

水道水及び原水における化学物質等の実態を踏まえた水質管理の向上に資する研究

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

水道事業体において実施可能な PMMoV の検査方法を確立することを目的として、市販の核酸抽出・精製キットの有用性を評価した。キットによる PMMoV の検出結果は陰電荷膜法濃縮方法と概ね一致しており、さらに濃縮を行うと  $10^2$  copies/L のオーダーまで測定できることが示された。培養可能なウイルス濃度が  $10^4$  copies/mL 程度以上である場合には、ICC-PCR 法によりウイルスの感染性の有無を評価できる可能性がある。浄水では塩素によるウイルスの不活性化率には水温と pH 以外の水質はあまり影響しない可能性が示唆された。

レジオネラ汚染とその指標性としての従属栄養細菌に関する調査を行った。一般細菌数と従属栄養細菌数の相関から一般細菌数 100 CFU/mL に相当する従属栄養細菌数は 430 CFU/mL であり、現状の暫定目標値 2,000 CFU/mL を大幅に下回ったが、浄水とろ過水のそれぞれでは相関性は弱く、目標値設定には細菌類再増殖を考慮する必要があることが示された。一度汚染された給水システムでは蛇口の定期的な開栓のみでレジオネラを制御することは難しいが、開栓と滞留によって自由生活性アメーバや細菌群集組成が変化しレジオネラ再増殖に影響を及ぼしている可能性も示された。水道におけるクリプトスポリジウム等の耐塩素性病原微生物の検査において、遺伝子検査と他機関によるクロスチェックが機能した事例を報告した。

鉛製給水管中の滞留水では鉛濃度が水質基準を超過するおそれがあるが、令和元年度水道統計では鉛管の残存総延長は約 4,000km、残存件数は約 200 万件であり、近年は延長長さの減少が緩やかである。給水栓水の鉛濃度と鉛製給水管残延長には明確な関係性は認められなかった。統計対象の概ね 1/3 の事業体は残存鉛管の全体把握が難しい状況である。鉛管の交換が難しい場合は滞留後の水の非飲用利用が広報されているが、その周知や実際上の課題、鉛管の実態の把握と対策の必要性が指摘された。日本の水道事業体の鉛の水質検査では、流水後 15 分滞留させて 5L を採取し、検査を行うことが定められているが、その作業負担と有効性には課題があることが示された。食品安全委員会の鉛評価書から、今後も鉛ばく露低減のための取組が必要であると考えられた。

農薬類の実態調査の結果、原水では 95 種、浄水では 26 種の農薬および分解物が検出された。Σ 値の最大値は、原水が 0.98、浄水が 0.04 であった。本年度から対象農薬リスト掲載農薬の変更されたイプフェンカルバゾンや未分類のメタゾスルフロンは浄水においても比較的高い濃度、頻度で検出された。粒状活性炭池の有機フッ素化合物の破過曲線を調査したところ、その鎖長が短いほど破過速度が大きく、さらに破過は水温が高いほど促進されていた。ジメトエートの塩素処理試料は ChE 活性阻害性を誘発しなかったが、フェントエートは塩素処理すると ChE 活性阻害性を誘発し、オキソン体が寄与している可能性が示唆された。表流水中の農薬の検出可能性を推定するための機械学習モデルを開発し、農薬の検出可能性を高い精度で評価できることがわかった。

全国調査によりブロモクロロ酢酸、ブロモジクロロ酢酸は目標値案の 50% を超過している地点があることが示された。トリハロメタン濃度と消毒副生成物グループ（ジハロ酢酸は除く）の濃度には関連性が認められた。さらに、臭素化消毒副生成物濃度は、同じグループの塩素化消毒副生成物濃度とトリハロメタン濃度から予測可能であった。酸化銅が臭素酸濃度の上昇生成に関係する可能性がある。経年炭ではハロアセトアミドの一部は除去性が低く、低水温ほど低下する。消毒副生成物の制御に関連する粒状活性炭(GAC)の更新周期はヨウ素吸着性能 400~500mg/g-GAC が目安となる。GAC における微小生物対策（塩素水洗浄、洗浄周期の短縮）は TTHM 生成能などの処理性を悪化させるが水質基準値等と比較して問題ではなかった。前塩素と凝集剤の注入時間間隔が短いほどハロ酢酸の生成率は低い。ジクロロ酢酸や一部の臭素化ハロ酢酸は配水システム内で減少する。浄水中のクロロホルム濃度は給水末端のハロ酢酸の管理指標として有効である。

カルキ臭原因物質の消去剤としては、アスコルビン酸ナトリウムは有効であるが、チオ硫酸ナトリウムは硫黄臭が残存するため望ましくない。残留塩素濃度が高い場合には臭気強度（残留塩素が存在する場合としない場合の差）が高い傾向にあった。浄水中からメチルアミンなどが検出された。浄水中に含まれるベンズアルデヒドは臭気に寄与していないと判断された。標準物質の調整が困難であるため臭素と塩素を両方含むトリハロアミン類の定量法が未確立であることがわかった。

欧州の飲料水指令で管理されることとなっている 20 種の PFAS 化合物類のうち、PFOS と PFOA 以外の 18 化合物についての情報収集整理を行った。その内、健康影響評価値の設定に必要な情報は 11 物質で得られ、さらに NOAEL (LOAEL) 等に関するデータが得られたのは 9 物質であった。カルボン酸化合物については、炭素数が 8 未満よりも 9 以上 (11 まで) の PFAS 化合物は低用量で毒性が発現している傾向が認められた。トリクロロエチレン (TCE) の毒性情報の整理と評価手法の情報を整理した。TCE の複数の影響によって裏付けられた全体的な TDI は 0.0005 mg/kg bw/day (0.5 µg/kg bw/day) が適切であると考えられた。この値は現行の水道水質基準値の導出の基になっている TDI1.46 µg/kg/day の約 1/3 である。

LC-QTOFMS を用いたスクリーニング分析法の前処理方法の分析精度を検証した。河川水試料では農薬類 217 種の 91% の回収率が 70~130% の範囲内かつ併行精度 30% 以内に収まり、多数の農薬類を精度良く回収できる方法であることが明らかになった。農薬類の LC-QTOFMS スクリーニング分析法によるにおいて個人により検出・不検出の判断が分かれる傾向があるため、定量下限値を適切に設定することで解析者による判断基準の差を小さくできる。LC-MS/MS を用いた PFAS のスクリーニング分析法を検討し、同定に必要な保持時間、マススペクトルの情報、定量に必要な検量線情報をデータベース化した。

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、厚生労働省の水質基準逐次改正検討会や水道における微生物問題検討会に資された。

研究分担者	所属機関	職名
浅田 安廣	国立保健医療科学院生活環境研究部	主任研究官
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

研究分担者	所属機関	職名
島崎 大	国立保健医療科学院生活環境研究部	上席主任研究官
高木 総吉	地独) 大阪健康安全基盤研究所衛生	主幹研究員

		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 地球環境学堂	教授
片山 浩之	東京大学大学院工 学系研究科	教授
小坂 浩司	国立保健医療科学 院生活環境研究部	上席主 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

	化学部生活環境課	
広瀬 明彦	国立医薬品食品衛 生研究所安全性予 測評価部	客員研 究員
増田 貴則	国立保健医療科学 院	総括研 究官
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	主任研 究員
三浦 尚之	国立保健医療科学 院生活環境研究部	主任研 究官
松下 拓	北海道大学 大学院工学研究院	准教授
白崎 伸隆	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、ウイルス、細菌・寄生虫、無機物、化学物質・農薬、消毒副生成物、臭気物質、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。

**ウイルス：**PMMoV の管理目標値を検討するため、水道事業者の水質担当者が実施しやすい PMMoV の検査方法、リスク評価に必要なデータとして水道原水において感染力を有する病原ウイルスの実態把握、塩素消毒における病原ウイルスの不活化を保證する水質の条件を検討目標とした。

### 細菌・寄生虫：

細菌汚染としての従属栄養細菌とレジオネラ属菌に着目し、水質管理目標設定項目である従属栄養細菌数の暫定目標値の再検討に向けて、水道システムでの従属栄養細菌数に関するデータ蓄積、レジオネラ汚染に対する従属栄養細菌自体の指標性評価、制御方法に関する検討を行う。また、クリプトスポリジウムと疑われ

る高濃度粒子の検出と確認に至る事例を調査、報告する。

**無機物：**鉛に係る水道水質基準は、その毒性、蓄積性を考慮し、平成 14 年 3 月 27 日に公布された水質基準に関する省令の一部を改正する省令（平成 14 年厚生労働省令第 43 号）により 0.01mg/L 以下に強化され、平成 15 年 4 月 1 日から施行された。また、「鉛」の健康影響については、国内外の新たな科学的知見を元に、令和 3 年 6 月食品安全委員会より鉛評価書<sup>1)</sup>が発出された。現在のばく露の程度でも、日本人の小児の神経行動学的発達、成人の腎機能等に影響があるとする疫学研究の報告があり、今後とも鉛ばく露低減のための取組が必要であることが示された。本研究では本研究では鉛管の残存状況や採水方法の現状を把握し、対策を進める方法の検討を行うことを目的とし検討を行った。

**化学物質・農薬：**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実態調査を行うとともに、さらに有機リン系農薬については塩素処理分解物の毒性を評価した。また、有機フッ素化合物の水源や浄水場での実態調査を行った。

