

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

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

浄水処理プロセスにおけるウイルス除去を示す遺伝子マーカーとして、トウガラシ微斑ウイルス（PMMoV）の有効性を示すことを目的として、表流水を水源とする国内 21 箇所の浄水場において原水試料を収集し、ノロウイルス GII, ロタウイルス A（RVA）および PMMoV の汚染実態を調査した。3 年間に渡る実態調査の結果、PMMoV はヒト病原ウイルスよりも高い濃度で原水に含まれ、ウイルス除去指標として有用であることをサポートするデータが蓄積された。凝集-MF 膜ろ過処理、UF 膜ろ過処理を実施している実浄水場における PMMoV の除去率はそれぞれ、0.6–1.5 log, 1.7→2.6 log であった。塩素耐性が高いコクサッキーウイルス B5 型（CVB5）の 9 log 不活化に必要な CT 値は pH 7.0 で 40 mg-Cl<sub>2</sub>-min/L 程度、pH 8.0 では 100 mg-Cl<sub>2</sub>-min/L 程度であった。しかし、野生株の一部は基準株と比して 2.3 倍遊離塩素耐性が高いことから、種内の遊離塩素耐性の違いを考慮する必要がある。水道事業体の水質担当者がろ過水や浄水中の PMMoV を検査する方法を検討し、10<sup>3</sup> copies/L のオーダーの濃度を簡便に検出できることを示した。

従属栄養細菌に関する実態調査を全国 21 浄水場の原水などについて行った。一般細菌数との間に相関関係が確認されたが、従属栄養細菌数は一般細菌数よりも再増殖の影響を受けやすく、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。従属栄養細菌の再増殖は自由活性アメーバ(FLA)の再増殖確認日より 3-12 日前に確認されたことから、従属栄養細菌数が FLA 再増殖の先行指標となりうる可能性が指摘された。遊離残留塩素が 0.4 mg/L 以上の大半の試料でレジオネラ属菌の遺伝量が定量下限未満であった。

水道におけるクリプトスポリジウム対策の向上を目指して、原水におけるクリプトスポリジウム等の汚染実態の把握、顕微鏡検査を遺伝子検査で補うこと、顕微鏡検査の精度管理を行うこと、下水の検査による検査感度の向上について検討した。

平成 30 年～令和 2 農薬年度間で農薬製剤出荷量に変化はなかった。農薬原体の出荷量が減少傾向にあるが、登録農薬原体数も平成 30 農薬年度以降は増減がなかった。令和元年度～3 年度の農薬類実態調査の結果、河川水では 111 種類、原水では 108 種類、浄水では 48 種類の農薬および分解物が検出された。個別農薬評価値は、河川水では特にテフリトリオンが高い値を示し、それ以外ではイプフェンカルバゾン等が高い値を示した。原水ではモリネートも高い値を示した。エチプロールの主な塩素処理分解物としてエチプロールスルホンが推察された。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。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。代謝を考慮した ChE 活性阻害試験の結果メチダチオンとピリダフェン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 浄水場での有機フッ素化合物 (PFASs) の実態調査の結果、原水からは 18 種中 9 種が、浄水からは 21 種中 9 種が検出された。目標値 (50 ng/L) を超える試料は無かった。粉末活

活性炭処理では PFAS の除去率は Log D が小さい（親水性が高い）ほど除去率が低かった。重金属に関連する給水栓水調査の結果、通常使われている家庭等の蛇口のごく初流水で鉛の基準値を超過する場合があります、過去の試買試験の解析により青銅製の蛇口からの溶出が多いことが分かった。また樹脂を材質とする給水栓の浸出性能試験で鉛が検出される場合やニッケルの水質管理目標設定項目目標値の 1/10 を超過する事例があることなどが分かった。

ハロアセトアミドの濃度はトリハロメタン (THM) に対応するが、浄水中では THM の 1 割程度以下であった。塩素酸が 0.2 mg/L を超えている地点では、高次亜塩素酸注入量や貯留槽温調の未設、継ぎ足し方式補充が原因と推察された。淀川水系周辺で 3,5-ジメチルピラゾール及びその塩素化物が検出された。浄水処理対応困難物質 (1,3,5-トリヒドロキシベンゼン、アセチルアセトン及びアセトンジカルボン酸) はオゾン・粒状活性炭 (GAC) 処理で除去が有効である。標準天然有機物試料のジクロロベンゾキノン (2,6-dichloroquinone-4-chloroimide(DCQC)) 生成能が高い画分は、UV254 の吸収を持つ画分であることを示した。p-芳香族アミン類から比較的高濃度で p-quinone-4-chloroimide (QC) が生成することを示した。ハロベンゾキノン類の細胞毒性の強さは QC >> DCQC > DCBQ であった。マンガンイオンはクエン酸および類似物質のハロ酢酸生成能を増加させることを示した。珪藻類オーラコセイラの塩素処理により、薬品臭を有する 1-hexen-3-one が生成する。全国調査では、消毒副生成物は、THM、トリハロ酢酸、トリハロアルデヒド、ジハロ酢酸、ジハロアセトニトリルの順に濃度は高かった。塩素化体の消毒副生成物濃度は関連性があった。ブロモクロ酢酸、ブロモジクロ酢酸の検出率は、それぞれ目標値案の 40%超、50%超であった。未規制消毒副生成物の濃度と基準項目には多くの物質について緩い関係性があった。オゾン注入率が高くなると、オゾン処理でシアン化合物が増加するが、GAC 処理は有効であった。

全揮発性窒素化合物 (TPN) をカルキ臭 (臭気強度 >70) の管理に用いることができる可能性が示された。原水の塩素処理水のカルキ臭物質としてベンズアルデヒドの可能性が示され、珪藻類が多く含まれる原水の塩素処理においてもトリオキサンやベンズアルデヒドの可能性が示唆された。第二、三級アミンよりも第一級アミンは臭気生成能が高く、多くの場合トリクロラミンが主なカルキ臭原因物質であり、TPN へもトリクロラミンが主に寄与していたが、いくつかの窒素化合物ではトリクロラミン以外が臭気強度と TPN へ大きく寄与することが示唆された。二段階塩素処理は、アンモニア由来のトリクロラミンと TON を低減したが、アミン類由来のものに対しては低減しなかった。Br が共存すると、トリクロラミンの生成が低下したが、TON がほとんど変わらないことから、カルキ臭を有する臭素化物の生成が推察された。実浄水場浄水でメチルアミン、エチルアミン・ジメチルアミンが検出されたが、カルキ臭への寄与は限定的と推察された。シクロヘキシルアミンはオゾン-活性炭処理にて 70%~程度の除去に留まったのに対し、それと塩素の反応で生成される臭気物質である N,N-ジクロロシクロヘキシルアミンは、粉末活性炭、あるいはオゾン処理でほぼ完全に除去できた。アンケート調査により、水道事業者では塩素臭以外の臭気を対象としていたが、臭気の場合は残留塩素を消去せずに、臭気強度の場合は消去している事業者と消去していない事業者があることが分かった。

揮発経由の吸入曝露や経皮曝露を合算評価すると、ベンゼンの評価値は水質基準値の半分程度となった。ジクロロメタンと四塩化炭素に関しては、現行の水道水質基準値濃度の水道水の利用で耐容一日摂取量 (TDI) の超過が生じる可能性は低いと算定された。短期的な水道水質汚染が生じた際に参考とすべき参照値として水道水質基準項目のうち 6 項目について亜急性参照

値を設定した。カドミウム、セレン、水銀の亜急性参照値は基準値の3～10倍以上の値となったが、ヒ素、鉛及び六価クロムの亜急性参照値は基準値と同値となった。水道水中の目標値が設定されていない要検討項目に対する毒性情報を収集し6項目について水道水中目標値の試算した。1,3-ブタジエン、ヒドラジン、ブromokloro酢酸、ブromojikloro酢酸はそれぞれ0.025, 0.005, 0.01, 0.01 mg/Lと低い値となった。有機フッ素化合物の目標値はPFOS：50～158 ng/L, PFOA：7～210 ng/Lと試算され、現行の暫定目標値を含む範囲であった。

陰イオン類のLC/MS/MS一斉分析条件とバリデーション試験も実施し、塩素酸、硝酸態窒素、亜硝酸態窒素、亜塩素酸、過塩素酸の分析条件を確立した。GC-MSによる水道水中農薬のスクリーニング分析を検討した。同一のデータベースを用いた場合、試料毎の検出農薬数の傾向は、国立衛研と一致した。さらに、データベース作成時と試料測定時の装置状態の違いによる定量誤差について検証し、同一の装置で作成した検量線データベースを用いた場合は、ほとんどの農薬が5倍以内の定量誤差で測定できた。定量誤差の要因として装置感度の変化が考えられたことから、装置感度を良好な状態に保つことが重要である。また、水道水質検査対象の農薬類を中心に222種の農薬類について、LC-QTOFMS（液体クロマトグラフ-四重極飛行時間型質量分析計）を用いたスクリーニング分析法用のデータベースを構築した。この方法では、データを再解析することにより、後からデータベースに追加した農薬類も同定・定量できる。実試料から同定された74種の農薬類の約86%が濃度比0.5～2.0で分析可能であることがわかった。また、揮発性有機化合物（VOC）25成分を対象に、ヘリウム代替キャリアーガスとして窒素を用いた分析条件について検討し、水質基準項目のVOCについては水質基準の1/10の定量下限を確保し、真度・併行精度の妥当性の目標を満たした。

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

研究分担者	所属機関	職名
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	主幹研究員
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	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

		官
鎌田 素之	関東学院大学 理工学部	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（ウイルス）：**水道における病原ウイルスのリスク管理方法として、浄水処理プロセスにおけるウイルス除去の指標としてトウガラシ微斑ウイルス（PMMoV）を用いること、および塩素消毒による病原ウイルスの不活化を保証するパラメータとしてCT値（C: 遊離塩素濃度 × T: 接触時間）を用いることを検討した。令和元年度から令和3年度にかけては、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のPMMoVの有効性、塩素消毒における病原ウイルスの不活化を保証する条件、および水道事業者の水質担当者が実施しやすいPMMoV検査方法を示すことを目的として、以下に示す研究タスクを実施した。1) 水源における病原ウイルスおよびPMMoVの濃度変動調査。2) PMMoVよりもロタウイルスA（RVA）濃度が高かった原水試料に含まれるRVAの遺伝子型解析。3) 表流水を水源とする国内21箇所の浄水場におけるろ過水および浄水中のPMMoVの実態調査。4) 凝集-MF膜ろ過処理におけるPMMoVの除去性評価。5) 実浄水場のUF膜ろ過処理におけるPMMoVの除去性評価。6) 塩素処理における病原ウイルスの不活化特性評価。7) 遊離塩素、紫外線、オゾン処理によるウイルスの不活化効率。8) ウイルス種内の遊離塩素耐性分布幅を考慮した不活化モデルの構築。9) 水質による遊離塩素耐性分布幅が全体不活化率の推定に及ぼす影響評価。10) 水道水中のPMMoV検査方法の検討。

## 微生物（細菌）：

細菌汚染として従属栄養細菌、そして再増殖可能な病原細菌としてレジオネラ属菌に着目し、下記の検討を行うこととした。水質基準項目である一般細菌数と水質管理目標設定項目である従属栄養細菌数の関係性について評価する。文献調査ならびに室内実験により残留塩素消失過程におけるレジオネラ属菌、従属栄養細菌数、自由生活性アメーバ(FLA)の再増殖を調べ、レジオネラ汚染に対する従属栄養細菌の指標性とレジオネラ汚染の制御方法を検討する。あわせて、生物活性炭処理での細菌類の挙動に関する情報を整理する。

## 微生物（寄生虫等）：

日本全国の水道原水から年50件ほどの汚染が報告され、11年間にクリプトスポリジウムは618件、ジアルジアは573件あった。関東地方に検出が多かったものの、全国的な分布を示し、場所によらず汚染に注意を要すると考えられた。

水道原水の定期検査で、特異蛍光抗体で染色されるジアルジア大の粒子が観察されたが、核の配置が従来の鑑別基準から外れていたため、ジアルジアとは判断されていなかった。遺伝子検査でRT-PCRが陽性となり、げっ歯類の*Giardia microti*の塩基配列が得られた。取水地点より上流を調査し、河川水と野生のネズミの糞便から同じ塩基配列が検出された。顕微鏡検査が遺伝子検査によって補われ、耐塩素性病原微生物の排出源が想定外に明らかとなった。

クリプトスポリジウム検査の訓練により検査技術の維持が確認できた。しかし、クリプトスポリジウム検査は煩雑な作業を要し、回収率が変動することがあり、定期的な訓練の必要性を改めて認識した。陽性コントロールと河川水試料を統一し、5事業者間の添加回収試験を行い、回収率は概ね50%以上と良好であった。試験者や事業者の間で特段の問題はなく、検査結果の共有と比較が可能と考えられた。これまでクリプトスポリジウム検査の精度管理には注意が払われておらず、訓練と施設間の精度管理を例示することで今後の改善を期待した。

下水道事業体の協力を得て、計 22 箇所から 137 試料を検査した。下水放流水 3 試料からクリプトスポリジウムが検出された。ジアルジアは、32 試料と検出が多かった。対象地域内ではこの期間にクリプトスポリジウム症とジアルジア症の届出がなかった。従来の河川水の検査は 1 個/10L の検出限界で行われてきたが、下水放流水は 1 個/L で行っても汚染の恐れを判断する目的には十分と考えられた。下水の検査による感度の向上は有用と考えられた。

**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。有機りん系農薬について、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。農薬以外の化学物質では、有機フッ素化合物 (PFASs) を対象に、全国の浄水場での実態調査を行った。

