、PFOSが過去最大の31 ng/L検出された。

大阪市水道局では、8水源、3浄水場の原水と浄水について、12種のPFASsを測定した。9種のPFASsが検出され、PFOAの濃度が最も高かった(原水(豊野浄水場、1月15日):15 ng/L、浄水(庭窪浄水場、7月1日):15 ng/L)。

神戸市水道局では、6水源、4原水、11浄水(受水点含む)について、PFOS、PFOAを測定した。原水の場合、PFOS、PFOAの合計値の最大は、奥平野浄水場系で8 ng/L(PFOS:2 ng/L、PFOA:6 ng/L)、本山浄水場系で9 ng/L(PFOS:2 ng/L、PFOA:7 ng/L)であった。浄水の場合、PFOS、PFOAの合計値の最大は、奥平野浄水場系で7 ng/L(PFOS:1 ng/L、PFOA:6 ng/L)、本山浄水場系で5 ng/L(PFOA:5 ng/L)であった。受水点では、PFOS、PFOAの合計の最大は、阪神水道系(琵琶湖・淀川水系)で14 ng/L(PFOS:3 ng/L、PFOA:11 ng/L)、その他受水系で6 ng/L(PFOS:3 ng/L、PFOA:3 ng/L)であった。

沖縄県企業局では、北谷浄水場および各水

源においてPFOS+PFOA、PFHxS濃度を調査した。また、比謝川では支流の大工廻川でのPFOS濃度が特に高いため、河川のいくつかの地点でも調査を行った。令和2年度の沖縄地方は平年に比べ多くの降水があり、北谷浄水場では中部河川からの取水を抑制し北部地域のダムからの取水を主とする水運用を長期的に実施できたため、北谷浄水場原水のPFOSとPFOA合計値は平均12 ng/Lとなった。比謝川では、取水ポンプ場で平均142 ng/L(PFOS+PFOA合計値、以下同じ)、支流大工廻川で平均335 ng/L、大工廻川流入前の地点2で平均24 ng/Lとなった。長田川では平均14 ng/Lと低い値となったが、下流で比謝川と接続していることから、河川流量の低下時には比謝川の水が回り込み、最大値は154 ng/Lであった。

E. 結論

1) 令和元農薬年度の農薬製剤出荷量は約22.2万tで昨年と比べ0.6%減少した。登録農薬原体数は令和元年9月現在596種類で、登録農薬原体数は平成16農薬年度以降、増加が続いている。登録農薬製剤数は令和元年9月現在、殺虫剤が957、殺菌剤が794、殺虫殺菌剤が417、除草剤が1418で、合計は3859(前年比423件減)と大きく減少していた。

2) 令和2年度の研究班による農薬類の実態調査の結果、原水では115種、浄水では31種の農薬とその分解物が検出された。用途別に見ると、原水、浄水ともに除草剤が最も多かった。対象農薬リスト掲載農薬は、原水では64種、浄水では22種が検出された。Σ値の最大値は、原水が3.16、浄水が0.15であった。個別の農薬について見ると、最大検出濃度の場合、原水では13種の農薬が1 µg/Lを超過し、浄水ではプロモブチドが2.00 µg/Lと高い値を示した。検出率の場合、原水、浄水では、それぞれ26、6種の農薬で10%を超えていた。個別農薬評価値の場合、原水では、昨年度までの調査結果と同様に、テフリルトリオンが高い値を示した。浄水では、10農薬の最大個別農薬評価値が0.01以上であった。

3) 本年度の実態調査の傾向は、これまでの調査と大きな違いは見られなかった。しかし、

イプフェンカルバゾン は浄水でも比較的高い濃度、頻度で検出され、Σ値への寄与も大きいことから分類の見直しが必要と考えられた。メタゾスルフロンのように一部の事業者で一定の濃度、頻度で検出されている農薬は、全国の実態を把握する必要があると考えられた。

4) 水道事業の農薬類の測定実施の有無は、2009年度と2017年度で大きくは変わらなかった。農薬類の検査体制は、測定回数が少ない方が委託の割合が高く、測定回数が多い場合に自己検査の割合が増える傾向にあった。測定農薬類数と1試料あたりの検査料金には、必ずしも関連は認められなかった。