**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、ハロアセトアミド類 (HAcAms)、ハロベンゾキノロン類 (HBQs)、臭素化ハロ酢酸、ハロアセトニトリル、ハロアルデヒド、臭素酸を対象に、生成実態・特性、管

理・低減策について調査を行った。あわせて、消毒副生成物に関する全国調査を行い、物質間の関係性について検討した。さらに、現行の基準項目であるトリハロメタン類が臭素化ハロ酢酸のマーカーとして利用できるか検討を行った。

**臭気物質：**告示法では臭気の評価に塩素臭（カルキ臭）を除く、臭気強度についても上水試験方法では塩素臭は対象外とされている。本研究では、水道水に適した臭気評価手法を検討するため、適切な塩素除去法、臭気試験において残留塩素がある状態とない状態の臭気及び臭気強度の実態、原水・浄水に含まれる臭気原因物質の低分子アミン類を調査した。また、臭気物質のベンズアルデヒドの浄水臭気への寄与を評価した。さらに、主要なカルキ臭原因物質であるトリクロラミン以外の臭素を含むハロアミンの臭気原因の可能性について検出法と生成可能性について情報収集を行った。

**リスク評価管理：**PFAS 化合物類の内、先行して規制が進んでいる欧州の飲料水指令で管理されることとなっている 20 種の PFAS 化合物類のうち、国内で要検討項目として目標値が設定されている PFOS と PFOA 以外の 18 化合物についての情報収集整理を行った。WHO ガイドラインの改定で国内の規準値や目標値と異なる評価がなされた物質としてトリクロロエチレン (TCE) の毒性情報の整理と評価手法の情報を整理した。

**水質分析法：**水質分析をより簡便・迅速かつ高精度に分析できる新規分析法を開発するとともに、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た。また、これらの分析法の妥当性評価を行うとともに、水道事業体、地方衛生・環境研究所および保健所に普及させることで、水質検査に関わる機関の分析技術の向上と水質監視体制の強化を図ることを目的とした。

## 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、ウイルス、細菌・寄生虫、無機物、化学物質・農薬、消毒副生成物、臭気物質、リスク評価管理、水質分析法の 8 課題群—研究分科会を構築し、研究分担者 17 名の他に 52 もの水道事業体や研究機関などから 117 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 8 課題群に分けて、研究分科会とグループを構成し、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、ウイルス分科会（研究分担者 4 名、研究協力者 9 名）、細菌・寄生虫分科会（研究分担者 4 名、研究協力者 14 名）、無機物分科会（研究分担者 1 名、研究協力者 9 名）、化学物質・農薬分科会（研究分担者 3 名、研究協力者 19 名）、消毒副生成物分科会（研究分担者 3 名、研究協力者 12 名）、臭気分科会（研究分担者 3 名、研究協力者 5 名）、リスク評価管理分科会（研究分担者 2 名、研究協力者 14 名）、水質分析分科会（研究分担者 2 名、研究協力者 35 名）である。

ウイルス、細菌・寄生虫、無機物、化学物質・農薬、消毒副生成物、臭気物質、リスク評価管理、水質分析法の 8 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) ウイルス

浄水処理プロセスにおけるウイルス除去遺伝子マーカーとして有用なトウガラシ微斑ウイルス (PMMoV) の検査方法を確立することを目的として、原水、ろ過水、浄水試料を用いた検査方法の評価を行った。Promega Wizard Enviro Total Nucleic Acid (WETNA) Kit を用いた直接抽出・精製法を原水試料を用いて評価した結果、図 1 に示すように当該キットによる PMMoV の検出結果（縦軸の値）は陰電荷膜法による濃縮を行う方法（横軸の値）と概ね一致しており（一致率は 93%）、さらに PMMoV 濃度の測定値は当該キットの方が有意に高かった（対応のある t 検定、 $P < 0.01$ ）。また、ろ過水および浄水試料を用いた評価では、当該キットを用いて  $10^{3-4}$  copies/L のオーダーで含まれる PMMoV を検出できること、陰電荷膜法により得られたウイルス濃縮液全量から当該キットを用いてウイルス RNA を抽出・精製することで、 $10^2$  copies/L のオーダーで含まれる PMMoV を測定できることが示された。

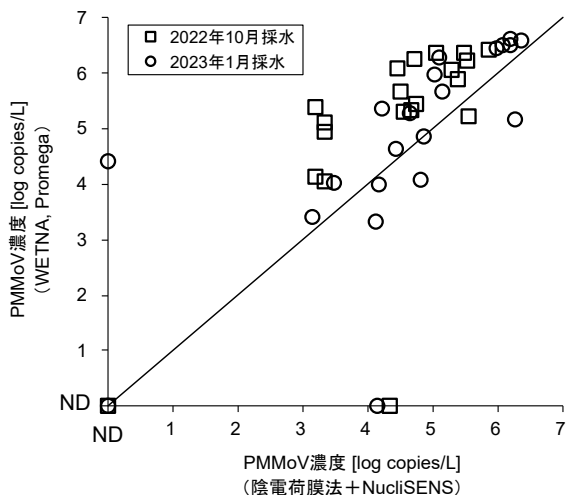


図1 原水試料中の PMMoV 濃度測定値の比較. 2022 年 10 月, 2023 年 1 月に採水した試料 (それぞれ N=21) について, WETNA kit による測定値(縦軸)と陰荷電膜法による測定値(横軸)を比較.

粉末活性炭吸着と UF 膜濃縮を組み合わせたウイルス濃縮法を適用することにより, 水道原水における水系感染症ウイルスの存在実態調査を実施した. その結果, 対象とした水道原水 A においては, PCR 法単独による定量により, エンテロウイルス及びロタウイルスが  $10^{3-5}$  copies/L 程度存在していることが明らかとなった. これに対し, アデノウイルス, ノロウイルス, サポウイルスについては, いずれの採水日においても定量下限値以下であった. 水道原水 A に高濃度で存在するエンテロウイルス(エンテロウイルス属に属するコクサッキーウイルス)及びロタウイルスについて, 培養法の一つである ICC-PCR 法の適用可能性を検討した. ICC-PCR 法において, 感染力を有するウイルスが  $10^4$  copies/mL 程度以上存在する場合には, 宿主細胞を用いた培養後に遺伝子濃度が増加することが確認された. 従って, 水道原水 A の濃縮試料に培養可能なエンテロウイルス株, あるいはロタウイルス株が  $10^4$  copies/mL 以上の濃度で含まれる場合には, ICC-PCR 法によって感染価を評価できる可能性が示された.

厳格な濁度管理 (0.14 NTU 以下) を行っている国内の 4 つの浄水場から 12 カ月間にわたって採取した実水を用いて, 遊離塩素によるコクサッキーウイルス B5 (CVB5) の不活化効率を水温と pH を制御した条件で検討した. その結果, CVB5 の塩素消毒はあまり水質 (水温と pH 以外) に影響されない可能性があることがわかった. このことから, 浄水では塩素消毒の

効率の変動がコントロールされており, 浄水濁度管理が遊離塩素消毒の不確実性を低減する間接的な役割を果たし, 水系ウイルスのリスク低減に寄与していることが示唆された.

## (2) 細菌・寄生虫

水道システムの細菌汚染問題, 特にレジオネラ汚染とその指標性の検討として取り上げられた従属栄養細菌に関する調査を行った. まず, 全国 21 浄水場の原水, ろ過水, 浄水について, 一般細菌数と従属栄養細菌数の調査を行った. 一般細菌数と従属栄養細菌数の相関性を評価した結果, 一般細菌数 100 CFU/mL に相当する従属栄養細菌数は 430 CFU/mL と暫定目標値の 2,000 CFU/mL を大幅に下回る結果となった. 浄水, ろ過水データのみで相関関係を評価したところ, 両者の相関性は弱く従属栄養細菌の再増殖による影響であると考えられ, 水質管理目標値設定には細菌類再増殖を考慮した上で検証する必要があることが示された.

続いて, レジオネラ属菌の安定した再増殖試験を実施できるように, 抗生物質処理を加えた自由生活性アメーバ(FLA)とレジオネラ属菌を共培養による再増殖試験に用いる植種液調製方法を検討したが, 抗生物質添加による FLA 細胞内へのレジオネラの取り込みの改善は見られなかった.

最後にレジオネラ汚染された実際の給水システムにおいて, 滞留時間がレジオネラ再増殖やその関連微生物 (FLA や細菌群集) に与える影響を評価した. 図 2 に示すように, レジオネラ汚染された給水システムにおいては, 給水栓における滞留時間を 28 日以上から 14 日, 7 日と短縮することで培養可能なレジオネラ濃度の抑制効果が見られた一方で, 7 日以内の条件ではその効果が頭打ちとなったことから, 一度汚染された給水システムでは蛇口の定期的な開栓のみでレジオネラを制御することは難しいことがわかった. また, 滞留条件によってレジオネラ属菌の宿主 FLA や細菌群集組成が変化し, レジオネラ再増殖に影響を及ぼしている可能性も示された.