重金属に関連しては、食品安全委員会において鉛ばく露低減のための取組が必要であるとされているも、鉛製給水管の残存延長が > 4,000km であることを踏まえて、給水栓水調査結果の解析と給水装置浸出試験等の情報収集と解析を行った。

**消毒副生成物：**ハロアセトアミド類 (HAcAms)、塩素酸、塩素化パラベン、浄水処理対応困難物質、臭気物質、ハロベンゾキノン類 (HBQs)、ハロ酢酸、トリハロメタン等を対象に、生成実態、分析技術、低減策、合理的な管理手法について調査することを目的とした。より詳細は以下の様である。

ハロアセトアミド類については実態調査、ハロアセトアミドの長期トレンド、生成条件および処理性を行った。塩素酸の小規模施設における検出状況、塩素酸濃度に及ぼす施設規模の影響など実態を調査し、塩素酸が水質基準を超過した事例の原因を調査するとともに対策を講じた。塩素化パラベン類に関する調査を行った。浄水処理対応困難物質として 3,5-ジメチルピラゾールなどの存在実態やオゾン処理及び粒状活性炭処理による処理性についての調査を行なった。消毒副生成物のモニタリングと制御

に関しては、ラフィド藻の発生状況と消毒副生成物濃度の関係、消毒副生成物と蛍光有機物質との関連、生物活性炭吸着における粒状活性炭更生後のトリハロメタン (THM) 生成能の変化、粒状活性炭 (GAC) 吸着池での消毒副生成物生成能の除去、豪雨時の消毒副生成物の生成、マンガンイオンが消毒副生成物に与える影響に関して調査を行った。天然有機物 (NOM) を用いて有機態窒素に着目し、ハロベンゾキノン類の前駆物質として特性解析を行い、さらにハロベンゾキノン類の細胞毒性を評価した。臭気を発する消毒副生成物として、珪藻類オーラコセイラを塩素処理した際に生じる臭気について実験的に評価を行った。シアン化合物の生成能及び生成量、生成しやすい条件を調査した。

全国の浄水場における消毒副生成物の網羅的調査を行った。トリハロメタン等の現行の基準項目が、これら未規制項目のマーカースとして利用できるか文献と事業体から提供されたデータをもとに基づき検討した。

**臭気物質：**臭気の原因、対策、分析法に関して次のような検討を行うこととした。カルキ臭原因物質としてトリクロラミンなど揮発性窒素化合物が報告されている。そこで定量分析可能な TPN (全揮発性窒素化合物) を取り上げ、測定条件について検討し、臭気強度などとの関連を調査する。多種の窒素化合物を対象に、カルキ臭生成特性について、臭気強度 (TON)、TPN、トリクロラミンの視点から評価した。さらに、未同定カルキ臭原因物質の構造推定を行った。アミン類は塩素と反応し有機クロラミンを生成して、それが異臭味の原因となる可能性があることから、低分子量のアミン類の誘導体化 GC/MS による分析を検討した。また、GC/olfactometry (GC/O) のクロマトグラムの詳細解析により、塩素処理由来の臭気原因物質や珪藻類増殖時の浄水異臭味物質の特定を試みた。

塩素処理により生成する臭気物質およびその前駆物質等について、粉末活性炭処理と高度浄水処理 (オゾン処理+生物活性炭処理) での処理性を調査した。アンモニアを含む種々の含窒素化合物を対象に、二段階塩素処理によるカルキ臭抑制効果、および Br の共存影響について、TON、TPN、トリクロラミンの視点から評価した。

また、臭気に関連する検査法について、水道事業体がどのような条件で検査しているかを調査するとともに、カルキ臭対応集としてカルキ臭原因物質や前駆物質の分析方法、低減方法

について整理した。

#### リスク評価管理：

揮発性を考慮した評価値、亜急性評価値、「要検討項目」や PFOA 及び PFOS の毒性情報整理と目標値の導出について検討することとした。

水道水質基準値の多くは、水道水からの直接飲水による経口曝露を想定し、飲水量を 2 L/day のデフォルト値としている。しかし、揮発性物質の間接曝露量や飲水量の個人差は十分に検討されていない。ベンゼン、ジクロロメタン、四塩化炭素の間接曝露と曝露量分布を考量した評価値を検討した。

要検討項目 45 項目中 20 項目について目標値が設定されていないことから、その内、6 項目について、毒性情報を収集し、水道水中目標値の算出を試みることにした。さらに、ペルフルオロオクタンスルホン酸 (PFOS) 及びペルフルオロオクタン酸 (PFOA) は、一部の水源で検出され、国内での関心が高まっていることから、これらの毒性情報を整理し、PBPK モデルを用いた評価値の導出方法の適用について検討を行うことにした。

一方で、水道水質基準値等は生涯曝露を想定して設定されているものであることから、一時的な基準値・目標値超過時について曝露期間などを考慮して毒性情報を検討しておく必要がある。本研究では、水質基準項目から 25、水質管理目標設定項目 9、要検討項目 15 について、亜急性評価値 [Subacute Reference Dose; saRfD (mg/kg/day)] を算出し、短期的な水道水質汚染が生じた際に参考とすべき水道水中濃度[参照値 (mg/L)]の算出も行った。

**水質分析法：**塩素酸、硝酸態窒素、亜硝酸態窒素、亜塩素酸、過塩素酸の LC/MS(MS)一斉分析条件を確立し、12 機関によるバリデーション試験を実施した。

ガスクロマトグラフィー質量分析 (GC/MS) における保持時間、マススペクトル、検量線の情報を予めデータベースに登録し、検査時には標準品を測定せずに、データベースに登録された情報を用いて定性・定量を行う GC/MS ターゲットスクリーニング分析法に関して、以下の検討を行なった。アジレント・テクノロジー社の装置を用いて農薬スクリーニング分析データベースを構築した。また、スクリーニング分析法のバリデーション試験を実施し、同一のデータベースを用いた場合の機関による定性・定量結果の違いについて解析した。さらに、島津製作所と日本電子の 2 台の装置で合計 7 回作成し、各農薬の検量線の傾きや、それらの検量

線から得られる定量値を相互に比較した。

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開発に関しては、データベースの構築を行い、実試料への適用を行った。また、定量精度を向上させるためにデータベースの再構築を実施し、農薬類スクリーニング法の定量精度を実試料により検証した。

また近年、GC/MS のキャリアーガスおよびパージ・トラップ (PT) のパージガスに用いるヘリウムガスの入手が困難になっていることから、ヘリウム代替キャリアーガスとして窒素を用いた揮発性有機化合物の分析条件について検討した。

## 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 (ウイルス)、微生物 (細菌)、微生物 (寄生虫等)、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 15 名の他に 50 もの水道事業者や研究機関などから 125 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、微生物 (ウイルス) 分科会 (研究分担者 4 名、研究協力者 8 名)、微生物 (細菌) (研究分担者 1 名、研究協力者 3 名)、微生物 (寄生虫等) (研究分担者 1 名、研究協力者 12 名)、化学物質・農薬分科会 (研究分担者 3 名、研究協力者 29 名)、消毒副生成物分科会 (研究分担者 3 名、研究協力者 21 名)、臭気分科会 (研究分担者 3 名、研究協力者 4 名)、リスク評価管理分科会 (研究分担者 2 名、研究協力者 16 名)、水質分析分科会 (研究分担者 2 名、研究協力者 42 名) である。

微生物 (ウイルス)、微生物 (細菌)、微生物 (寄生虫等)、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

### (1-1) 微生物 (ウイルス)

本研究では、浄水処理プロセスにおけるウイルス除去を示す遺伝子マーカーとして、トウガラシ微斑ウイルス (PMMoV) の有効性を示すことを目的として、表流水を水源とする国内 21 箇所の浄水場において原水試料を収集し、ウイルスの表流水中存在形態に関する情報も収集しながら、ノロウイルス GII, ロタウイルス A (RVA) および PMMoV の汚染実態を調査した。3 年間に渡る実態調査の結果、PMMoV は病原ウイルスよりも概ね高い濃度で原水に含まれ、ウイルス除去指標として有用であることをサポートするデータが蓄積された (図 1)。PMMoV はノロウイルス GII よりも濃度が高く、ノロウイルス GII が陽性だった試料は、すべて PMMoV も陽性だった。また、PMMoV は、ほとんどの試料において RVA よりも濃度が高かったが、都市排水が含まれないと考えられる一部の水源では、RVA の濃度の方がわずかに高かった。RVA の遺伝子型を詳細に解析しヒト健康リスクを適切に評価することを目的として、RVA の遺伝子型特定領域を高感度に増幅し、次世代シーケンサーを用いて解析する手法を新たに開発した。開発した手法を PMMoV よりも RVA 濃度が高かった 7 地点の浄水場原水試料に適用したところ、ウシやブタの RVA 遺伝子型が高頻度で検出された。一方で 2 箇所の浄水場では、雨天時に採水された試料においてヒトの RVA 遺伝子型が優占して検出され、ヒト糞便による汚染も明らかになった。RVA の遺伝子型を解析することで汚染源となる宿主動物を特定できること、およびその重要性が示された。

国内 21 箇所の浄水場において 3 年間に渡ってろ過水および浄水試料 (それぞれ N=105) を収集し、PMMoV の実態を調査した。PMMoV は、ろ過水で 4.8–43%, 浄水で 9.5–48% の試料から検出され、濃度の最大値はろ過水、浄水ともに  $3.4 \log_{10}$  copies/L だった。

凝集–MF 膜ろ過処理を実施している国内の浄水場 Y における PMMoV の処理性を PCR 法で評価した。その結果、ウイルスの除去率は  $0.6–1.5 \log$  であり、5 回の採水において得られた平均値は  $1.0 \log$  だった。この値は、浄水場 Y の凝集–MF 膜ろ過処理を模した室内実験において得られた PMMoV の除去率と同程度であったことから、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ことが示された。また、UF 膜ろ過処理を実施している国内の浄水場 Z における PMMoV の除去率を

評価した。計 5 回の採水において、浄水場 Z の UF 膜ろ過処理による PMMoV の除去率は  $1.7–>2.6 \log$  であり、除去率の平均値 (定量下限値以下の値を除く) は  $2.1 \log$  となったことから、UF 膜ろ過処理のウイルス除去への有効性が示された。

塩素消毒における病原ウイルスの不活化を保証する CT 値を検討することを目的として、高不活化率を評価可能な大容量の実験系を用いることにより、塩素消毒の対象となる水 (塩素処理対象水) の水質の差異がコクサッキーウイルス B5 型 (CVB5) の不活化率に与える影響を評価した。その結果、塩素処理対象水の pH は、CVB5 の不活化に大きく影響し、pH 7.0 のリン酸バッファーを用いた場合においては、 $9 \log$  不活化に必要な CT 値は  $40 \text{ mg-Cl}_2\cdot\text{min/L}$  程度であったのに対し、pH 8.0 においては、 $100 \text{ mg-Cl}_2\cdot\text{min/L}$  程度の CT 値が必要であることが明らかとなった (図 2)。一方、実際の塩素消毒が行われている実浄水場の砂ろ過水 (pH 7.1–7.2) を用いた場合の CVB5 の不活化率は、pH 7.0 のリン酸バッファーを用いた場合と概ね同程度であったことから、塩素処理対象水 (濁度が管理されている水) の pH が同程度の場合においては、水質の差異がウイルスの不活化に与える影響は小さいものと判断された (図 3)。本研究でこれまでに PMMoV の除去性を評価した浄水場 X, Y, Z においては、塩素消毒として配水池出口に至るまでに少なくとも  $840–1,300 \text{ mg-Cl}_2\cdot\text{min/L}$  の CT 値が確保されていた。配水池の出口でこの程度の CT 値が確保されていれば、塩素処理対象水の水質の差異を考慮した場合であっても、浄水場で実施されている塩素消毒により病原ウイルスの  $9 \log$  不活化は達成されていると判断された。

2002–2018 年に富山県内の下水処理場の流入水、河川水中から検出されたコクサッキーウイルス B3 型 (CVB3), CVB4, CVB5, エコーウイルス 11 型 (E11) の野生株、およびそれぞれの基準株を用いて、遊離塩素、紫外線、およびオゾンによる処理性を評価した。その結果、UV<sub>254</sub> 耐性に大きな違いは見られなかった一方で、遊離塩素やオゾンの耐性は大きく異なり、基準株からの遺伝的な変異に伴い遊離塩素耐性やオゾン耐性も株間で異なることが明らかになった。遊離塩素では基準株と比して 2.3 倍、オゾンでは 2 倍程度高い耐性を有す株が存在した。実験室株データを用いて遊離塩素及びオゾンによるウイルス不活化効率を推定する際は、実プラントの除去率が過大評価される可能

性が示された。実際の水環境中には多様なウイルスが含まれるため、耐性の違いを考慮して不活化を予測する必要がある。

塩素処理済み 2 次処理水が流量の多くを占める多摩川、相模川にて F 特異 RNA フェージ GI 型株を単離し、遊離塩素消毒試験を実施した。その結果、GI 型野生株の 86% で、実験室株 MS2、fr よりも塩素耐性が高かった（多摩川では、野生株 18 株中の 13 株、相模川では 17 株すべてで塩素耐性は、実験室株 MS2 と比べて有意に高かった）。さらに、実験室株 MS2 の 8 log 不活化が期待できる CT 値で、多摩川、相模川に存在する GI 型フェージを消毒した場合、GI 型野生株の全体不活化率が 5.3–5.6 log と算定された。実験室株 MS2 に基づく不活化効果の推定では、実際の不活化率を 2.4–2.7 log 程度過大評価する可能性がある。一般に、ウイルスの消毒効果を議論する際に実験室株を用いた実験の知見が用いられることを考慮すると、環境水中のウイルスの消毒効果を推測する際は、種内の遊離塩素耐性のばらつきを算入した不活化モデルを採用すべきである。さらに、塩素耐性が高いことが報告されるエンテロウイルスを幅広く調査し、遊離塩素耐性の高いウイルスを同定した。CVB5 はほかのエンテロウイル