5) これまでの代謝を考慮しないChE阻害試験と代謝を考慮したChE活性阻害試験を組み合わせた評価の結果、現行の水質管理目標設定項目におけるダイアジノンの取り扱いが妥当であり、その他の分解を測定項目に組み込む必要はないと提言された。一方、メチダチオンの取扱いは妥当でなく、メチダチオンに加えてオキソン体も測定項目に組み込む必要があり、それ以外の分解物は組み込む必要はないと提言された。

6) 23浄水場でのPFASsの実態調査の結果、原水からは18種中9種が検出され、浄水からは21種中9種が検出された。PFBA、PFPeA、PFHxA、PFOAの4種は原水あるいは浄水での検出率が50%以上であった。原水、浄水ともにPFOAの濃度が最も高かった(それぞれ39.6、14.6 ng/L)。しかし、PFOAとPFOSの合計は、最大値は原水、浄水でそれぞれ41.5、14.6 ng/Lで、目標値(50 ng/L)を超える試料は無かった。

F. 参考文献

- 1) (社)日本植物防疫協会. 農薬要覧2020年—令和元年農薬年度—. (社)日本植物防疫協会, 東京, 2020.
- 2) (独法)農林水産消費安全技術センター(FAMIC). 農薬登録情報. <http://www.acis.famic.go.jp/ddata/index.htm>
- 3) 農林水産省. 農薬の審査報告書. https://www.maff.go.jp/j/nouyaku/n_sinsa/index.html
- 4) Maron, D. M. and Ames, B. N. Revised methods

for the *Salmonella* mutagenicity test. Mutation Research/Environmental Mutagenesis and Related Subjects, 1983, 113, 173–215.

- 5) Matsushita, T., Fujita, Y., Omori, K., Huang, Y., Matsui, Y., and Shirasaki, N. Effect of chlorination on anti-acetylcholinesterase activity of organophosphorus insecticide solutions and contributions of the parent insecticides and their oxons to the activity. *Chemosphere*, 2020, 261, 127743.
- 6) Machin, A. F., Rogers, H., Cross, A. J., Quick, M. P., Howell, L. C., and Janes, N. F. Metabolic aspects of the toxicology of diazinon. I. Hepatic metabolism in the sheep, cow, pig, guinea-pig, rat, turkey, chicken and duck. *Pesticide Science*, 1975, 6, 461–473.
- 7) Shishido, T. and Fukami, J. Enzymatic hydrolysis of diazoxon by rat tissue homogenates. *Pesticide Biochemistry and physiology*, 1972, 2, 30–50.
- 8) 松井佳彦. 水道水質の評価及び管理に関する総合研究 平成30(2018)年度報告書. 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, 2019, 262–293.

G. 研究発表

1. 論文発表

- 1) Asami, M., Furuhashi, Y., Nakamura, Y., Sasaki, Y., Adachi, Y., Maeda, N., and Matsui, Y. A field survey on elution of lead and nickel from taps used in homes and analysis of product test results. *Science of the Total Environment*, 2021, 771, 144979.
- 2) Narita, K., Matsui, Y., Matsushita, T., and Shirasaki, N. Selection of priority pesticides in Japanese drinking water quality regulation: validity, limitations, and evolution of a risk prediction method. *Science of the Total Environment*, 2021, 751, 141636.
- 3) Kamata, M., Matsui, Y., and Asami, M. National trends in pesticides in drinking water and water sources in Japan. *Science of the Total Environment*, 2020, 744, 140930.
- 4) Matsushita, T., Fujita, Y., Omori, K., Huang, Y., Matsui, Y., and Shirasaki, N. Effect of

chlorination on anti-acetylcholinesterase activity of organophosphorus insecticide solutions and contributions of the parent insecticides and their oxons to the activity. Chemosphere, 2020, 261, 127743.

- 5) 森智裕, 谷口佳二, 小田琢也. フィプロニルとその分解物の水源実態調査及び浄水処理における反応性. 水道協会雑誌. 2021, 90

(3), 2~10.

2. 学会発表

なし

H. 知的所有権の取得状況

なし