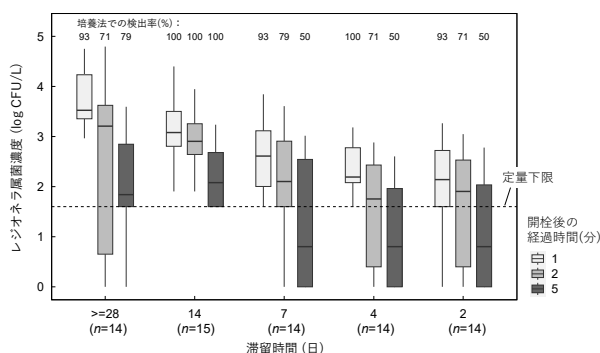


図2 異なる滞留時間のもとでの給水栓水中レジオネラ濃度（定量下限は 40 CFU/L，定量下限未満のデータは 1 CFU/L として表示）

水道におけるクリプトスポリジウム等の耐塩素性病原微生物の検査は、水道原水 10L 中のわずか 1 つを顕微鏡で検出する容易ではない検査が行われている。疑われる粒子が見つかったとしてもクリプトスポリジウム等との判定が行われない偽陰性の可能性も否定できない。このような中で、冬季にある水道原水として使われる河川水において、蛍光抗体で染色された粒子が 1,000 個/10L 程と多数認められ、クリプトスポリジウムの高濃度汚染が疑われた。粒子は完全な状態ではなく壊れたものが多かったため、クリプトスポリジウムとの最終判断は保留され、他の水質検査機関に再検査が委託され、逆転写 RT-PCR から Nested-PCR を経てブタで報告のある *Cryptosporidium suis* の配列が得られた。疑われる粒子の最終判断については他機関への相談や検査の有効性が確認された。

### (3) 無機物

令和 3 年 6 月食品安全委員会が鉛評価書を発出した。現状の鉛のばく露の程度でみられる平均的な血中鉛濃度は 1 $\mu$ g/dL 程度あるいはそれ以下であると考えられ、小児の神経行動学的発達、成人の腎機能等に影響があるとする疫学研究の結果から影響が示唆される血中鉛濃度 1~2  $\mu$ g/dL と近い。そのため、今後も、鉛ばく露低減のための取組が必要であると考えられた。

鉛製給水管中に水が長時間滞留した場合等には、鉛管からの溶出により、水道水の鉛濃度が水質基準を超過するおそれがあるが、令和元年度水道統計においては、1,400 事業体のうち、残存鉛管をすべて把握しているのは 906、一部把握、把握していないを合わせ 494 であり、概ね 1/3 の事業体は、件数の把握が難しい状況である。また、残存延長は総延長で約 4,000km、

残存件数は約 200 万件であり、さらに近年は延長長さの減少が緩やかである。現状では鉛製給水管の残存状況が把握され布設替えが進んでいる地域と、残存状況の把握が一部にとどまる地域、手が付けられていない地域がある。

公道からメーターまでの鉛管の布設替えは比較的進んだが、敷地内の布設替えは進みにくい。交換が難しい場合、水の使用法の広報を行うことが、厚生労働省の手引き<sup>2)</sup>等でも示されている。水道事業者（研究協力者の事業者）の広報資料においても、朝一番の水については飲用や調理以外の別の用途に使うよう促している。しかしながら、その周知や実際上の課題の把握と対策に関する検討が必要であると考えられた。

一方で、日本の水道事業者の鉛の水質検査では、流水後 15 分滞留させて 5L を採取し、検査を行うことが定められているが、採水地点には公共施設などが利用されることが多く、鉛管が使われている地点が採水地点に選ばれている場合は少ないようである。事業者の検討例では、採水箇所には鉛管を 2m 以上使っていない場合は鉛の基準値超過がなかった。しかしながら、鉛管の利用の有無にかかわらずすべての採水地点で、通常の採水の他に 15 分滞留後の採水を行い、それらの分析を行うことになっている。ある市の例では、地点あたり約 30 分の採水及び分析の作業の増加（15 分滞水+滞水時の採水 2 分（1 分 5L 採水と攪拌分取）+分析時間 10 分+容器準備等=約 30 分）となり、すべての給水栓に相当する採水と分析では、車 1 台追加および人員の追加及び電気代、アルゴンガス代、相応の人員費等が必要となっている。

これらのことから、定期的な採水地点では 15L 滞留の採水方法の有効性は必ずしも高くないと考えられた。一方で、鉛製給水管が使われている場合や使用状況が不明な場合、過去のデータで鉛が検出された場合は、鉛製給水管の使用状況や検出された原因などを別途確認することが望ましいと考えられた。

令和 2 年度に給水栓水で 0.002 mg/L 以上の鉛が検出されている浄水場等を含む事業者を対象として、鉛濃度と鉛製給水管残延長の関係を調査したが、両者には明確な関係性は認められず（図 3）、水質検査地点における鉛管残存状況と事業者毎の鉛管残延長には関連がないことが示唆された。さらに、鉛管残存状況について「全て把握している」と回答している事業者が少なく、鉛管残存延長の情報が不確実であることも理由として挙げられた。統計とし

て鉛製給水管残延長の実態を把握するデータ収集方法を新たに検討する必要があると考えられる。

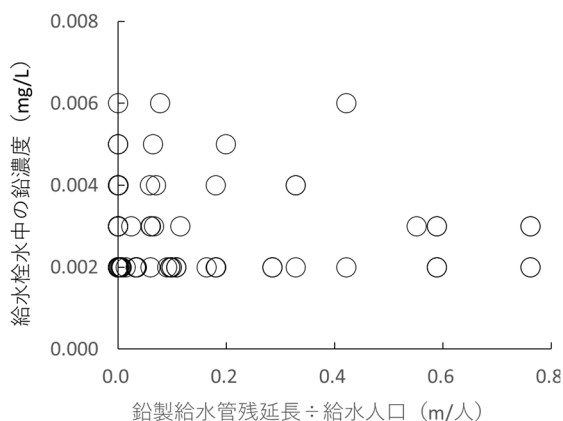


図3 給水栓水中の平均鉛濃度（浄水場毎）と給水人口に対する鉛製給水管残延長（m/人，事業主体毎）との関係（令和2年度，n = 156）

#### (4) 化学物質・農薬

令和3農薬年度の農薬製剤出荷量は約23.8万tで昨年とほぼ同じであった。登録農薬原体数は令和4年2月現在593種類であった。登録農薬製剤数は令和3年9月現在、殺虫剤が1047、殺菌剤が892、殺虫殺菌剤が408、除草剤が1633、それ以外が327で、合計は4307であった。

令和4年度の研究班による農薬類の実態調査の結果、原水では95種、浄水では26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58種、浄水では18種が検出された。Σ値の最大値は、原水が0.98、浄水が0.04であった。最大検出濃度は、原水では6農薬が1μg/Lを超過しており、浄水では8農薬が0.1μg/Lを超過していた。

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。本年度から対象農薬リスト掲載農薬の変更されたイプフェンカルバゾン浄水においても比較的高い濃度、頻度で検出され、検出指標値への寄与も大きいことから、水道水源においてリスクが高い農薬の分類変更が速やかに行われたことはこれまでの実態調査結果の成果と言える。また、メタゾスルフロンは浄水においても比較的高い濃度、頻度で検出され、検出指標値への寄与

も大きいことから引き続き注視する必要がある。

有機フッ素化合物の検出状況を把握すると共に、浄水場の単一GAC池においてGAC入れ替え直後からのPFCA破過曲線を調査した。LogDが大きい（鎖長が長い）PFCAほど10%および50%破過時点の処理水量（それぞれBV<sub>10%</sub>およびBV<sub>50%</sub>）は大きい傾向にあった（図4）。短鎖PFCA（PFBAとPFPeA）のBV<sub>50%</sub>は水温が高い場合に小さかったが、BV<sub>10%</sub>は水温の影響を受けなかった。すなわち、高水温が破過を助長させることがわかった。短鎖PFCA（PFBAとPFPeA）は高水温時に短期間（5000～7500BV）で完全に破過し脱着傾向に至った。しかし、より鎖長の長いPFCAでは4か月のGAC運転期間に破過が進まず、水温の影響も小さかった。これらのことから、PFCAの破過におよぼす水温の影響は破過が数十%に至ってから顕著に表れ、それ以前は水温の影響は比較的小さかった。

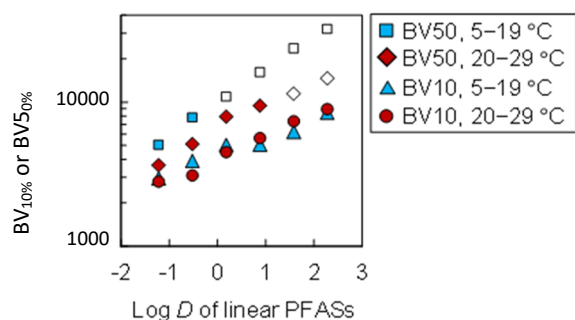


図4 PFCAのLogDと、PFCAのBV10またはBV50の関係（測定値は2022年1月～2022年5月（水温5～19℃）と2022年5月～2022年9月（20～29℃）の2期間に収集、白抜きプロットは外挿値、PFCAのLogDはMarvinSketch 22.11で算出）

塩素処理に伴うジメトエートのChE活性阻害性の変動を、代謝を考慮した系と、考慮しない系で調べたところ、代謝の有無にかかわらず、塩素処理試料はChE活性阻害性を誘発しなかった。従って、ChE活性阻害性の観点からは、ジメトエートオキソン体を含むジメトエートの塩素処理生成物を測定対象とする必要はないと提言され、現行の「親農薬のみ」を測定対象とするジメトエートに関する枠組みは妥当であると判断された。一方、塩素処理に伴うフェントエートのChE活性阻害性の変動を、代謝を考慮しない系で調べたところ、塩素処理試