スの遺伝型と比べて塩素耐性が高かった。また、CVB5 内では実験室株と比べて野生株の方が塩素耐性が高かった。その後、水道水質がウイルスの不活化に与える影響を調査し、年間を通じて 8 log の不活化を達成するために必要な遊離塩素 CT 値の推定を行った。水温を考慮して 8 log 不活化に必要な CT 値を推定した結果、浄水場 α で 27.5 mg・min/L となった（例：残留塩素濃度 0.5 mg/L の場合には、約 1 時間の接触時間でウイルスを 8 log (99.99999%) 不活化が可能）。

水道事業者の水質担当者がろ過水や浄水中の PMMoV を簡便に検査することを想定し、PMMoV を添加した水道水試料を用いて検査方法を検討した結果、Promega Wizard Enviro Total Nucleic Acid Kit を用いることで 40 mL の試料から 40 μL の核酸を抽出・精製することができ、PMMoV 濃度を 10<sup>3</sup> copies/L に調製した試料の 3/3 検体で PMMoV が陽性となった（図 4）。このことから、水道水に 10<sup>3</sup> copies/L のオーダーで含まれる PMMoV を検出できることがわかった。今後は、水道事業者の水質担当者による評価を通じて、本検査方法の有用性および有効性を検証する必要がある。

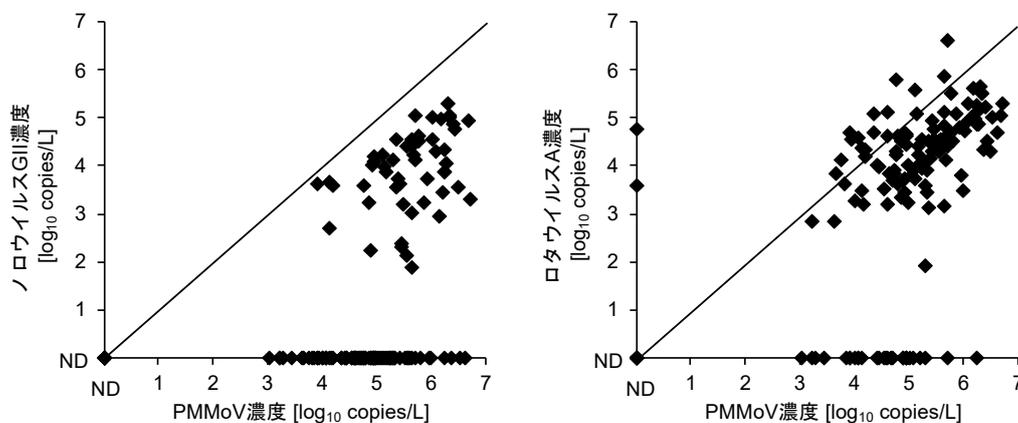


図 1 水道原水中の病原ウイルスと PMMoV 濃度の関係。2018 年 1 月から 2021 年 1 月に採水された合計 147 試料のデータをプロットした。

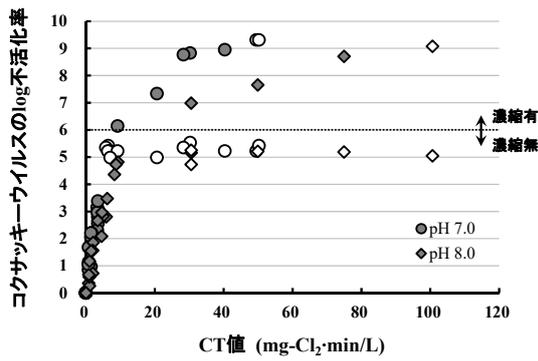


図2 リン酸バッファーを用いた塩素処理における CVB5 の不活化特性. 白抜きの値は定量下限値以下であったため, 定量下限値をプロットした.

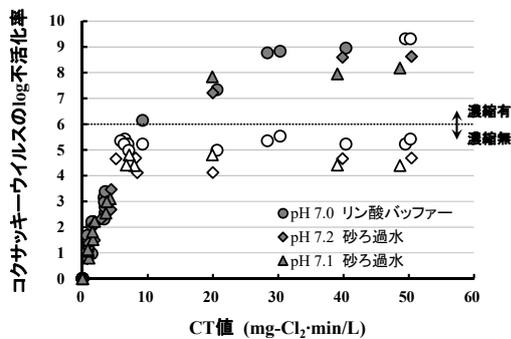


図3 塩素処理対象水の水質の差異が CVB5 の不活化に与える影響. 白抜きの値は定量下限値以下であったため, 定量下限値をプロットした.

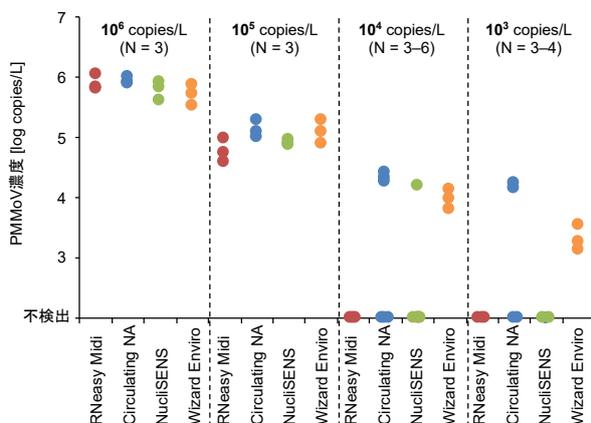


図4 PMMoV 添加水道水試料を用いた RNA 抽出精製キットの比較. PMMoV 濃度が  $10^6$ ,  $10^5$ ,  $10^4$ ,  $10^3$  copies/L となるように調製した水道水試料から, Qiagen RNeasy Midi Kit, Qiagen QIAamp Circulating Nucleic Acid Kit, bioMérieux

NucliSENS, および Promega Wizard Enviro Total Nucleic Acid Kit の4つのキットを用いてウイルス RNA を抽出・精製し, リアルタイム RT-PCR で PMMoV 濃度を定量した.

### (1-2) 微生物 (細菌)

生物活性炭処理での細菌挙動に関する文献情報を整理し, バイオフィームが形成している生物活性炭層(BAC)内ではレジオネラ属菌やマイコバクテリウム属菌などの細菌が定着・再増殖し, 処理水へ流出していく可能性があるため, BAC 処理後にこれらの細菌の流出防止を含む適切な施設運用が重要であることが指摘された.

全国 21 浄水場の原水, ろ過水, 浄水の一般細菌数と従属栄養細菌数の実態調査の測定結果に基づき, 両者の相関性を評価した結果, 回帰式は得られ相関関係が確認されたものの(図5), 浄水, ろ過水において従属栄養細菌数にバラツキが大きく, 細菌類の再増殖による影響であると考えられた. 従属栄養細菌数の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.

従属栄養細菌数とレジオネラ汚染の関係性に関する文献考察ならびに室内実験を行った. 文献調査では, 従属栄養細菌数によるレジオネラ陽性判定が可能とした報告が確認されたが, 相反する報告も多数あり, 従属栄養細菌数レベルとレジオネラ属菌数またはその陽性率の間関係については, 議論継続中であることが明らかとなった. これらの情報に基づき, 従属栄養細菌数とレジオネラ汚染の関係性を定量的に評価するための, 給水システムごとに異なる特性の複合的影響をできるだけ排除可能な実験方法の検討が必要であることを指摘した.

文献調査を踏まえ, 室内試験によりレジオネラ汚染に対する従属栄養細菌数の指標性評価に関する基礎的検討を実施した. まず, 残留塩素消失過程を模擬した微生物再増殖試験を実施した結果, 試験期間中の遊離塩素濃度変化から計算された Ct (concentration × time)値が小さかった試料を中心に塩素処理後の試料からレジオネラ属菌が確認された.

さらに残留塩素濃度が  $0.1$  または  $0.2$  mg/L に調整した塩素処理試料において微生物再増殖試験を実施した結果, レジオネラ属菌の安定的な再増殖は確認できなかったが, 自由活性アメーバ(FLA)は多くの試料で再増殖が起こることが確認された. さらに, 1 試料を除いて, FLA の再増殖確認日より 3-12 日前に従属栄養細菌

の再増殖が確認され、特に再増殖確認日より3日前の従属栄養細菌数が顕著に増加していたことから、従属栄養細菌数がFLA再増殖の先行指標となりうる可能性が指摘された。

レジオネラ汚染の制御方法に関する検討では、山間部に位置する小規模な配水区域を対象としてレジオネラ属菌に関する調査を実施し、管網の流下過程での遊離残留塩素の減少に従ってレジオネラ属菌や従属栄養細菌数が増加していることが確認された。また遊離残留塩素が0.4 mg/L以上の大半の試料でレジオネラ属菌の遺伝量が定量下限未満であったことから(図6)、残留塩素の管理の重要性を改めて指摘した。

さらに、室内実験に基づき、残留塩素による生物膜の不活化、水流による生物膜の剥離、剥離したレジオネラの不活化といった過程を把握し、給水管内のレジオネラ存在量と残留塩素濃度から水道水中のレジオネラ濃度を推定可能な数理モデルを構築できた。また、間欠的な塩素接触条件での生物膜形成やレジオネラ再増殖の過程を把握した。生物膜の形成状況は週0~2回の塩素接触条件で顕著な差は見られなかったものの、レジオネラの再増殖は週1回以上の塩素接触によって抑制される兆しが確認された。

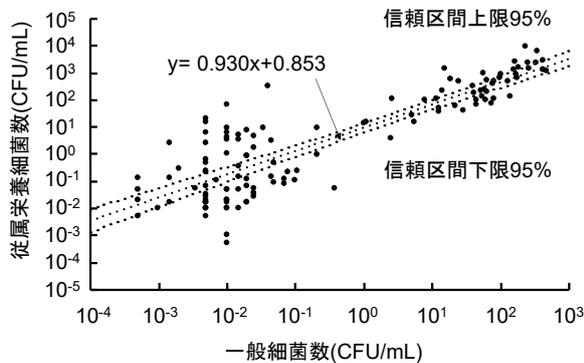


図5 一般細菌数と従属栄養細菌数の関係性評価

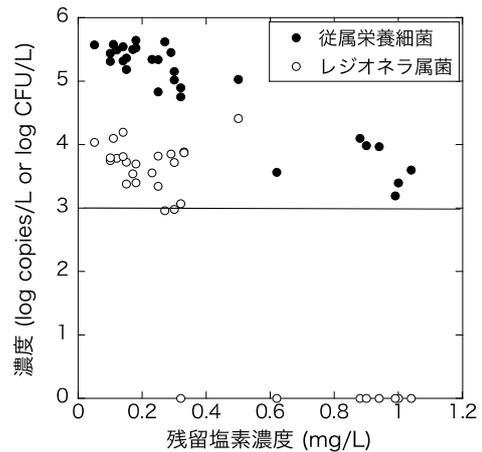


図6 遊離残留塩素濃度と従属栄養細菌/レジオネラ属菌の関係

(実線はレジオネラの定量下限。定量下限未満の検出データは全て0 log copies/Lと表示)

### (1-3) 微生物(寄生虫)

日本全国の水道原水から年50件ほどの汚染が報告され、11年間にクリプトスポリジウムは618件、ジアルジアは573件あった。関東地方に検出が多かったものの、全国的な分布を示し、場所によらず汚染に注意を要すると考えられた。

水道原水の定期検査で、特異蛍光抗体で染色されるジアルジア大の粒子が観察されたが、核の配置が従来の鑑別基準から外れていたため、ジアルジアとは判断されていなかった。遺伝子検査でRT-PCRが陽性となり、げっ歯類の*Giardia microti*の塩基配列が得られた。取水地点より上流を調査し、河川水と野生のネズミの糞便から同じ塩基配列が検出された。顕微鏡検査が遺伝子検査によって補われ、耐塩素性病原微生物の排出源が想定外に明らかとなった。

クリプトスポリジウム検査の訓練により検査技術の維持が確認できた。しかし、クリプトスポリジウム検査は煩雑な作業を要し、回収率が変動することがあり、定期的な訓練の必要性を改めて認識した。陽性コントロールと河川水試料を統一し、5事業体間の添加回収試験を行い、回収率は概ね50%以上と良好であった。試験者や事業体間で特段の問題はなく、検査結果の共有と比較が可能と考えられた。これまでクリプトスポリジウム検査の精度管理には注意が払われておらず、訓練と施設間の精度管理を例示することで今後の改善を期待した。

下水道事業体の協力を得て、計22箇所から137試料を検査した。下水放流水3試料からクリプトスポリジウムが検出された。ジアルジア

は、32 試料と検出が多かった。対象地域内ではこの期間にクリプトスポリジウム症とジアルジア症の届出がなかった。従来の河川水の検査は 1 個/10L の検出限界で行われてきたが、下水放流水は 1 個/L で行っても汚染の恐れを判断する目的には十分と考えられた。下水の検査による感度の向上は有用と考えられた。

## (2) 化学物質・農薬

平成 30 年～令和 2 農薬年度の農薬製剤出荷量は 22.3 万 t, 22.2 万 t, 22.3 万 t とほぼ同じであった。用途別出荷量は、除草剤は増加に転じているがそれ以外はこれまで通り減少傾向にあった。原体数は令和 2 年 9 月現在 596 種類で、農薬原体の出荷量が減少傾向にあるが登録農薬原体数は平成 16 農薬年度以降、増加してきたが平成 30 農薬年度以降、増減がなかった。

農薬製剤の登録農薬製剤数は令和 2 年 9 月現在、4275 となっており、平成元農薬年度に登録製剤数が大きく減少したが、令和 2 農薬年度にはほぼ平成 30 農薬年度の水準に戻っていた。個別の農薬についてみると令和 2 農薬年度において出荷量が 100 t 以上の農薬原体は 44 種類あった。平成 30 年以降新たに 22 種の化学物質が新たに農薬として登録されており、このうち 12 種は水稻適用農薬であった。一方、平成 30 年以降、12 種が農薬登録を抹消されていた。

令和元年度～3 年度の農薬類実態調査の結果、河川水では 111 種類、原水では 108 種類、浄水では 48 種類の農薬および分解物が検出された。検出された農薬の使用用途は除草剤が約半分を占めていた。検出された農薬のうち、対象リスト農薬掲載農薬は、河川水では 63 種、原水では 67 種、浄水では 29 種であった。

検出された農薬のうち検出濃度、個別農薬評価値が高かった農薬類を表 1, 2 に示す。農薬類の検出濃度は、河川水、原水ではそれぞれ 15, 8 農薬の最大検出濃度が 1 µg/L を超過し、浄水では 13 農薬の最大検出濃度が 0.1 µg/L を超過していた。個別農薬評価値は、河川水では特にテフリトリオンが高い値を示し、それ以外ではイブフェンカルバゾン等が高い値を示した。原水ではモリネートも高い値を示した。浄水では、15 農薬の最大個別農薬評価値が 0.1 を超えていた。Σ 値の推移を見ると、これまでの調査と比べて、特に河川水で非常に高い Σ 値が検出され、また、原水では比較的高い Σ 値が検出される頻度が増えているが、浄水の Σ 値は低い値で推移していた。したがって、原水では適切なモニタリングが、浄水ではこれまでの農薬

の検出実施を踏まえ活性炭の注入など適切な対応を講じられた結果と考えられた。

エチプロールを塩素処理したところ、エチプロールは検出されず、分解物が検出され、LC-Q Exactive Focus による解析結果、この物質の推定組成式は  $C_{11}H_5N_4O_3F_3SCl_2$  で、エチプロールスルホンであると推察された。反応時間を変化させて検討したところ、エチプロールの主な塩素処理分解物はエチプロールスルホンで、エチプロールスルホンは塩素の存在下でも比較的安定であり、24 時間後でもその大半が存在していることが確認された。

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。

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、ダイアジノンの塩素処理前後の ChE 阻害はダイアジノンとダイアジノンのオキソン体でほぼ説明された。このことから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は妥当であり、オキソン体以外の分解物を測定項目に組み込む必要はないと思われる。一方で、メチダチオンとピリダフェンチオンについてはそれらのオキソン体が生成し、さらに ChE 阻害を示したことから、オキソン体も測定対象に組み込む必要があると提言された。

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。原水、浄水ともに PFOA の濃度が最も高かったが、PFOA と PFOS の合計は、最大値のいずれも目標値 (50 ng/L) を超える試料は無かった。粉末活性炭処理では、PFAS の除去率は PFAS の Log D と関連があり、Log D が大きい (疎水性が高い) ほど除去率が高く、Log D が小さい (親水性が高い) ほど除去率が低かった。

通常使われている家庭等の蛇口のごく初流水 (6 時間以上の滞留水、100 mL) の約 3 割で鉛の基準値を超過する場合があった。また、過去の試買試験の解析により青銅製の蛇口からの溶出が多いことが分かった。また樹脂を材質とする給水栓の浸出性能試験で鉛が検出される場合やニッケルの水質管理目標設定項目目標値の 1/10 を超過する事例があることなどが分かった。

表1 令和元年度～3年度の農薬実態調査における最高検出濃度上位農薬（原水）

	農薬名	分類	用途	目標値	測定数	検出数	検出率	最大検出濃度 (µg/L)	最大個別農薬評価値
1	プロモプチド	対象	除草剤	100	573	407	71%	7.70	0.08
2	ペンタゾン	対象	除草剤	200	1022	324	32%	3.00	0.02
3	メタゾスルフロン		除草剤		433	11	3%	2.69	
4	テフリルトリオン	対象	除草剤	2	862	458	53%	1.60	0.80
5	ベノミル	対象	殺菌剤	20	144	74	51%	1.50	0.08
6	モリネート	対象	除草剤	5	602	52	9%	1.30	0.26
7	ダイムロン	対象	除草剤	800	704	168	24%	1.10	0.00
8	グリホサート	対象	除草剤	2000	413	3	1%	1.00	0.00
9	ピロキロン	対象	殺菌剤	50	172	142	83%	0.98	0.02
10	ブタクロール	対象	除草剤	30	532	46	9%	0.90	0.03
11	シメトリン	対象	除草剤	30	84	54	64%	0.82	0.03
12	フルトラニル	除外	殺菌剤	200	478	32	7%	0.73	0.00
13	クミルロン	対象	除草剤	30	436	6	1%	0.70	0.02
14	ピラクロニル	対象	除草剤	10	190	162	85%	0.70	0.07
15	プレチラクロール	対象	除草剤	50	161	131	81%	0.68	0.01
16	キノクラミン (ACN)	対象	除草剤	5	48	35	73%	0.63	0.13
17	イマズスルフロン	その他	除草剤	200	298	22	7%	0.58	0.00
18	メトミノストロピン	対象	殺菌剤	40	172	78	45%	0.51	0.01
19	ジノテフラン	その他	殺虫剤	600	278	112	40%	0.50	0.00
20	イソプロチオラン (IPT)	対象	殺菌剤	300	204	118	58%	0.40	0.00

表2 令和元年度～3年度の農薬実態調査における最高検出濃度上位農薬（浄水）

	農薬名	分類	用途	目標値	測定数	検出数	検出率	最大検出濃度 (µg/L)	最大個別農薬評価値
1	プロモプチド	対象	除草剤	100	685	163	24%	2.00	0.02
2	プレチラクロール	対象	除草剤	50	646	36	6%	0.76	0.02
3	ブタクロール	対象	除草剤	30	566	10	2%	0.60	0.02
4	ペンタゾン	対象	除草剤	200	588	151	26%	0.50	0.00
5	ピロキロン	対象	殺菌剤	50	636	12	2%	0.33	0.01
6	ダラボン (DPA)	対象	除草剤	80	319	11	3%	0.30	0.00
7	カルベンダジム (MBC)		殺菌剤		154	16	10%	0.20	
8	ジノテフラン	その他	殺虫剤	600	310	36	12%	0.20	0.00
9	ピラクロニル	対象	除草剤	10	434	20	5%	0.20	0.02
10	フェントラザミド	対象	除草剤	10	505	3	1%	0.20	0.02
11	フルトラニル	除外	殺菌剤	200	364	12	3%	0.14	0.00
12	CMTBA		分解物		29	19	66%	0.14	
13	トリクロピル	対象	除草剤	6	316	7	2%	0.11	0.02
14	シプロジニル	その他	殺菌剤	0	35	1	3%	0.08	
15	アミトラス	対象	殺虫剤	6	189	3	2%	0.07	0.01
16	プロモプチドデプロモ		酸化物	100	403	7	2%	0.07	0.00
17	ベンゾビシクロン	対象	除草剤	90	288	10	3%	0.07	0.00
18	シハロホップチル	対象	除草剤	6	486	2	0%	0.06	0.01
19	メタゾスルフロン		除草剤		13	4	31%	0.06	
20	カフェンストール	対象	除草剤	8	626	8	1%	0.05	0.01

### (3) 消毒副生成物

ハロアセトアミド(HAcAms)の送水過程での増加要因を把握するため、浄水に追加塩素を注入率 0, 0.5, 1 mg/L で注入したところ、追加塩素により HAcAms がやや増加し、さらに経過時間が長いほどより増加した。また、水温を 10, 20, 30 °C で調査した結果、高水温ほど生成量が増加した。以上より実際の送水過程では、トリハロメタン等の消毒副生成物と同様に、夏季の水温が高く、経過時間が長い地点で生成が増すと考えられた。浄水では、水温および塩素注入率が高い夏季に HAcAms の生成が増す傾向であった。また、浄水中の総トリハロメタンと同様の生成傾向であった。また、浄水中の HAcAms の THM に対する濃度比は最大でも 1 割程度と見積もられた。粒状活性炭処理では、毎年 20% の交換補充を行うことにより、10 年にわたり HAcAms の一定の除去性を維持する効果があると認められた。

浄水や給水栓における塩素酸の検出状況等を確認した結果、WHO の新しい毒性評価に基づき試算される仮想指標値 0.2 mg/L を夏季に頻繁に超えている地点が数箇所あり、温調設備のない次亜塩貯留槽やアンモニア態窒素濃度等が高く次亜塩注入量が多い原水がその原因と推察された。さらに、塩素酸の水質基準超過事例について調査したところ、原因は、貯蔵槽への継ぎ足し方式の補充による、次亜の劣化であった。浄水場(所)における次亜塩素酸ナトリウムの管理は、大規模浄水場よりも小規模浄水所の方が難しく、小規模浄水所においては、次亜塩素酸ナトリウムの貯留期間の管理や、貯留槽設置室の温度管理等をより適切に行う必要があるものと考えられた。

パラベン類及びその塩素化物:分析方法を確立し、長沢浄水場及び多摩川流域において実態調査を行った結果、パラベン的一种である p-安息香酸 n-プロピル(PHMA-nP)は比較的高

い値で検出されたが、河川水の希釈などの影響から下流の多摩川原橋では低値となった。ただし、下水処理水からはパラベン類が存在する可能性が示され、これらを原水とする浄水場では消毒副生成物として塩素化パラベン類生成の可能性がある。

浄水処理対応困難物質：淀川水系周辺における実態調査により、3,5-ジメチルピラゾール(DMP)及びDMP塩素化物が検出された。DMPの処理法として、塩素添加前のオゾン処理とGAC処理の有効性が示された。DMPのオゾン処理により生成したBromo-DMPは、砂ろ過処理では除去されず、後オゾン処理では低減可能であるが、DMPの流入濃度及び臭化物イオン濃度によっては一部残存する可能性があること、ただしGAC処理は新炭及び経年炭ともに高い処理性を有していることを示した。

1,3,5-トリヒドロキシベンゼン(1,3,5-THB)は、凝集沈澱処理においてPACの増量やpHの制御を行ってもクロロホルム生成能、トリクロロ酢酸生成能を低減することは困難であったが、粉炭を注入することにより大幅に低減できた。ただし、弱塩素を注入した場合、粉炭による処理性が低下することがわかった。アセトンジカルボン酸(ADC)は凝集沈澱処理においてPAC注入率を増やし、pHを低く制御することでクロロホルム生成能、ジクロロ酢酸生成能を低減できた。粉炭および弱塩素の注入による処理性は高くなかった。アセチルアセトン(AA)は弱塩素注入の有無に関わらず、粉炭により低減可能であった。1,3,5-THB、AA及ADCは、溶存オゾンが検出される条件であれば、オゾン処理及びGAC処理において対応が可能である。

消毒副生成物のモニタリングと制御：ジクロロ酢酸については、給水末端における低濃度(減少)期間が見られた。この期間におけるジクロロ酢酸濃度の低下は遊離残塩濃度の低下に伴い発生したと考えられる。THMとハロ酢酸(HAA)生成能予測について、蛍光強度と電気伝導度に基づいたモデル式を作成する手法を整理した。有機物指標3項目とTHM生成能の関係は、沈澱処理水についてはいずれも相関関係がみられたが、オゾン処理、BAC処理と処理工程が進むにつれて、相関関係は弱くなる傾向にあった。GAC処理水中の蛍光強度の経年変化を測定することで、消毒副生成物生成能の除去性を調査したところ、GAC吸着池の通水倍率に比例して処理水中の蛍光強度は増加し、水温が高くなるほどその増加割合は大きいこと、蛍光強度(Ex 330 nm/Em 430 nm)は総トリ

ハロメタン生成能との相関が高く、前駆物質の存在量を把握する指標として有用であることを示した。豪雨時の消毒副生成物濃度の上昇を確認した。

ハロベンゾキノロン類：スワニー川フルボ酸(SRFA)とポニー湖フルボ酸(PLFA)をHPLCで分画して各画分中のDCBQ生成能を見たところ、いずれのNOMも、DCBQ生成能が高い画分はUV254の吸収を持つ画分であった。一方、UV<sub>254</sub>が低いPLFAの方がDCBQ前駆物質を多く含むことが示された。さらに、PLFAの前駆物質には芳香族アミン類が寄与していた。一方で、p-芳香族アミン類から比較的高濃度でp-quinone-4-chloroimide(QC)が生成されることが示された。ハロベンゾキノロン類について、Chinese hamster ovary(CHO)細胞を用いた細胞毒性評価の実験系を確立し、IC50から得られる細胞毒性の強さは、p-quinone-4-chloroimide(QC) >> 2,6-dichloro-quinone-4-chloroimide(DCQC) > 2,6-dichloro-1,4-benzoquinone(DCBQ)であった。

ハロ酢酸：マンガンイオンはクエン酸およびクエン酸と類似の化学構造を持つアコニット酸のHAA生成能を増加させた。

珪藻の一種であるオーラコセイラの塩素処理により、薬品臭を有する副生成物が生成し、この物質は1-hexen-3-oneであることがわかった。1-hexen-3-oneは活性炭処理により最大90%除去できることを示した。珪藻類スケレトネマ・サブサルサムでも塩素処理で1-hexen-3-oneが放出または生成された。

全国の浄水場における消毒副生成物の網羅的調査：10月では、トリハロメタン、トリハロ酢酸、トリハロアルデヒド、ジハロ酢酸、ジハロアセトニトリルの順に濃度は高かった。1月では、トリハロメタン、トリハロ酢酸、ジハロ酢酸、トリハロアルデヒド、ジハロアセトニトリルの順に濃度は高かった。塩素化体の消毒副生成物濃度は関連性があり、また、消毒副生成物間のbromine incorporation factor(BIF)に関連性が認められた。さらに、原水の臭化物イオン濃度が高い場合に消毒副生成物のBIFも高い傾向にあった。