料がChE活性阻害性を誘発することが分かり、誘発する毒性にはフェントエートオキソン体が寄与している可能性が示唆された。今後、フェントエートオキソン体標準品を用いた追加試験を行い、詳細を調べる必要があると考えられた。

表流水中の農薬の検出可能性を推定する機械学習モデルを開発し、その有効性を既存の推定手法（検出可能性指標）との精度比較により評価するとともに、検出可能性に影響を与える要因をSHAPにより解析した。その結果、機械学習モデルを用いて農薬の検出可能性を高い精度で評価できることがわかった。また、説明変数のうち、測定頻度、水田農薬出荷量、目標値（定量下限値）の順で検出可能性に与える影響が大きいことが示唆された。

### (5) 消毒副生成物

全量交換から交換補充せず3年経過した経年炭のハロアセトアミド除去性を調査した。ブromokloroアセトアミド(BCAcAm)、トリクロロアセトアミド(TCAcAm)、ジブromoアセトアミド(DBAcAm)は物理吸着により90%以上の高効率で除去されたものの、クロロアセトアミド(CAcAm)、ブromoアセトアミド(BAcAm)及びジクロロアセトアミド(DCAcAm)の除去性は低く、低水温ほど低下した。夏季に採取した場合、生物処理性の寄与は冬季に比べ高かった。

ハロベンゾキノンの毒性評価を行い、4-アミノ-3,5-ジクロロフェノール(DCAP)の $IC_{50}$ の概算値は $162\ \mu\text{M}$ であり、これまでに測定した関連物質の2,6-ジクロロキノン-4-クロロイミド(DCQC)、2,6-ジクロロ-1,4-ベンゾキノン(DCBQ)、*p*-キノン-4-クロロイミド(QC)に比べ細胞毒性が低いことが分かった。

未規制消毒副生成物の全国調査により、臭素化副生成物は広く存在していること、ブromokloro酢酸(BCAA)、ブromोजクロロ酢酸(BDCAA)は目標値案の50%を超過している地点があることが示された。

消毒副生成物間の関連や相関について検討した。消毒副生成物グループの濃度はトリハロメタン(THM)濃度は関連性が認められ、THM濃度が高い場合に高いことが示された。ただし、ハロ酢酸(DHAA)はTHM濃度が高い場合でも不検出あるいは濃度が低い浄水場もあり、関連は認められなかった。THMを除いて、臭素化消毒副生成物を測定している浄水場は少ないが、THMの臭素化体の割合BIFは、いずれの消毒副生成物グループのBIFと関連性が認め

られ、また、原水の臭化物イオン濃度が高い場合にBIFも高い傾向にあった。さらに、THM以外の臭素化消毒副生成物濃度は、同じグループの塩素化消毒副生成物濃度とTHMのデータ(BDCM/TCM比)から予測可能であることがわかった。図5に、BDCM/TCMを用いた場合の対象とした消毒副生成物の実測値と予測値の比較を示す。未規制ハロ酢酸(臭素化ハロ酢酸)濃度と総トリハロメタン(TTHM)等基準項目の「緩い関係性」について、国内水道事業者の測定データを用いて解析を行った。その結果、多くの浄水場で臭素化ハロ酢酸についてTTHMや個別の臭素化トリハロメタンと関係性が認められた。一方で、臭素化ハロ酢酸のマーカーとしてTTHMと臭素化トリハロメタンを比較すると大きな差は認められなかった。

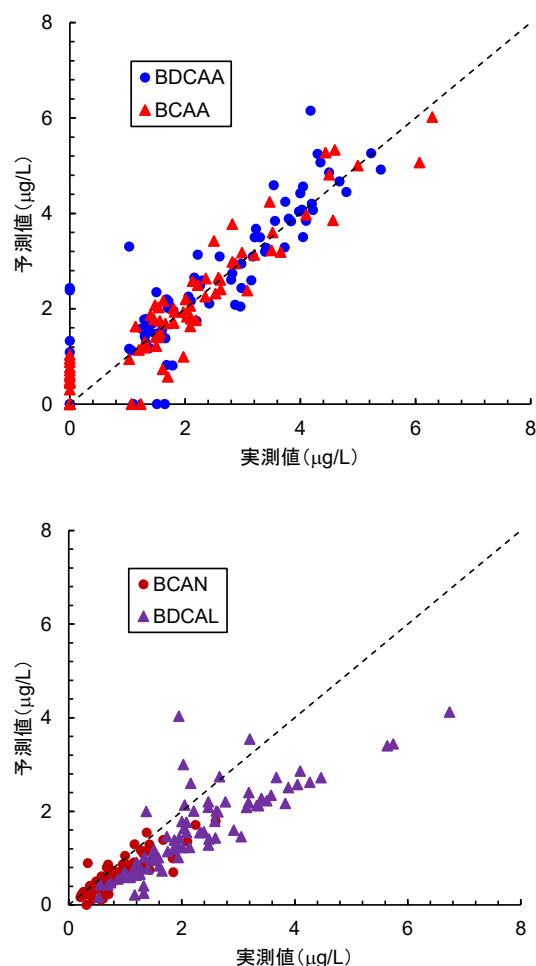


図5 臭素化消毒副生成物濃度の実測値と予測値の比較（上図：ブromोजクロロ酢酸(BDCAA)とブromokloro酢酸(BCAA)の結果、下図：ブromokloroアセトニトリル(BCAN)とブromोजクロロアセトアルデヒド(BDCAL)の



結果)

近年の浄水処理用粒状活性炭(GAC)は性状や水処理性能が納入時期により異なることが確認されたことから、水処理性能を指標にした更新周期の目安を推定した。ヨウ素吸着性能として 400~500mg/g-GAC が必要になることがわかった。室内水処理実験装置を用いた調査の結果、GAC における微生物対策としての塩素水洗浄、洗浄周期の短縮)は GAC による総トリハロメタン生成能及び一部のハロ酢酸生成能の処理性を悪化させたが、水質基準値等と比較して問題となる程度ではないことが分かった。

海水淡水化で浄水処理を行っている浄水場で、浄水場出口から調整池の間で臭素酸濃度が上昇する事が確認された。水中の臭素酸は一般的に、オゾン処理による臭化物イオンの酸化、臭素酸が含まれている次亜塩素酸ナトリウムの注入、次亜塩素酸ナトリウムへの紫外線照射による臭化物イオンの酸化で増加することが知られているが、これらはあてはまらず、酸化銅が臭素酸の生成に関与する可能性が示された。

前塩素処理について、塩素と凝集剤を入れるタイミングの間隔が短いほどハロ酢酸の生成率が低かった。さらに、その低下効果はジハロ酢酸(DHAA)よりもトリハロ酢酸(THA)の方が大きかった。ジクロロ酢酸(DCAA)と同様に一部の臭素化ハロ酢酸が、配水システム内で減少することを示された。浄水中のクロロホルム濃度は給水末端のハロ酢酸の管理指標として有効であることを示された。

## (6) 臭気物質

カルキ臭原因物質の消去剤としては、アスコルビン酸ナトリウムが十分有効であり、添加量も低濃度条件で効果があることを指摘した。また、チオ硫酸ナトリウムは硫黄臭が残存するため臭気評価の観点からは望ましくないことがわかった。

4 事業者の給水栓水(全 17 地点、それぞれ 3~10 回調査)において、残留塩素あり/なしの場合で臭気試験を行った結果、残留塩素が存在する場合、臭気強度は常に検出された。同一の調査地点では、残留塩素がほぼ一定の場合が多く、臭気強度が変動した地点が比較的多く認められたが、残留塩素濃度の変動以外の要因であると推測された。残留塩素濃度と臭気強度(残留塩素が存在する場合としない場合の差)の関係(図 6)をノンパラメトリック検定であるウィルコクソンの順位和検定で解析すると、残留

塩素濃度が高い場合には臭気強度(残留塩素が存在する場合としない場合の差)が高い傾向にあった。

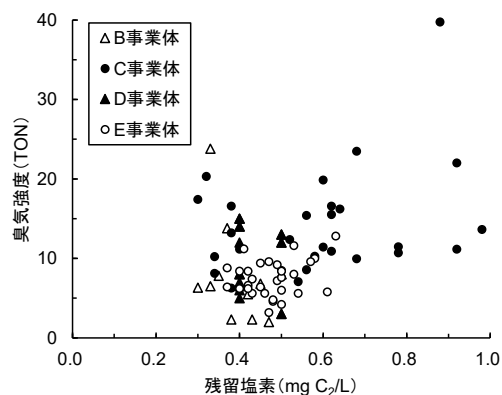


図 6 残留塩素濃度と臭気強度(残留塩素が存在する場合としない場合の差)の関係

誘導体化-GC/MS 法により、千葉県企業局の浄水中のアミン類を測定したところ、メチルアミン、ジエチルアミン・エチルアミンが、調べたすべての浄水から検出された。また、メチルアミンは塩素処理工程で生成している可能性が示唆された。

全国 4 ヶ所の浄水場の浄水中に含まれるベンズアルデヒドの濃度は、その臭気閾値より低かった。すなわち、これらの浄水場浄水が有する臭気には、ベンズアルデヒドは寄与していないと判断された。一方、うち 3 ヶ所の浄水場浄水の臭気は、 $\text{NCl}_3$  と遊離塩素のみでは説明できなかった。すなわち、これらの物質以外の臭気原因物質が存在する可能性が示唆された。

臭素と塩素を両方含むトリハロアミン類の分析法や生成特性に関する文献調査をおこなった。その結果、海水の塩素処理のような臭化物イオンの濃度が高い条件では、これらの物質の生成は確認できるものの、定量法が確立されていないことがわかった。これは、検出は MIMS で可能ではあるが、標準試料の調製が困難であるためであった。今後は、分光学的情報を利用して検量線の作成を試みる等種々の課題があることがわかった。

## (7) リスク評価管理

欧州の飲料水指令で管理されることとなっている 20 種の PFAS 化合物類のうち、PFOS と PFOA 以外の 18 化合物(PFBS, PFPeS, PFHxS, PFHpS, PFNS, PFDS, PFUnDS, PFDoDS, PFTrDS, PFBA, PFPeA, PFHxA, PFHpA, PFNA, PFDA, PFUnDA, PFDoDA, PFTrDA)についての情報収集整理を行った。健康影響評価値の設定に必要な

な体内動態, 反復投与毒性, 生殖発生毒性, 遺伝毒性, 発がん性に係る情報が得られたのは18物質中11物質(PFBS, PFHxS, PFBA, PFPeA, PFHxA, PFHpA, PFNA, PFDA, PFUnDA, PFDoDA, PFTrDA)であり, スルホン酸化合物よりもカルボン酸化合物に関する情報の方が多く得られた. そのうちNOAEL (LOAEL) 等の毒性の用量相関性に関するデータが得られたのは9物質であった(表1).