分科会参加事業者によるハロ酢酸の実態調査

：目標値案が示されたプロモクロロ酢酸、プロモジクロロ酢酸の検出率は、全国調査の方が消毒副生成物分科会より高かった。最高値はいずれの調査でも、それぞれ目標値案の40%超、50%超であった。

シアン化合物:オゾン注入率とシアン化合物濃度の関係については、夏期・冬期ともにオゾン注入率が高くなると、オゾン処理水でのシアン化合物が増加する傾向であり夏期の最大で0.0079 mg/L (基準値の8割程度) 検出されているが、GAC 以降の処理においては、シアン化合物は不検出であった。

基準項目の未規制項目としての妥当性:未規

制消毒副生成物の濃度と総トリハロメタン等基準項目の「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。図7に示すように、検出例がある多くの物質について関係性があるケースが認められ、現行の基準項目がある程度未規制消毒副生成物の目安(マーカー)となる可能性が示された。

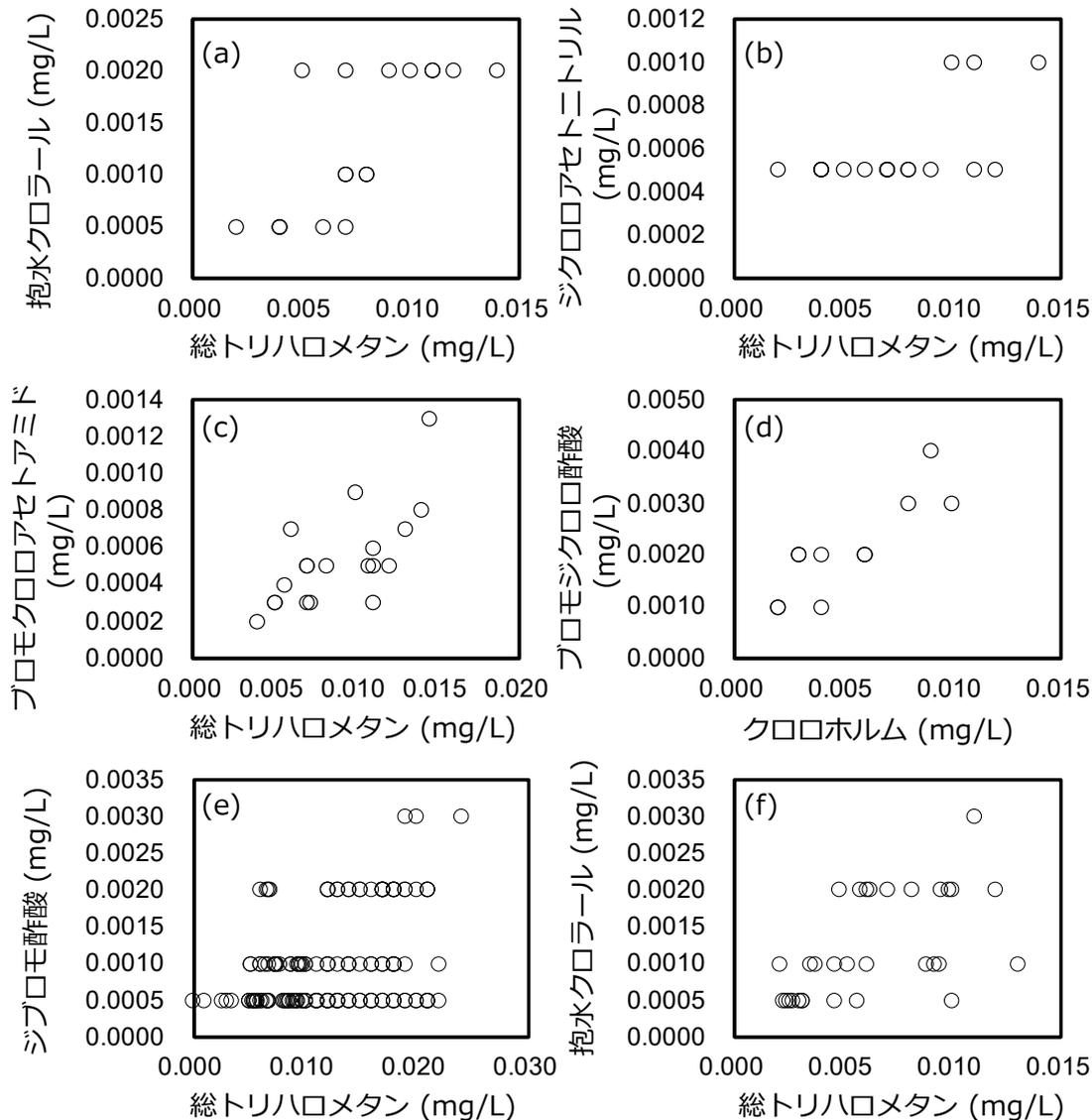


図7 確認された関係性の例 ((a),(b)C 事業体-1, (c)D 事業体-2, (d)F 事業体, (e) H 事業体-1, (f)I 事業体)

#### (4) 臭気物質

全揮発性窒素化合物 (TPN) の測定法の最適化を試み、TPN を精度良く定量する手法を構築した。その手法を用いて、新潟市の2つの浄

水場にて TPN と臭気強度の関係を調べたところ (図8)、TPN が低い場合は、臭気強度が70を超えるような高い臭気が観察されることはなく、TPN をカルキ臭の管理に用いることが

できる可能性が示された。

全国 8 浄水場原水を用いた塩素処理実験と GC/O により、カルキ臭に大きく寄与する可能性が示唆される臭気を 2 つ特定することができた。GC/MS 解析と標準品を用いた GC/O により、一方の臭気の原因物質がベンズアルデヒドである可能性が高いと推察された。一方で、珪藻類に由来する浄水の異臭原因物質の検出を試みた。珪藻類（キクロテラ）を培養し、次亜塩素酸ナトリウムを接触させた検水をおい嗅ぎ-GC/MS で測定したところ、不快な臭気の強い時間帯が存在し、トリオキサソールやベンズアルデヒドが確認された。

窒素化合物のうち、塩素との反応性が高いと考えられる部位を持つ物質について 30 物質を対象物質に選定しさらに構造（一～三級アミン、無機物質、アミノ酸、アミノ糖）から分類した。30 種の対象物質のカルキ臭生成能は 5 倍異なり、アルキルアミンについては第一級アミンが第二、三級アミンより臭気強度（TON）生成能が高いことがわかった。トリクロロアミン生成能とカルキ臭生成能の関係を見たところ、対象物質の多くは、トリクロロアミンが主なカルキ臭原因物質であるが、8 物質については、トリクロロアミン以外の物質が主なカルキ臭原因物質であると考えられた。TPN とカルキ臭生成能の関係から、多くの物質の場合、TPN に寄与する主な物質はトリクロロアミンであるが、一部の物質については、臭気強度の強い含窒素化合物、臭気強度の低い含窒素化合物が TPN に寄与していることが示された。一級アミンであるメチルアミン、エチルアミン、シクロヘキシルアミンのほとんどがジクロロ体へと変化していることがわかった。物質のほとんどがジクロロ体へと変化していることから、これらのジクロロ体がカルキ臭原因物質である可能性が高い。三級アミンである *N*-メチルピペリジンと *N,N*-ジメチルアニリンそれぞれを塩素処理した生成物から、*N,N*-ジクロロ-*N*-メチルアミン(DCMA)とみられる物質の生成を確認した。生成量はメチルアミンに比較して少ないものの、三級アミンからジクロロ体の生成を確認できたことは、三級アミンと塩素の反応経路を解明するための手がかりになると期待される。

アンモニアを対象とした場合、二段階塩素処理により、トリクロロアミンと TON の低減効果は認められた。一方、3 種のアミン類（シクロヘキシルアミン、アラニン、プロリン）については、二段階塩素処理によるトリクロロアミンと TON の低減効果は認められなかった。また、

Br が共存する場合、アンモニア、3 種のアミン類のいずれもトリクロロアミンの生成は低下した。しかし、Br 濃度が 100  $\mu\text{g/L}$  の場合、TON は Br が共存しない場合とほとんど変わらなかったことから、カルキ臭を有する臭素化合物が生成したと推察された。アンモニアについて、共存する Br 濃度が 200  $\mu\text{g/L}$  とさらに増加すると、TON は低下した。アンモニアを対象とした場合、Br 濃度が 100, 200  $\mu\text{g/L}$  のいずれでも、Br 共存下における二段階塩素処理による TON、トリクロロアミンの低減効果は示された。また、今回対象とした窒素化合物については、トリクロロアミン生成量の低減に対して二段階塩素処理が有効であることが確認できた。また、メチルアミン、エチルアミン、*N,N*-ジメチルアニリンそれぞれを塩素処理した際に生成されるジクロロ体の生成量の低減に対しては、二段階塩素処理の効果が小さいことがわかった。

千葉県企業局の各浄水場浄水に含まれるアミン類を誘導体化 GC/MS 法により分析したところ、メチルアミン、エチルアミン・ジメチルアミンが検出された。検出されたアミン類は、水源、処理方法によらず各浄水場の浄水から検出されたことから、千葉県企業局においては浄水中にアミン類が普遍的に存在していると考えられた。しかし、これらのアミン類由来の臭気強度を推定したところ、メチルアミンは 1.5 程度であり、エチルアミン・ジメチルアミンは、臭気強度への寄与がエチルアミンであれば 3.6、ジメチルアミンであれば 0.2 であると見積もられ、浄水臭気への寄与は限定的であると判断された。

臭気物質の浄水処理性を室内実験で調べたところ、フェノール類とトリハロゲン化アニソール類は、オゾン-活性炭処理によりほぼ完全な除去が期待できたのに対し、臭気前駆物質であるシクロヘキシルアミンは 70%~程度の除去に留まった。一方、シクロヘキシルアミンから塩素との反応で生成される臭気物質である *N,N*-ジクロロシクロヘキシルアミンは、粉末活性炭、あるいはオゾン処理でほぼ完全に除去できた。よって、水源水質事故により、原水のシクロヘキシルアミン濃度が高くなった場合には、高度浄水処理を行う場合でも、前塩素注入により *N,N*-ジクロロシクロヘキシルアミンへ変換し、処理を行うことが効果的であると考えられた。

アンケート調査により、水道事業体では、臭気と臭気強度のいずれも塩素臭以外の臭気を対象としていたが、臭気の場合は残留塩素を消

去せず、臭気強度の場合は消去している事業体と消去していない事業体があることが分かった。臭気強度について、残留塩素を消去していない事業体では、臭気の場合と同様に検査員の経験を基に評価が行われていた。一方、残留塩素を消去している事業体では、臭気強度の評価に際し、塩素臭の影響は無いと考えられるが、塩素処理によって生成した臭気のうち、用いた還元剤によって消失されない臭気があった場合には臭気強度に含まれていると推察された。

文献調査を行い、カルキ臭の対応集としてま

とめた。一部のカルキ臭原因物質は質量分析計、比色法等により分析可能であり、また、TPN といった総合指標も提案されていることがわかった。また、カルキ臭原因物質やカルキ臭前駆物質の低減策として、活性炭処理、オゾン処理、紫外線処理、イオン交換処理が検討され、原因物質と前駆物質の両方に有効な場合、一方に有効な場合があった。一部のカルキ臭原因物質は、塩素処理条件の変更によっても低減可能であった。

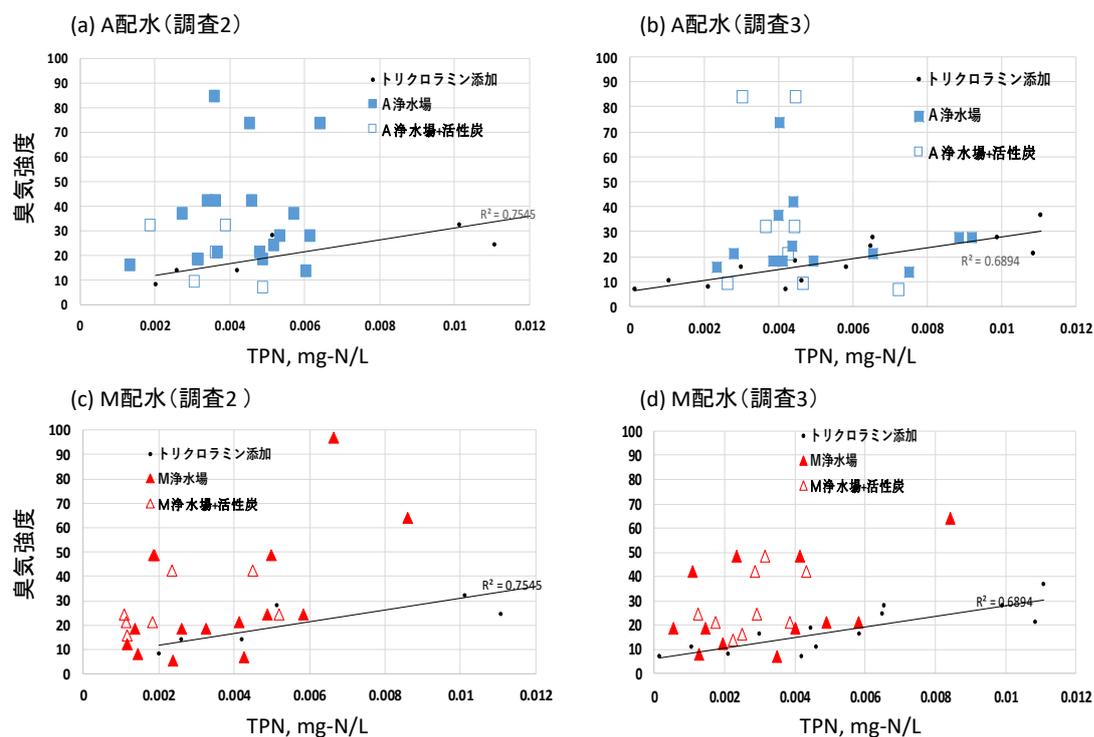


図8 TPN と臭気強度の関係

### (5) リスク評価管理

揮発性を考慮したベンゼン、ジクロロメタン、四塩化炭素の水道水質基準値の評価: 経口経路以外の間接曝露を考慮したベンゼンの水道水質基準のリスク評価を行った。揮発経路の吸入曝露や経皮曝露を想定すると、間接飲水を含む飲水当量の分布の 95%ile 値を許容しうる暴露量とすれば、飲水当量値は水質基準を算出する際に用いられる 2 L/day の直接飲水量の 2 倍程度であった。現行のベンゼンの水道水質基準値 10 µg/L は直接飲水量 2 L/day に基づいて算出しているが、間接曝露を合算して考慮すれば、現行の水質基準値の値の半分の 5 µg/L 程度が