表1. PFAS 類物質の NOAEL (LOAEL) の一覧表

化合物名(略称)	反復投与毒性	生殖発生毒性
PFBS	Lieder et al. (2009a) ラット90日試験 NOAEL:60 mg/kg/day	Feng et al. (2017) マウス発生毒性試験 NOAEL:50 mg/kg/day
PFHxS	Butenhoff et al. (2009) 反復生殖併合試験 NOAEL:1 mg/kg/day	Ramhøj et al., 2018 発生毒性試験 NOAEL: 0.05mg/kg/day (LOAEL:5 mg/kg/day)
PFBA	Butenhoff et al. (2012) ラット90日間試験 NOAEL: 6 mg/kg/day	Das et al. (2008) マウス発達毒性試験 LOAEL: 35 mg/kg/day
PFHxA	Chengelis et al. (2009b) ラット90日間試験 NOAEL: 50 mg/kg/day	Loveless et al. (2009) ラット一世代試験 NOAEL: 100 mg/kg/day
PFHpA	CLH report (2019) 生殖/発生毒性スクリーニング併用90日間試験 LOAEL: 0.5mg/kg/day	CLH report (2019) 生殖/発生毒性スクリーニング併用90日間試験 LOAEL: 0.5mg/kg/day
PFNA	-	Singh and Singh (2019b) マウス発生毒性試験 NOAEL=0.2 mg/kg/day
PFDA	NTP (2019) ラット28日間試験 LOAEL: 0.156 mg/kg/day	NTP (2019) ラット28日間試験 NOAEL: 0.156 mg/kg/day
PFUnDA	Takahashi et. al., (2014) ラット反復毒性生殖毒性併合試験 NOEL: 0.1 mg/kg/day	Takahashi et. al., (2014) ラット反復毒性生殖毒性併合試験 NOEL=0.3 mg/kg/day
PFDoDA	Kato et.al., (2015) ラット反復毒性生殖毒性併合試験 NOEL: 0.1 mg/kg/day	Kato et.al., (2015) ラット反復毒性生殖毒性併合試験 NOEL: 0.5 mg/kg/day

どの化合物も反復投与毒性も生殖発生毒性も同様のレベルで毒性が発現しており, カルボン酸化合物については, 炭素数が8未満のPFAS化合物よりも9以上(11まで)のPFAS化合物でより低用量で毒性が発現している傾向が認められた.

TCEについては, 利用可能な研究のうち, 以下の3試験が重要であると考えられ, それぞれのTDIは以下の通りである. Keil et al., (2009): マウスの胸腺重量の減少, PBPKモデル, TDI = 0.0006 mg/kg bw/day. Peden-Adams et al., (2006): 発生免疫毒性の適用用量 LOAEL TDI = 0.00037 mg/kg bw/day. Johnson et al., (2003): ラットの心臓奇形, PBPKモデル, TDI = 0.00064 mg/kg bw/day. 算出されたTDI値は0.0003~0.0006 mg/kg bw/dayの狭い範囲に収まった. さらなる裏付けデータとして, ラットの中毒性腎症 (0.0003 mg/kg bw/day) とラットの腎臓重量の増加(0.0008 mg/kg bw/day)もあり, これらを総括するとTDIは0.0005 mg/kg bw/day = 0.5 µg/kg bw/dayが適切であると考えられた. この値は現行の水道水質基準値の導出の基になっているTDI 1.46 µg/kg/dayの約1/3である. WHOは本TDIに体重60kg及び飲水量2L及び寄与率50%を適用して, 水道水の基準値として8 µg/Lという値を定めた. WHO (2020)の新しいTDI (0.5 µg/kg/day)を用いて, 日本の現行の基準値算出に使用した曝露量(5L)と寄与率(70%)を代入すると基準値は0.004 mg/L (4 µg/L)と試算され, 現行の基準値(0.01 mg/L=10 µg/L)の半分以下の値と算出された. 最近の水道水質データからは99.9%以上の地点で0.005 µg/Lを下回っており, 現状の曝露がすぐに懸念のある状態であるとは考えられないが, TCEは代表的な地下汚染物質であり, 過去に地下水を原水としている地域等において, 特異的に高濃度で検出された事例もある. これらの曝露に関する情報とWHOの新しいTDIの情報に鑑み, 日本における基準値の再検討に向けた取り組みを行うことが必要であると考えられた.

#### (8) 水質分析法

液体クロマトグラフ-四重極飛行時間型質量分析計(LC-QTOFMS)を用いたスクリーニング分析法の前処理方法の妥当性を検証した. その結果, スクリーニング分析法で測定対象とした農薬類217種の約84%(183/217, 水道水試料)および約91%(196/217, 河川水試料)の回収率が70~130%の範囲内かつ併行精度30%以

内に収まった。本前処理法は、多数の農薬類を精度良く一斉に回収できる方法であることが明らかとなった。ただし、一部の分解性の高い、あるいは水溶性が高い農薬類において回収率が良好でなかったことから、これらの農薬類の適用には留意する必要があることがわかった。

LC-QTOFMS スクリーニング分析法において、機器分析で取得したデータを解析する際に発生する個人差の影響を明らかにすることを目的にバリデーション試験を実施した。バリデーション試験には5名が参加し、それぞれが河川水試料由来の同一のデータを用いてデータベースに登録された農薬類の検出・不検出を判定した。その結果、定量下限値付近の農薬類は、

個人により検出・不検出の判断が分かれる傾向がみられた。そのため、定量下限値を適切に設定することで個人による判定の違いを少なくすることが可能であることがわかった。

近年、非常に大きな関心となっている PFAS のスクリーニング分析法の検討を行った。広く普及している高速液体クロマトグラフ-トリプル四重極型質量分析計 (LC-MS/MS) を用い、LC 条件、MS 条件の検討および検量線の作成を行った。その結果、PFAS の同定に必要な保持時間、マススペクトルの情報、定量に必要な検量線情報 (図7) をデータベース化することができた。

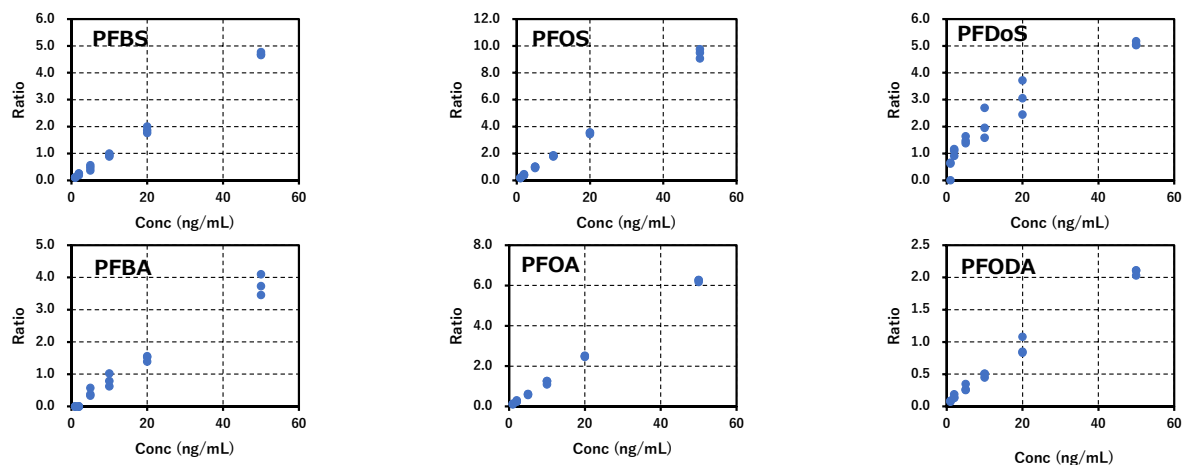


図7 PFAS スクリーニング分析用の検量線の例

## D. 結論

### (1) 微生物 (ウイルス)

水道事業体において実施可能な PMMoV の検査方法を確立することを目的として、市販の核酸抽出・精製キット (WETNA Kit) の有用性を評価した。WETNA キットによる PMMoV の検出結果は陰電荷膜法濃縮方法と概ね一致しており、さらに陰電荷膜法による濃縮を行うと当該キットにより  $10^2$  copies/L のオーダーで含まれる PMMoV を測定できることが示された。

水道原水 A ではエンテロウイルス及びロタウイルスが  $10^{3-5}$  copies/L 程度存在していることが明らかとなった。培養可能なウイルス濃度が  $10^4$  copies/mL 程度以上である場合には、ICC-PCR 法によりウイルスの感染性の有無を評価できるものと考えられた。浄水の塩素消毒によ

るウイルスの不活性化率には水温と pH 以外の水質はあまり影響しない可能性が示唆された。

### (2) 細菌・寄生虫

一般細菌数 100 CFU/mL に相当する従属栄養細菌数は 430 CFU/mL であった。浄水とろ過水それぞれのデータでは一般細菌数と従属栄養細菌数の相関性は弱く従属栄養細菌の再増殖による影響が考えられた、目標値設定では再増殖の考慮の必要性が示された。FLA とレジオネラ属菌を共培養による再増殖試験に用いる植種液調製方法を検討したが、抗生物質添加による FLA 細胞内へのレジオネラの取り込みの改善は見られなかった。給水栓における滞留時間が 7 日以内ではレジオネラ濃度の抑制効果が頭打ちとなったことから、一度汚染された給水システムでは蛇口の定期的な開栓のみでレジオネラを制御することは難しいことがわかった。顕鏡検査ではクリプトスポリジウムと

の最終判断が保留され、水質検査機関に遺伝子検査が委託された事例を報告した。

### (3) 無機物

令和元年度水道統計では鉛管の残存総延長は約 4,000km、残存件数は約 200 万件であり、近年は延長長さの減少が緩やかである。給水栓水の鉛濃度と鉛製給水管残延長には明確な関係性は認められなかった。統計対象事業体の概ね 1/3 は残存鉛管の全体把握が難しい状況である。鉛管の残存している場合には非飲用利用が広報されているがその周知や実際上の課題、さらには鉛管の実態の把握と対策の必要性が指摘された。鉛の水質検査の作業負担と有効性に関する課題が示された。血中鉛濃度の実態から鉛ばく露低減のための取組が必要であると考えられた。

### (4) 化学物質・農薬

令和 3 農薬年度の農薬製剤出荷量は昨年とほぼ同じであった。研究班による農薬類の実態調査の結果、原水では 95 種、浄水では 26 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。Σ 値の最大値は、原水が 0.98、浄水が 0.04 であった。本年度から対象農薬リスト掲載農薬の変更されたイプフェンカルバゾンや未分類のメタゾスルフロンは浄水においても比較的高い濃度、頻度で検出され、検出指標値への寄与も大きいことから引き続き注視する必要がある。

粒状活性炭 (GAC) 池の有機フッ素化合物の破過曲線を調査したところ、その鎖長が短いほど破過速度が大きかった。有機フッ素化合物の破過は水温が高いほど促進されるが、鎖長が長い場合は水温の影響も小さかった。

ジメトエート塩素処理試料は ChE 活性阻害性を誘発しなかった。一方、フェントエートは塩素処理すると ChE 活性阻害性を誘発することがわかり、フェントエートオキシソン体が寄与している可能性が示唆された。

表流水中の農薬の検出可能性を推定するための機械学習モデルを開発し、農薬の検出可能性を高い精度で評価できることがわかった。

### (5) 消毒副生成物

3 年経過した GAC は CAcAm, BacAm, DCACAm の除去性が低下した。DCAP の IC<sub>50</sub> の概算値は 162 μM であり、DCQC などに比べ細胞毒性が低かった。全国調査により、臭素化副生成物は広く存在し、BCAA, BDCAA は目標値案の 50% を超過している地点があった。DHAA を除く消毒副生成物グループは THM と濃度に関連性が認められた。THM と

他の消毒副生成物グループ間では BIF に関連性が認められた。臭素化消毒副生成物濃度は、同一グループの塩素化消毒副生成物濃度と BDCM/TCM から予測可能である。多くの浄水場では臭素化ハロ酢酸は TTHM や個別の臭素化トリハロメタンと関係性が認められた。ヨウ素吸着性能 400~500mg/g-GAC が GAC の交換間の目安であった。GAC の塩素水洗浄、洗浄周期の短縮は TTHM 生成能などの処理性を悪化させたが、水質基準値等と比較して問題となる程度ではない。酸化銅が臭素酸の生成に関与する可能性が示された。前塩素と凝集剤の注入タイミング間隔が短いほどハロ酢酸の生成率が低かった。DCAA と同様に一部の臭素化ハロ酢酸が、配水システム内で減少する。浄水中のクロロホルム濃度は給水末端のハロ酢酸の管理指標として有効である。

### (6) 臭気物質

カルキ臭原因物質の消去剤としては、チオ硫酸ナトリウムは硫黄臭が残存するため臭気評価の観点からは望ましくなく、アスコルビン酸ナトリウムが低濃度条件を含めて十分有効であった。給水栓水について残留塩素あり/なしの場合で臭気試験を行った調査では、残留塩素ありでは臭気強度は常に検出された。同一の調査地点では臭気強度変動は残留塩素濃度以外が要因であると推測されたが、複数の調査地点間で見た場合は残留塩素濃度が高い場合には臭気強度(残留塩素が存在する場合としない場合の差)が高い傾向にあった。メチルアミンは塩素処理工程で生成している可能性が示唆された。浄水場浄水の臭気は NCl<sub>3</sub> と遊離塩素のみでは説明できなかったが、ベンズアルデヒドの寄与も低いと推定された。臭素と塩素を両方含むトリハロアミン類の分析法や生成特性に関する文献調査をおこなった。

### (7) リスク評価管理

欧州の飲料水指令で管理されることとなっている 20 種の PFAS 化合物類のうち、PFOS と PFOA 以外の 18 化合物についての情報収集整理を行った。そのうち 9 物質について NOAEL (LOAEL) 等の毒性の用量相関性に関するデータが得られた。TCE の毒性情報の整理と評価手法の情報を整理し、TDI は 0.0005 mg/kg bw/day (0.5 μg/kg bw/day) が適切であると考えられた。

### (8) 水質分析法

LC-QTOFMS を用いたスクリーニング分析法で対象とした農薬類 217 種の 84% 以上の回

収率が70~130%の範囲内かつ併行精度30%以内に収まり、多数の農薬類を精度良く回収できる方法であった。農薬類のLC-QTOFMSスクリーニング分析法においては個人により検出・不検出の判断が分かれる傾向があり、定量下限値の適切な設定が必要である。LC-MS/MSを用いたPFASのスクリーニング分析法を検討し、同定に必要な情報をデータベース化した。

## E. 健康危険情報

なし

## F. 研究発表

### 1. 論文発表

Shirakawa, D., Shirasaki, N., Hu, Q., Matsushita, T., Matsui, Y., Takagi, H., Oka, T. Investigation of removal and inactivation efficiencies of human sapovirus in drinking water treatment processes by applying an in vitro cell-culture system. *Water Research* 236, 119951, 2023.

Miura, T., Kadoya, S., Takino, H., Sano, D., Akiba, M. Temporal variations of human and animal Rotavirus A genotypes in surface water used for drinking water production. *Frontiers in Microbiology* 13, 912147, 2022.

谷口直生, 三浦尚之, 浅田安廣, 上野薫, 谷口なつ海, 増田貴則: 水道統計を用いたわが国における従属栄養細菌の測定状況解析. *水道協会雑誌*, 92(2), 2-13, 2023.

泉山信司: 水の塩素消毒—病原微生物の塩素消毒にまつわる誤解への回答例. *環境技術*, 51(2), 43-48, 2022.

泉山信司: クリプトスポリジウムなどによる食中毒, 臨床検査. 66, 91-97, 2022.

Narita, K., Matsui, Y., Matsushita, T. and Shirasaki, N. (2023) Screening priority pesticides for drinking water quality regulation and monitoring by machine learning: Analysis of factors affecting detectability. *Journal of Environmental Management*, 326 (Part A), 116738.

小坂浩司, 越後信哉, 松下拓, 今井美江, 清宮佳幸, 庭山秀一 (2023) 水道水中のカルキ臭の生成と制御に関する最新の動向, *水道協会雑誌*, 92(3), 19-32.

小林憲弘. 水道事業における水質検査のあり方の見直しと今後の課題. *水環境学会誌*, 45(A)(9), 316-320, 2022.

小池真生子, 長谷川有紀, 高木総吉, 吉田仁, 安達史恵, 小泉義彦, 中島孝江, 竹中凜代, 山口進康. 大阪府内浄水場におけるフィプロニルおよびフィプロニル分解物4種の実態調査, *水道協会雑誌*, 91(11), 2-9, 2022.

Kobayashi, N., Takagi, S., Kinoshita, T., Sakata, O., Nakano, F., Watanabe, N., Nomura, A., Kawai, N., Hiraiwa, T., Okumura, M., Furukawa, K., Kasuya, T., Iwama, N., Yonekubo, J., Takahara, R., Tanaka, S., Tsuchiya, Y., Ikarashi, Y. Development and validation of an analytical method for simultaneous determination of perfluoroalkyl acids in drinking water by liquid chromatography/tandem mass spectrometry. *Journal of Water and Environment Technology*, 20(6), 219-237, 2022.