導出された。間接曝露を考慮したジクロロメタンと四塩化炭素の質基準値の評価をおこなった。1-2. ジクロロメタンが基準値濃度(0.002 mg/L)である水道水を使用した場合、TDI 6 µg/(kg day)の超過が生じる可能性は低く、基準値は十分に安全側にたった値であった。四塩化炭素(0.02 mg/L)についても TDI 0.71 µg/(kg day) 超過の暴露シナリオは 7%と低かった。

水道汚染物質の亜急性評価値に関する研究: 水道水質基準項目のうち無機化合物 6 項目について短期間曝露を対象とした saRfD を用いて亜急性参照値を算出した。カドミウム、セレ

ン、水銀については生涯曝露を前提とした基準値の3～10倍以上高い値となった。一方、ヒ素、鉛及び六価クロムについては、亜急性参照値は基準値と同値であった（表3）。

水道水質管理区分「要検討項目」の毒性情報集及び評価値・目標値の試算：水道水中の目標値が設定されていない要検討項目に対する毒性情報を収集した。その結果、6項目（1, 3-ブタジエン、アクリル酸、ヒドラジン、酢酸ビニル、ブロモクロロ酢酸、及びブロモジクロロ酢酸）について信頼性の高い毒性情報が得られ、水道水中目標値の試算を行うことが出来た（表4）。この中で、1, 3-ブタジエン、ヒドラジン、ブロモクロロ酢酸及びブロモジクロロ酢酸は閾値のない発がん性物質と考えられ、水道水中目標値の試算結果が 0.025 mg/L, 0.005 mg/L, 0.01 mg/L 及び 0.01 mg/L と低い値となった。

これらの項目については、浄水における存在について確認が必要であると考えられた。

PFOS 及び PFOA の POD (Point of Departure) を設定し、それぞれ 0.1, 1 mg/kg/day に対する内部曝露量をヒト等価量に換算した結果、使用するヒトの半減期の値に応じて、PFOS:  $5.9 \times 10^{-4} \sim 1.9 \times 10^{-3}$  mg/kg/day 及び PFOA:  $8.4 \times 10^{-4} \sim 2.5 \times 10^{-2}$  mg/kg/day となった。これらの値を用いて参照用量を計算すると PFOS:  $2.0 \times 10^{-5} \sim 6.3 \times 10^{-5}$  mg/kg/day, PFOA:  $2.8 \times 10^{-6} \sim 8.4 \times 10^{-5}$  mg/kg/day となった。水道水中の目標値を試算すると PFOS: 50～158 ng/L, PFOA: 7～210 ng/L となり、現行の暫定目標値を含む範囲となることが示された。しかしながら、今後半減期や疫学情報などのヒトにおける知見が集積される事によって、より精度の高い目標値の算出が可能となると考えられた。

表3 成人及び小児の亜急性参照値及び基準値との比較

項目名	saRfD (µg/kg/day)	基準値 (mg/L)	成人 (mg/L)	比率	小児 (mg/L)	比率
カドミウム	1	0.003	0.03	10	0.01	3
水銀	0.6	0.0005	0.02	40	0.006	12
セレン	4	0.01	0.1	10	0.04	4
鉛	設定できない	0.01	0.01	1	0.01	1
ヒ素	設定できない	0.001	0.001	1	0.001	1
六価クロム	1.7	0.02*	0.04	2	0.02	1

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、実際の運用等に当たっては、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。

\* 基準値導出に用いられた割当率：60%

表4 評価値導出に係るキースタディ・エンドポイント及び水道水目標値試算結果

項目名	キースタディ・エンドポイント	POD		UF	評価値 (mg/kg/day)		目標値 (mg/L)
1, 3-ブタジエン	ヒト疫学 白血病の過剰死亡	-	-	-	VSD $10^{-5}$	0.001	0.025
アクリル酸	ラット2世代飲水投与試験 F1及びF2の仔世代での体重増加の抑制	NOAEL	53	100	TDI	0.53	1.3
ヒドラジン	ラット2年間飲水投与試験 肝細胞腺腫又は癌	BMDL <sub>10</sub>	2.13	-	VSD $10^{-5}$	$2.13 \times 10^{-4}$	0.005

酢酸ビニル	マウス104 週間飲水 投与試験 口腔扁平上皮癌	BMDL <sub>10</sub>	230	1000	TDI	0.23	0.6
				-	VSD 10 <sup>-5</sup>	0.023	0.6
ブロモクロ ロ酢酸	マウス2年間飲水投 与試験 肝細胞癌種	BMDL <sub>10</sub>	3.27	-	VSD 10 <sup>-5</sup>	3.27×10 <sup>-4</sup>	0.01
ブロモジク ロ酢酸	ラット2年間飲水投 与試験 悪性中皮腫	BMDL <sub>10</sub>	2.83	-	VSD 10 <sup>-5</sup>	2.83×10 <sup>-4</sup>	0.01

## (6) 水質分析法

陰イオン類の LC/MS/MS 分析法の開発：塩素酸，硝酸態窒素，亜硝酸態窒素（基準項目），亜塩素酸（管理目標設定項目），過塩素酸（要検討項目）の LC/MS/MS 一斉分析条件を検討した。12 機関によるバリデーション試験も実施し，塩素酸，亜塩素酸，過塩素酸については，臭素酸と同時分析が可能であることが示された。以上のことから，本分析法を塩素酸については告示法に，亜塩素酸については通知法に追加できると考えられる。ただし，これらの陰イオンの基準値・目標値は大きく異なるため，一斉分析を行う際には，検量線の濃度範囲や注入量を，測定機器に合わせて最適化する必要がある。硝酸態窒素は基準値が高く，亜硝酸態窒素は基準値が低いため，どちらかに合わせた分析条件を設定した場合，もう一方を同時に測定することが困難であることが分かった。脱塩素処理剤に関しては，亜塩素酸以外エチレンジアミン(EDA)とチオ硫酸ナトリウムのどちらを用いても試験結果に大きな差はみられなかったが，亜塩素酸に関してはチオ硫酸ナトリウムを添加した水道水では真度が低下したことから，亜塩素酸の分析には脱塩素処理に EDA を使用する必要があることが分かった。以上，塩素酸，硝酸態窒素，亜硝酸態窒素，亜塩素酸，過塩素酸の LC/MS/MS 一斉分析条件を確立した。

GC-MS 水道水中農薬スクリーニング分析：GC-MS データベースについて，GC-MS (アジレント・テクノロジー社製 8890/5977) を用い，176 種農薬類を対象としたスクリーニング分析を検討し，データベースを構築した。その結果，176 種中 170 種でマススペクトルイオンが検出され，既報の他メーカー（2 社）による各成分の定量イオンと比較を行ったところ，170 種中 144 種で同じイオンであっ

た。今後は得られた情報のデータベースを用いて実試料へのスクリーニング分析法の適用を進めることが必要である。

スクリーニング分析法を水質検査に実運用するためには，異なる機関・検査員で同じ評価ができるかどうか確認する必要がある。すなわち，定性の判断基準（I/Q 比あるいはマススペクトルの一致度の基準），定量の判断基準（ピーク強度，S/N 比，定量下限）を統一する必要がある。そこで，スクリーニング分析法のバリデーション試験を実施し，同一のデータベースを用いた場合の，機関による定性・定量結果の違いについて解析した。機関による差（傾向）がみられたが，大部分の機関の検出農薬は一致した。試料毎の検出農薬数の傾向（中央値）は，機関 A（国立衛研）と一致した。今回のバリデーション試験で得られた知見を基に，今後はデータベースおよび保持時間予測手法の改良を行い，定性・定量精度の向上を図る。

**GC/MS ターゲットスクリーニング分析法：**水道水質検査への GC/MS ターゲットスクリーニング分析法の適用において，データベース作成時と試料測定時の装置状態の違いによる定量誤差について検証するため，水質検査の対象農薬としてリストアップされている 172 農薬を対象に，メーカーが異なる 2 台の装置（GCMS-QP2010Plus および JMS-Q1050GC）を用いて GC/MS ターゲットスクリーニング分析用の検量線データベースを異なる時期に合計 7 回作成し，各農薬の検量線の傾きや，それらの検量線から得られる定量値を相互に比較した。各農薬の検量線の傾きを比較した結果，いずれの装置でも各農薬と保持時間が最も近い内標を用いて作成した検量線が，複数回の測定で最も再現性がよい結果となった。また，JMS-Q1050GC において，装置の移設前後（2017 と 2018-1）および

移設後（2018-2, 2019, 2021）に合計 5 回測定して作成した検量線を比較した場合、移設後に繰り返し測定して作成した検量線の方が良好な再現性が得られたことから、検出感度等の装置状態を一定に保つことが、良好な定量精度を得るために重要であることが分かった。各農薬の検量線の定量下限における定量値を比較した結果、同一の装置で作成した検量線データベースを用いた場合は、ほとんどの農薬が 5 倍以内の定量誤差で測定できることが分かった。これらの結果から、水道水に含まれる可能性の高い農薬を広く検索した上で検出農薬の目標値の超過を評価するための手法として、GC/MS ターゲットスクリーニング分析法は有用と考えられた。定量誤差の要因として装置感度の変化が考えられたことから、ターゲットスクリーニング分析法を水道水試料に適用する際には、検量線データベース作成時と同様に良好な装置感度を保つことが重要である。そのため、ターゲットスクリーニング分析時の装置状態の評価方法の確立が今後の課題と考えられる。

LC-QTOFMS による農薬類スクリーニング分析法：水道水質検査対象の農薬類を中心に 222 種の農薬類について、LC-QTOFMS（液体クロマトグラフ-四重極飛行時間型質量分析計）を用いたスクリーニング分析法用のデータベースを構築することができた。さらに、LC-QTOFMS スクリーニング分析法を水道原水、浄水および水道水源河川水の実試料に適用した結果、一度の分析で対象農薬リスト掲載農薬類だけでなく、それ以外の農薬類も多く検出することができた。また、スクリーニ

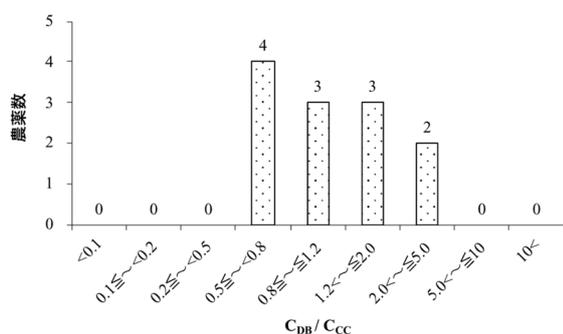


図 9 1 地点から検出された農薬類の  $C_{DB}$ （データベースによる定量値）/  $C_{CC}$ （検量線による定量値）の分布

ング法で取得したデータを再解析することにより、後からデータベースに追加した農薬類も同定・定量できることがわかった。このことより、LC-QTOFMS を用いたスクリーニング法は検査法として簡便に農薬類を測定できるだけでなく、そのデータを追加解析することにより、未知の化学物質の存在状況を把握することにも利用できることが明らかとなった。スクリーニング分析法を用いることにより、効率的な農薬類のモニタリングが可能であることがわかった。

さらに、LC-QTOFMS を用いたスクリーニング分析法について実試料による定量精度の評価を行った。その結果、実試料から同定された 74 種の農薬類の約 86% が濃度比 0.5 ~ 2.0 で分析可能であることがわかった（図 9, 10）。したがって、LC-QTOFMS を用いたスクリーニング分析法は検査対象とする農薬の選定や検出オーダーの把握に非常に役立つ、簡便に農薬類を測定する手段として有用であることが明らかになった。ただし、定量誤差が大きかった農薬類も存在したことから、これらの農薬類については引き続きの改良とその結果の取り扱いに注意が必要である。

ヘリウム代替キャリアーガスを用いた揮発性有機化合物の分析条件の検討：分析条件検討と、精製水・水道水の添加回収試験により分析方法の妥当性を評価した結果、ヘリウムガスを用いた場合と比べ全体的に感度の低下が見られたが、水質基準の 1/10 の定量下限まで分析は可能であり、妥当性評価の目標を満たした。