小林憲弘, 土屋裕子, 高木総吉, 吉田仁, 大窪かおり, 北原健一, 坂本晃子, 木下輝昭, 仲野富美, 橋本博之, 古川浩司, 粕谷智浩, 岩間紀知, 平林達也, 小嶋隼, 林幸範, 古口健太郎, 五十嵐良明. 水道水中農薬のGC/MSターゲットスクリーニング分析のデータ解析における誤差要因の分析. *環境化学*, 33, 26-40, 2023.

小林憲弘, 水道水質検査における陰イオン界面活性剤(LAS)のLC-MS/MS分析法の開発. *和光純薬時報*, 91(1), 2-5, 2023.

小林憲弘, 土屋裕子, 木下輝昭, 高木総吉, 中嶋京介, 広木孝行, 平林達也, 藤井裕美, 栗原正憲, 関川慎也, 奥村学, 古口健太郎, 樋口雄一, 大瀧翔吾, 代龍之介, 古川浩司, 松巾宗平, 松澤悠, 高原玲華, 五十嵐良明. 液体クロマトグラフ質量分析計による水道水中のメチダチオンオキシソンの分析法の検討と妥当性評価. *水道協会雑誌*, 印刷中

### 2. 著書

なし

### 3. 解説・総説

なし

#### 4. 学会発表

Shirakawa, D., Shirasaki, N., Yamashita, R., Matsumura, T., Koriki, S., Matsushita, T., Matsui, Y. Investigating virus reduction efficiencies in coagulation-sedimentation-rapid sand filtration or coagulation-microfiltration by a combination of full-scale studies and lab-scale experiments. IWA World Water Congress & Exhibition, Copenhagen, Denmark, 11-15 September 2022.

白川大樹, 高力聡史, 白崎伸隆, 松下拓, 松井佳彦. 全国 10 カ所の水道原水における病原ウイルスの存在実態の把握: PMAxx-Enhancer-PCR 法による調査. 第 57 回日本水環境学会年会, 松山, 2023/3/15-17.

浅川高志, 白川大樹, 白崎伸隆, 松下拓, 松井佳彦. 培養困難なヒトノロウイルスの浄水処理性評価に向けた高感度に定量可能な革新的ウイルス様粒子の創製. 第 57 回日本水環境学会年会, 松山, 2023/3/15-17.

平岩竜士, 白崎伸隆, 松下拓, 松井佳彦. ウィルス粒子の状態変化はウイルスの凝集沈澱-砂ろ過処理性にどの程度影響するのか?. 第 57 回日本水環境学会年会, 松山, 2023/3/15-17.

福井健暉, 川上悟史, 白崎伸隆, 松下拓, 松井佳彦. 水道原水に存在する病原ウイルスの感染価評価: 活性炭と UF 膜を組み合わせたウイルス濃縮法の構築と適用. 第 57 回日本水環境学会年会, 松山, 2023/3/15-17.

三浦尚之, 瀧野博之, 前田暢子, 東城まゆみ, 佐野大輔, 秋葉道宏, 増田貴則. 流入下水および表層水試料からの新型コロナウイルス RNA 検出手法の検討. 第 57 回日本水環境学会年会講演集, 372, 2023.

白崎伸隆, 胡秋晗, 白川大樹, 高木弘隆, 岡智一郎, 松下拓, 松井佳彦. 汎用細胞増殖系を活用した下痢症ウイルスの浄水処理性の評価. ウィルス性下痢症研究会第 33 回学術集会, 長崎, 2022/11/12.

白崎伸隆, 胡秋晗, 白川大樹, 高木弘隆, 岡智一郎, 松下拓, 松井佳彦. 汎用細胞増殖系を活用した浄水処理工程におけるヒトサポウイルスの未知動態の解明. 第 29 回衛生工学シンポジウム, 札幌, 2022/11/3-4.

白川大樹, 松村拓哉, 白崎伸隆, 松下拓, 松井佳彦. 低圧膜ろ過処理を導入した実浄水処理場におけるウイルスの除去性評価. 令和 4 年度日本水道協会全国会議 (水道研究発表会), 名古屋, 2022/10/19-21.

三浦尚之. 水道水源における病原微生物汚染とリスク管理. 第 25 回日本水環境学会シンポジウム講演集, 83-84, 2022.

瀧野博之, 浅田安廣, 増田貴則: 粒状活性炭上に生息するカビ臭原因物質分解細菌の探索. 第 57 回日本水環境学会年会, 松山, 2023/3/15-17.

青井裕亮, 永田莞織, 中西智宏, 伊藤禎彦: 給水末端における間欠的な塩素接触条件がレジオネラ再増殖に及ぼす影響. 第 57 回日本水環境学会年会, 松山, 2023/3/15-17.

泉山信司, 小久保敦啓, 小澤克行: 水道原水からの高濃度なクリプトスポリジウムの検出事例. 環境技術学会, 京都, 2022/10/22.

古川紗耶香, 赤坂遼平, 山崎朗子, 泉山信司: 青森市におけるジアルジア汚染源調査-河川水と野ネズミの *Giardia microti* 検出-. 令和 4 年度日本水道協会全国会議 (水道研究発表会), 名古屋, 2022/10/19-21.

Matsushita, T., Takeuchi, T., Kikkawa, Y., Matsui, Y. and Shirasaki, N. (2022) Development of metabolism-coupled cell-independent anti-acetylcholinesterase assay for evaluating change in toxicity of organophosphorus insecticides during chlorination. IWA World Water Congress, Copenhagen.

中沢禎文, 小坂浩司, 吉田伸江, 浅見真理 (2023) 水源河川における有機フッ素化合物汚染とその発生源調査. 第 57 回日本水環境学会年会講演集, 169.

安藤大將, 松下拓, 松井佳彦, 白崎伸隆 (2022) コリンエステラーゼ活性阻害試験とカラム分画の組み合わせによる農薬フェントエートの毒性を誘発する塩素処理生成物の推定. 第 29 回衛生工学シンポジウム.

松下拓, 松井佳彦, 白崎伸隆 (2022) 水道における有機リン系農薬由来の消毒副生成物の管理. 第 25 回日本水環境学会シンポジウム.

小坂浩司, 吉田伸江, 中沢禎文, 浅見真理, 松井佳彦, 秋葉道宏 (2022) 浄水場での PFAS の粒状活性炭, 粉末活性炭による除去特性. 京都大学環境衛生工学研究会第 44 回シンポジウム, 環境衛生工学研究, 36 (3), 18-20.

小坂浩司, 吉田伸江, 小島邦恵, 東城まゆみ, 越後信哉, 増田貴則. 全国の浄水場における水道水中の多種の消毒副生成物の実態調査と関連性評価. 令和 4 年度全国会議 (水道研究発表会) 講演集, 名古屋, 2022. 10/19-21, 646-647.

岸本由紀子, 小坂浩司, 三浦尚之. 台風等豪雨時におけるハロ酢酸類の生成実態. 令和 4 年度全国会議 (水道研究発表会) 講演集, 名古屋, 2022. 10/19-21, 652-654.

越後信哉, 奥村夏子, 多田悠人, 小坂浩司, 伊藤禎彦. 国内の水道事業体のデータにおける基準項目と未規制消毒副生成物の関係性. 令和 4 年度全国会議 (水道研究発表会) 講演集, 名古屋, 2022. 10/19-21, 565-567.

松本真理子, 広瀬望, 磯貴子, 村田康允, 重田善之, 馬野高昭, 広瀬明彦: Derivation of a target value of perfluorooctanoic acid in drinking water 第 49 回日本毒性学会学術年会 (2022.6.30-7.2)

松本真理子, 環境化学物質系 3 学会合同大会「新興化学物質の人健康影響に関する講演」(招待講演) (2022. 6. 15)

Matsumoto M, Murata Y, Hirose N, Iso T, Shigeta Y, Umamo T, Hirose A : Derivation of a target value of 1,3-butadiene, a possible contaminant, in drinking water ( ICT/EUROTOX2022 ) (2022.9.18-21)

Kobayashi, N., Tsuchiya, Y., Takagi, S., Ikarashi, Y. GC/MS target screening method for 176 agricultural chemicals in raw and drinking water samples. Nontarget Analysis for Environmental Risk Assessment. SETAC Focused Topic Meeting, Durham, USA, 2022/5/22-26.

小林憲弘, 高木総吉, 木下輝昭, 坂田脩, 仲野富美, 渡辺直人, 野村あづみ, 河相暢幸, 平岩俊也, 奥村学, 古川浩司, 粕谷智浩, 岩間紀知, 米久保淳, 高原玲華, 田中誠也, 土屋裕子, 五十嵐良明. LC/MS/MS による水道水中の有機フッ素化合物 21 種の一斉分析法の開発と妥当性評価, 第 30 回環境化学討論会 (環境化学物質

3 学会合同大会), 富山県富山市, 2022/6/14-16.

渡部春奈, 山岸隆博, 小林憲弘, 阿部良子, 小塩正朗, 山本裕史. 影響指向型解析を用いた公共用水域の生態影響評価と原因化学物質の探索, 第 30 回環境化学討論会 (環境化学物質 3 学会合同大会), 富山県富山市, 2022/6/14-16.

小林憲弘, 内野正, 五十嵐良明. ヒト用医薬品の環境モニタリングおよび環境動態予測手法の構築, 第 49 回日本毒性学会学術年会シンポジウム「ヒト用医薬品の環境リスク評価研究の進展と将来展望」, 北海道札幌市, 2022/7/2.