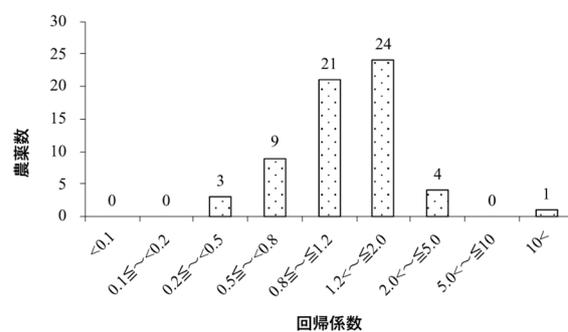


図 10 2 地点以上から検出された農薬類の回帰係数の分布

## D. 結論

### (1-1) 微生物（ウイルス）

国内 21 箇所の浄水場における PMMoV の濃度の最大値はろ過水、浄水ともに  $3.4 \log_{10}$  copies/L だった。原水において PMMoV はノロウイルス GII よりも濃度が高く、ノロウイルス GII が陽性だった試料は、すべて PMMoV も陽性だった。また、PMMoV は、ほとんどの試料において RVA よりも濃度が高かったが、都市排水が含まれないと考えられる一部の水源では、RVA の濃度の方がわずかに高かった。PMMoV よりも RVA 濃度が高かった 7 地点の浄水場原水試料に適用したところ、ウシヤブタの RVA 遺伝子型が高頻度で検出された。凝集-MF 膜ろ過処理と UF 膜ろ過処理による PMMoV の除去率は  $0.6-1.5 \log$ 、 $1.7 \rightarrow 2.6 \log$  であった。CVB5 の  $9 \log$  不活化に必要な CT 値は pH7.0 で  $40 \text{ mg-Cl}_2\text{-min/L}$ 、pH 8.0 で  $100 \text{ mg-Cl}_2\text{-min/L}$  程度であった。水環境中に存在するエンテロウイルスの遺伝子型内で遊離塩素やオゾンの耐性が大きく異なり、実験室株よりも遊離塩素耐性の高い野生株が存在する。水道事業者の水質担当者がろ過水や浄水中の PMMoV を簡便に検査することを想定し、PMMoV を添加した水道水試料を用いて検査方法を検討した結果、Promega Wizard Enviro Total Nucleic Acid Kit を用いることで水道水に  $10^3$  copies/L のオーダーで含まれる PMMoV を検出できることがわかった。

### (1-2) 微生物（細菌）

バイオフィームが形成している BAC 内ではレジオネラ属菌などの細菌が定着・再増殖し、処理水へ流出していく可能性がある。全国 21 浄水場の原水、ろ過水、浄水の調査では、一般細菌数と従属栄養細菌数に相関関係が確認されたものの、浄水とろ過水においてはバラツキが大きく、細菌類の再増殖による影響であると考えられた。文献調査では、従属栄養細菌数によるレジオネラ陽性判定が可能とした報告もあったが、相反する報告も多数あり、従属栄養細菌数レベルとレジオネラ属菌数またはその陽性率の間の関係については、議論継続中であった。室内試験ではレジオネラ属菌の安定的な再増殖は確認できなかったが、FLA は多くの試料で再増殖が起こり、従属栄養細菌数とその先行指標となりうる可能性が指摘された。レジオネラ汚染の制御方法に関する検討では、山間部に位置する小規模な配水区域を対象としてレジオネラ属菌に関する調査を実施し、残留塩素 ( $0.4 \text{ mg/L}$  以上) の管理の重要性を改めて指

摘した。さらに再増殖は週 1 回以上の塩素接触によって抑制される兆しが確認された。

### (1-3) 微生物（寄生虫等）

日本全国の水道原水から年 50 件ほどの汚染が報告され、11 年間にクリプトスポリジウムは 618 件、ジアルジアは 573 件あった。クリプトスポリジウム検査の訓練により検査技術の維持が確認できた。クリプトスポリジウム汚染の検査対象を従来の河川水から下水放流水とし 1 個/L レベルで汚染の恐れを判断すれば、検査感度の向上には有用と考えられた。

### (2) 化学物質・農薬

平成 30 年～令和 2 農薬年度の農薬製剤出荷量はほぼ 22 万 t で同じであった。平成 30 年以降新たに 22 種の化学物質が新たに農薬として登録されており、このうち 12 種は水稻適用農薬であった。一方、平成 30 年以降、12 種が農薬登録を抹消されていた。農薬類の検出濃度は、原水では 8 農薬の最大検出濃度が  $1 \mu\text{g/L}$  を超過し、浄水では 13 農薬の最大検出濃度が  $0.1 \mu\text{g/L}$  を超過していた。個別農薬評価値は、原水ではモリネートも高い値を示した。浄水では、15 農薬の最大個別農薬評価値が 0.1 を超えていた。Σ 値の推移を見ると、浄水の Σ 値は低い値で推移していた。したがって、浄水ではこれまでの農薬の検出実施を踏まえ活性炭の注入など適切な対応を講じられた結果と考えられた。エチプロールを塩素処理したところ分解物が検出され、エチプロールスルホンであると推察された。エチプロールスルホンは塩素の存在下の 24 時間後でもその大半が残存していた。

水道事業の農薬類の委託検査において、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。メチダチオンとピリダフェンチオンは塩素処理でオキソン体が生成し、さらに ChE 阻害を示したことから、オキソン体も測定対象に組み込む必要があると提言された。

23 浄水場の原水・浄水から 9 種の PAFS が検出された。PFOA の濃度が最も高かったが、PFOA と PFOS の合計が目標値 ( $50 \text{ ng/L}$ ) を超える試料は無かった。粉末活性炭処理では、Log D が大きい（疎水性が高い）PFAS ほど除去率が高かった。

家庭等の蛇口のごく初流水の約 3 割で鉛の基準値を超過する場合があり、青銅製の蛇口からの溶出が多かった。浸出性能試験では樹脂材質の給水栓から鉛の検出やニッケルの目標値 1/10 超過する事例があった。

### (3) 消毒副生成物

HAcAms は追加塩素により増加し、さらにトリハロメタン等の消毒副生成物と同様に、夏季の水温が高く、経過時間が長い地点で生成が増すと考えられた。浄水中の HAcAms の THMs に対する濃度は最大でも 1 割程度と見積もられた。

高濃度の塩素酸の事例について調査した。原因は、貯蔵槽への継ぎ足し方式の補充による次亜塩素酸の劣化であった。その他、温調設備がないことや高アンモニア態窒素濃度等のための高注入量があげられた。多摩川においてパラベン類と下水処理水との関係が示唆されたが、長沢浄水場における塩素化パラベン類は未検出であった。PHMA-nP は比較的高い値で検出されたが、下流では低値となった。

淀川水系周辺における実態調査では、DMP 及び DMP 塩素化物が検出された。1,3,5-THB は弱塩素を注入した場合、粉炭による処理性が低下する。ADC は凝集沈澱処理において高 PAC 注入率と低 pH 制御でクロロホルム生成能とジクロロ酢酸生成能を低減できた。ジクロロ酢酸が給水末端において低濃度（減少）期間が見られ、遊離残塩濃度の低下に関連していると考えられた。

THM と HAA 生成能予測について、蛍光強度と電気伝導度に基づいたモデル式を作成する手法を整理した。有機物指標 3 項目と THM 生成能の関係は、沈澱処理水についてはいずれも相関関係がみられたが、オゾン処理、BAC 処理と処理工程がすすむにつれ、相関関係は弱くなる傾向にあった。蛍光強度(Ex 330 nm/Em 430 nm)はトリハロメタン前駆物質の存在量を把握する指標として有用である。PLFA と SRFA の DCBQ 生成能が高い画分は UV254 の吸収を持つ画分であった。p-芳香族アミン類から比較的高濃度で QC が生成している。ハロベンゾキノンの CHO 細胞毒性は  $QC \gg DCQC > DCBQ$  であった。

マンガンイオンはクエン酸などの HAAFP を増加させる。珪藻オーラコセイラやスケルトネマ・サブサルサムの塩素処理により、薬品臭を有する副生成物が 1-hexen-3-one が生成する。

全国調査では、10 月では、トリハロメタン、トリハロ酢酸、トリハロアルデヒド、ジハロ酢酸、ジハロアセトニトリルの順に濃度は高かった。1 月では、トリハロメタン、トリハロ酢酸、ジハロ酢酸、トリハロアルデヒド、ジハロアセトニトリルの順に濃度は高かった。消毒副生成物間の BIF 関連性が認められた。ブロモクロロ

酢酸とブロモジクロロ酢酸の最高値はそれぞれ目標値案の 40%超、50%超であった。現行の基準項目がある程度未規制消毒副生成物の目安（マーカー）となる可能性が示された。オゾン注入率が高くなるとシアン化合物が増加する傾向であったが、GAC で除去されていた。

### (4) 臭気物質

TPN を精度良く定量する手法を構築した。TPN が低い場合は、臭気強度が 70 を超えるような高い臭気が観察されることはなく、TPN をカルキ臭の管理に用いることができる可能性が示された。

全国 8 浄水場原水を用いた塩素処理実験と GC/O により、カルキ臭に大きく寄与する可能性が示唆される臭気物質としてベンズアルデヒドが推察された。珪藻類に由来の塩素処理後の臭気物質としてトリオキサンやベンズアルデヒドが確認された。

窒素化合物の内、アルキルアミンについては、第一級アミンが第二、三級アミンより臭気（TON）生成能が高い。一級アミンのほとんどがジクロロ体へと変化し、カルキ臭原因物質原因物質である可能性が高い。三級アミンからは DCMA とみられる物質が生成した。窒素化合物の塩素処理後の主なカルキ臭原因物質はトリクロラミンであるが、いくつかの窒素化合物についてはトリクロラミン以外の物質が主なカルキ臭原因物質であると考えられた。多くの場合、TPN に寄与する主な物質はトリクロラミンであるが、一部の物質については、臭気強度の強い含窒素化合物、臭気強度の低い含窒素化合物が TPN に寄与していることが示された。

二段階塩素処理により、アンモニアや多くの窒素化合物については、トリクロラミン、TON の低減効果があるが、3 種のアミン類については、低減効果は認められなかった。しかし、Br が共存する場合トリクロラミンの生成は低下した。

千葉県企業局の各浄水場の浄水中にアミン類が普遍的に存在していることが分かったが、浄水臭気への寄与は限定的であると判断された。臭気前駆物質であるシクロヘキシルアミンのオゾン-活性炭処理に除去率は 70%~程度の除去に留まった。シクロヘキシルアミンの塩素処理臭気物質である N,N-ジクロロシクロヘキシルアミンは、粉末活性炭、あるいはオゾン処理でほぼ完全に除去できた。アンケート調査により、水道事業者では、臭気と臭気強度のいずれも塩素臭以外の臭気を対象としていたが、臭気の場合は残留塩素を消去せずに、臭気強度

の場合は消去している事業体と消去していない事業体があることが分かった。

#### (5) リスク評価管理

揮発経路の吸入や経皮の間接曝露を考慮したベンゼンの水道水質基準のリスク評価を行った。間接飲水込みの飲水当量値は水質基準を算出する際に用いられる 2 L/day の直接飲水量の 2 倍程度となり、現行の水質基準値の値の半分の 5 µg/L 程度が導出された。間接曝露を考慮してもジクロロメタンと四塩化炭素の水質基準値は安全側の評価となっていた。

カドミウム、セレン、水銀の亜急性参照値は水道水質基準値の 3~10 倍以上の値となった。ヒ素、鉛及び六価クロムについては基準値と同値であった。

水道水中の目標値が設定されていない要検討項目の内、6 項目 (1, 3-ブタジエン、アクリル酸、ヒドラジン、酢酸ビニル、プロモクロロ酢酸、及びプロモジクロロ酢酸) について目標値の算出を行うことが出来た。1, 3-ブタジエン、ヒドラジン、プロモクロロ酢酸及びプロモジクロロ酢酸は閾値のない発がん性物質と考えられ、低い目標値となった。

有機フッ素化合物の参照用量は PFOS :  $2.0 \times 10^{-5} \sim 6.3 \times 10^{-5}$  mg/kg/day, PFOA :  $2.8 \times 10^{-6} \sim 8.4 \times 10^{-5}$  mg/kg/day となり、目標値は PFOS : 50~158 ng/L, PFOA : 7~210 ng/L と試算され、現行の暫定目標値を含む範囲であった。

#### (6) 水質分析法

LC/MS/MS 分析法により塩素酸、亜塩素酸、過塩素酸については、臭素酸と同時分析が可能であることが示された。

GC-MS (アジレント・テクノロジー社製 8890/5977) を用い 176 種農薬類のスクリーニング分析データベースを構築した。さらに、スクリーニング分析法のバリデーション試験を実施し、同一のデータベースを用いた場合の、機関による定性・定量結果の違いについて解析した。機関による差 (傾向) がみられたが、大部分の機関の検出農薬は一致した。試料毎の検出農薬数の傾向 (中央値) は、機関 A (国立衛研) と一致した。ついで、水道水質検査への GC/MS ターゲットスクリーニング分析法の適用において、データベース作成時と試料測定時の装置状態の違いによる定量誤差について検証した。同一の装置で作成した検量線データベースを用いた場合、ほとんどの農薬が 5 倍以内の定量誤差で測定できる。定量誤差の要因として装置感度の変化が考えられた。

水道水質検査対象の農薬類を中心に 222 種の農薬類について、LC-QTOFMS (液体クロマトグラフ-四重極飛行時間型質量分析計) を用いたスクリーニング分析法用のデータベースを構築し、河川水などから一度の分析で対象農薬リスト掲載農薬類だけでなく、それ以外の農薬類も多く検出することができた。データを再解析することにより、後からデータベースに追加した農薬類も同定・定量できることがわかった。実試料から同定された 74 種の農薬類の約 86% が濃度比 0.5~2.0 で分析可能であった。

窒素キャリアーガスを用いた揮発性有機化合物の分析に関しては、ヘリウムガスを用いた場合と比べ全体的に感度の低下が見られたが、水質基準項目の VOC は水質基準の 1/10 まで分析可能であり、妥当性評価の目標を満たした。

#### E. 健康危険情報

なし

#### F. 研究発表

##### 1. 論文発表

Shirasaki, N., Matsushita, T., Matsui, Y. and Koriki, S. Suitability of pepper mild mottle virus as a human enteric virus surrogate for assessing the efficacy of thermal or free-chlorine disinfection processes by using infectivity assays and enhanced viability PCR. *Water Research*, 186, 116409, 2020.