Kobayashi, N., Takagi, S., Kinoshita, T., Sakata, O., Nakano, F., Watanabe, N., Nomura, A., Kawai, N., Hiraiwa, T., Okumura, M., Furukawa, K., Kasuya, T., Iwama, N., Yonekubo, J., Takahara, R., Tanaka, S., Tsuchiya, Y., Ikarashi, Y. Development and validation of an analytical method for simultaneous determination of perfluoroalkyl acids in drinking water by liquid chromatography/tandem mass spectrometry, Water and Environment Technology Conference Online 2022 (WET2022-online), (Online), 2022/7/9-10.

小池真生子, 長谷川有紀, 高木総吉, 吉田仁, 安達史恵, 小泉義彦, 中島孝江, 竹中凜代, 山口進康, 大阪府内浄水場のフィプロニルおよびフィプロニル分解物の検出状況と評価, 第 59 回全国衛生化学技術協議会年会, 神奈川県川崎市, 2022/10/31-11/1.

小林憲弘, 土屋裕子, 五十嵐良明. LC-MS/MS を用いた水道水中の陰イオン界面活性剤 (LAS) の分析法の検討, 第 57 回日本水環境学会年会, 愛媛県松山市, 2023/3/15-17.

高木総吉, 小林憲弘, 吉田仁, 土屋裕子, 村田楓果. LC-MS/MS を用いた水道原水および水道水中 PFBA の分析における注意点, 第 57 回日本水環境学会年会, 愛媛県松山市, 2023/3/15-17.

吉田仁, 高木総吉, 安達史恵, 小池真生子, 山口進康, 小林憲弘, 土屋裕子. LC-QTOFMS による河川水中の農薬類ターゲットスクリーニング分析法の定量精度, 第 57 回日本水環境学会年会, 愛媛県松山市, 2023/3/15-17.

木下輝昭, 山崎貴子, 栗田翔, 小田智子, 中嶋順一, 猪又明子. 環境水中農薬類における

GC/MS スクリーニングメソッドの作成及び解析, 第 57 回日本水環境学会年会, 愛媛県松山市, 2023/3/15-17.

小林憲弘, 土屋裕子, 五十嵐良明. 水道水質検査方法におけるヘリウムガス供給問題への対応, 日本薬学会第 143 年会 環境・衛生部会衛生試験法シンポジウム: 水環境における化学物質分析の最新動向, 北海道札幌市, 2023/3/26-28.

高木総吉. 水環境中 PFAS の分析法と存在実態の現状と課題, 日本薬学会第 143 年会環境・衛生部会衛生試験法シンポジウム: 水環境における化学物質分析の最新動向, 北海道札幌市, 2023/3/26-28.

## 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

### <ウイルス分科会>

小田 琢也	神戸市水道局 水質試験所
佐藤 啓貴	埼玉県企業局 水質管理センター
田中 宏憲	千葉県企業局 水質センター
藤原 俊一郎	京都市上下水道局 技術監理室 水質管理センター
鳥居 将太郎	東京大学 大学院工学系研究科
Vu Duc Canh	東京大学 大学院工学系研究科
佐野 大輔	東北大学 大学院工学研

	究科
門屋 俊祐	東京大学 大学院工学系研究科
三浦 耀平	東北大学 大学院工学研究科

### <細菌・寄生虫分科会>

大河内 由美子	麻布大学生命環境科学部
中西 智宏	京都大学大学院工学研究科
鎌田 智子	神奈川県内広域水道企業団浄水部
北沢 和	川崎市上下水道局
古川 紗耶香	青森市企業局水道部
安原 雄作	九十九里地域水道企業団浄水課
橋本 温	県立広島大学生命環境学部
黒木 俊郎	岡山理科大学獣医学科
井上 亘	神戸大学大学院農学研究科
武藤 千恵子	東京都健康安全研究センター薬事環境科学部
梅津 萌子	東京都健康安全研究センター薬事環境科学部
瀧野 博之	国立保健医療科学院生活環境研究部
小久保 敦啓	(株) 江東微生物研究所
小澤 克行	(一財) 千葉県薬剤師会検査センター

### <無機物分科会>

山田 俊郎	北海学園大学 工学部 社会環境工学科
森川 武弘	札幌市水道局給水部水質管理センター
油川 一紀	青森市企業局水道部横内浄水課
松原 冬彦	新潟市水道局 技術部水質管理課
寺中 郁夫	埼玉県水質管理センター 監視・支援担当
広木 孝行	東京都水道局 水質センター 検査課検査調整担当
小平 哲広	川崎市上下水道局 水道水質課
林 幸範	横須賀市上下水道局 技



	術部 浄水課
吉村 誠司	大阪市水道局 工務部 水質試験所

<化学物質・農薬分科会>

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
中沢 禎文	国立保健医療科学院生活 環境研究部水管理研究領 域
上條 宏滋	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 管理課
神谷 航一	茨城県企業局水質管理セ ンター
金敷 毅	千葉県企業局水質センタ ー
荒井 活人	東京都水道局水質センタ ー
小舘 一雅	神奈川県内広域水道企業 団浄水部広域水質管理セ ンター
金子 透	神奈川県内広域水道企業 団浄水部綾瀬浄水場
高橋 英司	新潟市水道局技術部水質 管理課
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
高林 泰斗	奈良県水道局広域水道セ ンター水質管理センター
木村 英雄	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 施設部浄水管理課水質セ ンター
仲宗根 卓志	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

<消毒副生成物分科会>

田子 大幹	茨城県企業局
渡邊 みどり	北千葉広域水道企業団
広木 孝行	東京都水道局
新井 和也	川崎市上下水道局
岸本 由紀子	神奈川県企業庁
岩谷 健斗	京都市上下水道局
今中 壮一	大阪市水道局
杉野 学	大阪広域水道企業団
片木 孝徳	阪神水道企業団
山中 俊弥	奈良県水道局
平良 和代	沖縄県企業局
小牧 裕佳子	静岡県立大学

<臭気分科会>

今井 美江	東京都水道局
岩谷 健斗	京都市上下水道局
古賀 舞香	福岡市水道局
清宮 佳幸	千葉県企業局
庭山 秀一	新潟市水道局

<リスク評価管理分科会>

鈴木 俊也	東京都健康安全研究セン ター・薬事環境科学部 医 薬品研究科長
西村 哲治	帝京平成大学・大学院・環 境情報学研究科・教授
小林 憲弘	国立医薬品食品衛生研究 所・生活衛生化学部・第 3 室長
井上 薫	国立医薬品食品衛生研究 所・安全性予測評価部・第 1 室長
山田 隆志	国立医薬品食品衛生研究 所・安全性予測評価部・第 4 室長
小野 敦	国立医薬品食品衛生研究 所・安全性予測評価部・客 員研究員
江馬 眞	国立医薬品食品衛生研究 所・安全性予測評価部・客 員研究員
山口 治子	国立医薬品食品衛生研究 所・安全性予測評価部・協 力研究員
馬野 高昭	国立医薬品食品衛生研究 所・安全性予測評価部・第 3 室
磯 貴子	国立医薬品食品衛生研究

	所・安全性予測評価部・第3室
重田 善之	国立医薬品食品衛生研究所・安全性予測評価部・第3室
村田 康允	国立医薬品食品衛生研究所・安全性予測評価部・第3室
広瀬 望	国立医薬品食品衛生研究所・安全性予測評価部・第3室
川村 智子	国立医薬品食品衛生研究所・安全性予測評価部・第4室

<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 生活衛生化学部
土屋 裕子	国立医薬品食品衛生研究所 生活衛生化学部
村田 楓果	国立医薬品食品衛生研究所 生活衛生化学部
吉田 仁	地独) 大阪健康安全基盤研究所 衛生化学部
安達 史恵	地独) 大阪健康安全基盤研究所 衛生化学部
小池 真生子	地独) 大阪健康安全基盤研究所 衛生化学部
赤木 航	地独) 大阪健康安全基盤研究所 衛生化学部
鈴木 俊也	東京都健康安全研究センター 薬事環境科学部
木下 輝昭	東京都健康安全研究センター 薬事環境科学部
栗田 翔	東京都健康安全研究センター 薬事環境科学部
山崎 貴子	東京都健康安全研究セン

	ター 薬事環境科学部
小田 智子	東京都健康安全研究センター 薬事環境科学部
上村 仁	神奈川県衛生研究所 理化学部
仲野 富美	神奈川県衛生研究所 理化学部
橋本 博之	千葉県衛生研究所
神力 絢子	千葉県衛生研究所
大西 健太	埼玉県衛生研究所
峯岸 俊貴	埼玉県衛生研究所
大窪 かおり	佐賀県衛生薬業センター
坂本 晃子	佐賀県衛生薬業センター
北原 健一	佐賀県衛生薬業センター
小嶋 隼	埼玉県水質管理センター
竹内 謙太郎	埼玉県水質管理センター
金井 正和	川崎市上下水道局
古口 健太郎	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
山本 剛	米子市水道局
粕谷 智浩	一財) 千葉県薬剤師会検査センター 技術検査部
松澤 悠	一財) 千葉県薬剤師会検査センター 技術検査部
山口 和彦	一財) 千葉県薬剤師会検査センター 技術検査部
中村 弘揮	一財) 岐阜県公衆衛生検査センター 検査分析部
岩間 紀知	一財) 岐阜県公衆衛生検査センター 検査分析部
古川 浩司	一財) 三重県環境保全事業団 調査部
門上 希和夫	北九州市立大学 環境技術研究所