鳥居将太郎, 片山浩之. ウイルス種内の遊離塩素耐性分布幅が全体不活化率の推定に及ぼす影響. *土木学会論文集 (G)*, 76, III\_423-III\_429, 2020.

Torii, S., Itamochi, M., Katayama, H. Inactivation kinetics of waterborne virus by ozone determined by a continuous quench flow system. *Water Research*, 186, 116291, 2020.

Canh, V.D., Furumai, H., Katayama, H. Effect of viral genome property on the efficiency of viability (RT-)qPCR. *土木学会論文集 (G)*, 76, III\_189-III\_196, 2020.

Canh, V.D., Torii, S., Furumai, H., Katayama, H., 2020. Application of Capsid Integrity (RT-)qPCR to Assessing Occurrence of Intact Viruses in Surface Water and Tap Water in Japan. *Water Research*, 189, 116674, 2020.

Miura, T., Takino, H., Gima, A., Haramoto, E., Akiba, M. Recovery of nucleic acids of enteric

viruses and host-specific Bacteroidales from groundwater by using an adsorption-direct extraction method. *Appl Environ Microbiol.*, 87(18), e00710-21, 2021.

Shirakawa, D., Shirasaki, N., Matsushita, T., Matsui, Y., Yamashita, R., Matsumura, T. and Koriki, S. Evaluation of reduction efficiencies of pepper mild mottle virus and human enteric viruses in full-scale drinking water treatment plants employing coagulation-sedimentation-rapid sand filtration or coagulation-microfiltration. *Water Research*, 213, 118160, 2022.

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, *日本防菌防黴学会誌*, 48(8), pp. 377-382, 2020.

井上亘, 萩田堅一, 藤瀬大輝, 橋本温, 泉山信司, 小規模下水処理場放流水の塩素抵抗性原虫調査, *水道協会雑誌*, 90(11), 23-27, 2021

橋本温, 柳下真由子, 小林謙介, 泉山信司, 水道水質関連調査データを用いた水源のクリプトスポリジウム等検出状況とその定量的微生物リスク評価, *水道協会雑誌*, 90(4), 1-9, 2021

泉山信司, 最近の感染確率に基づく, 水道水からクリプトスポリジウムを除去・不活化する目標の再計算, *水道協会雑誌*, 89(8), 2-7, 2020

橋本温, 中本佳奈, 鈴木裕之, 土岡宏彰, 泉山信司, ハイドロキシアパタイト粉体ろ過法の効率と大腸菌試験への適用性, *環境技術*, 2020, 49(2), 31-37

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.

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.

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.

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.

Matsushita, T., Kikkawa, Y., Omori, K., Matsui, Y. and Shirasaki, N. (2021) A metabolism-coupled cell-independent acetylcholinesterase activity assay for evaluation of the effects of chlorination on diazinon toxicity, *Chemical Research in Toxicology*, 34, 2070–2078.

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.

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.

Tada, Y., Cordero, J.A., Echigo, S., and Itoh, S. Effect of coexisting manganese ion on the formation of haloacetic acids during chlorination. *Chemosphere*, 2021, 263, 127862.

Nakai T., Kosaka K., Asami M. and Akiba M. Removal of halobenzoquinone precursors during advanced water purification process, *Ozone: Science & Engineering*, 2022, 44(2), 208-216.

小坂浩司, 施昊, 松本創, 越後信哉, 伊藤禎彦 (2021) 塩素処理による含窒素化合物由来のカルキ臭生成特性, *土木学会論文集 G (環境)*, 58, III\_261–III\_268.

小林憲弘, 宮本紫織, 佐藤学, 木下輝昭, 高木総吉, 岩間紀知, 粕谷智浩, 古川浩司, 堀池秀樹, 齊藤香織, 京野完, 高原玲華, 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 140 農薬の一斉分析法の妥当性評価. *水環境学会誌*, 42(6), 247–258, 2019.

小林憲弘. 水道水中の農薬分析法に関する研究動向. *水環境学会誌*, 42(A)(11), 386–389, 2019.

小林憲弘. 2020年4月の水道水質基準と検査方法の改正について. *環境と測定技術*, 47(9), 17–

24, 2020.

小林憲弘, 土屋裕子, 五十嵐良明. 塩素処理による水道水中プロチオホスの分解とプロチオホスオキシソンの生成挙動. 水道協会雑誌, 89(9), 2-11, 2020.

小林憲弘, 土屋裕子, 高木総吉, 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. 環境科学会誌, 33(5), 136-157, 2020.

Abe, Y., Kobayashi, N., Yamaguchi, M., Mutsuga, M., Ozaki, A., Kishi, E., Sato, K. Determination of formaldehyde and acetaldehyde levels in poly (ethylene terephthalate) (PET) bottled mineral water using a simple and rapid analytical method. *Food Chemistry*, 344, 128708, 2021.

木下輝昭. 水道法に基づく水質検査及びその精度管理への取り組み. 日本防菌防黴学会誌, 49(4), 191-199, 2021.

小林憲弘, 土屋裕子, 五十嵐良明. イプロジオンの水中での分解性と検査法の検討. 水道協会雑誌, 90(11), 11-22, 2021.

小林憲弘, 高木総吉, 木下輝昭, 仲野富美, 古川浩司, 粕谷智浩, 松巾宗平, 寺中郁夫, 山本剛, 米久保淳, 田中誠也, 丹羽宏之, 会田祐司, 高原玲華, 齊藤香織, 五十嵐良明. 液体クロマトグラフィー質量分析による水道水中の陰イオン一斉分析法の検討と妥当性評価. 水環境学会誌, 45(2), 51-66, 2022.

小林憲弘, 土屋裕子, 五十嵐良明. GC/MS ターゲットスクリーニング分析法による水道水中農薬の定量精度の評価, 環境科学誌, 35(2), 88-102, 2022.

高木総吉, 長谷川有紀, 小池真生子, 吉田 仁, 安達史恵. GC/MS ターゲットスクリーニング分析法の水道原水および浄水への適用, 環境科学誌, 35(2), 78-87, 2022.

長谷川有紀, 小池真生子, 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. 大阪府内浄水場の水道原水および浄水中におけるイプフェンカルバゾンの存在実態, 環境科学誌, 35(2), 70-77, 2022.

古川浩司, 橋本 真, 小林珠美, 滝埜昌彦. トリ

ガーMRM 法を用いた四重極 LC-MS/MS による水道水中の農薬スクリーニング分析法の検討, 環境科学誌, 35(2), 34-49, 2022.

木下輝昭, 小田智子, 山崎貴子, 栗田 翔, 鈴木俊也, 中嶋順一, 守安貴子. 固相抽出-LC/MS 法による水道水中界面活性剤の一斉分析法の検討及び妥当性評価, 環境科学誌, 35(2), 59-69, 2022.

岩間紀知, 窪田吉洋, 中村弘揮. ダンシルクロリド誘導体化-液体クロマトグラフィー/エレクトロスプレーイオン化タンデム質量分析法による水道水中フェノール類の測定, 環境科学誌, 35(2), 50-58, 2022.

## 2. 学会発表

Shirakawa, D., Shirasaki, N., Yamashita, R., Koriki, S., Matsumura, T., Matsushita, T., Matsui, Y. Evaluation of virus removal efficiency in an actual drinking water treatment plant by using a novel virus concentration method and pepper mild mottle virus as a process indicator. *Water and Environment Technology Conference 2019*, Suita, Japan, 13-14 July 2019.

Torii S, Itamochi M, Katayama H. Intra-Enterovirus B and intratypic variability in free chlorine resistance. 第 67 回日本ウイルス学会学術集会, O3-4-12, 2019.

鳥居将太郎, 板持雅恵, 片山浩之. 同種ウイルスの遊離塩素消毒耐性分布幅を考慮した不活化予測モデルの提案. 令和元年度水道研究発表会, 8-37, 2019.

松村拓哉, 高力聡史, 白川大樹, 白崎伸隆, 松下拓, 松井佳彦. 凝集-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処理性評価. 第 27 回衛生工学シンポジウム, 札幌, 2019/11/8-9.

Torii S, Itamochi M, Katayama H. Variability of free chlorine resistance among Enterovirus B strains leads to insufficient inactivation in drinking water, 20th International Symposium on Health Related Water Microbiology, Vienna, Austria, 2019.

三浦尚之, 儀間ありさ, 徳安真理奈, 秋葉道宏. 水道原水中ウイルスモニタリングのための効率的なウイルス濃縮方法の検討. 第 56 回環境

工学研究フォーラム講演集. B35, 2019.

三浦尚之, 徳安真理奈, 前田暢子, 吉田伸江, 越後信哉, 秋葉道宏. 全国の水道原水における腸管系ウイルスおよびトウガラシ微斑ウイルスの存在実態調査. 第 54 回日本水環境学会年会講演集, 386, 2020.

白川大樹, 白崎伸隆, 松下拓, 松井佳彦. 外来遺伝子を封入した人工合成ウイルス様粒子の創製: 培養困難なノロウイルスの浄水処理性評価への適用. 第 54 回日本水環境学会年会, 盛岡, 2020/3/16-18.

鳥居将太郎, 板持雅恵, 片山和彦, 片山浩之. エンテロウイルス野生株の遊離塩素, 紫外線, オゾン処理に対する耐性分布幅の評価. 第 54 回水環境学会年会, 1-E-12-1, 2020.

鳥居将太郎, 片山浩之. CQFS を用いたオゾン処理によるウイルス不活化速度の解析. 日本オゾン協会 第 29 回年次研究講演会, 2020.

白崎伸隆, 松村拓哉, 白川大樹, 高力聡史, 松下拓, 松井佳彦. 膜ろ過浄水施設におけるウイルスの処理性評価: 陽電荷膜と限外ろ過膜を組み合わせたウイルス濃縮法の適用. 第 23 回日本水環境学会シンポジウム (オンライン開催), 2020/9/9-10.

Shirakawa, D., Shirasaki, N., Matsumura, T., Koriki, S., Matsushita, T. and Matsui, Y. Evaluation of virus reduction efficiency in coagulation-microfiltration by a full-scale study and lab-scale experiments. Water and Environment Technology Conference Online 2020, 7-8 November 2020.

白川大樹, 山下玲菜, 高力聡史, 松村拓哉, 白崎伸隆, 松下拓, 松井佳彦. 凝集沈澱-砂ろ過処理におけるウイルスの除去性-実浄水処理場における調査および室内添加実験の実施による評価-. 令和 2 年度水道研究発表会 (開催中止による誌上発表), 2020/11/18-20.

瀧野博之, 三浦尚之, 小田琢也, 佐野大輔, 秋葉道宏. 浄水試料からのウイルス RNA 回収率向上に向けた検討. 令和 2 年度水道研究発表会 (開催中止による誌上発表). 論文集, 610-611, 2020.

鳥居将太郎, 片山浩之. ウイルス種内の遊離塩素耐性分布幅が全体不活化率の推定に及ぼす

影響. 第 57 回環境工学研究フォーラム (オンライン開催), 2020/12/9-11.

Canh, V.D., Furumai, H., Katayama, H. Effect of viral genome property on the efficiency of viability (RT-)qPCR. 第 57 回環境工学研究フォーラム (オンライン開催), 2020/12/9-11.

松村拓哉, 白川大樹, 高力聡史, 白崎伸隆, 松下拓, 松井佳彦. 低圧膜ろ過処理におけるウイルスの除去性: 実浄水処理場における調査および室内添加実験の実施による評価. 第 55 回日本水環境学会年会 (オンライン開催), 2021/3/10-12.

高橋大河, 松村拓哉, 白崎伸隆, 松下拓, 松井佳彦. ウイルスの水道水質基準制定に向けた塩素処理の有効性評価: ヒト腸管系ウイルスおよびヒトコロナウイルスの不活化特性の把握. 第 55 回日本水環境学会年会 (オンライン開催), 2021/3/10-12.

三浦尚之, 門屋俊祐, 瀧野博之, 佐野大輔, 秋葉道宏. 次世代シーケンス解析による水道原水中ロタウイルスの遺伝的多様性評価. 第 55 回日本水環境学会年会 (オンライン開催), 講演集, 250, 2021.

三浦尚之, 門屋俊祐, 瀧野博之, 佐野大輔, 秋葉道宏. 水道水源におけるロタウイルスの遺伝的多様性解析. ウイルス性下痢症研究会 第 32 回学術集会抄録集, 20-21, 2021.

三浦尚之, 瀧野博之, 門屋俊祐, 三浦耀平, 佐野大輔, 秋葉道宏. 浄水処理におけるウイルス除去遺伝子マーカーとしてのトウガラシ微斑ウイルスの実態調査. 第 56 回日本水環境学会年会講演集, 256, 2022.

Hu, Q., Shirakawa, D., Shirasaki, N., Takagi, H., Oka, T., Matsushita, T. and Matsui, Y. (2022) Evaluating the efficacy of drinking water treatment processes to remove and inactivate human sapovirus: Application of in vitro cell-culture method. 第 56 回日本水環境学会年会, 富山大学, 2022/3/16-18 (新型コロナウイルスの影響によりオンライン開催).

廣瀬円, 中西智宏, 浅田安廣, 伊藤禎彦: 配水末端地域における水道水中レジオネラ属菌の分布調査, 第 54 回日本水環境学会年会講演集, p. 53, 2020.

泉山信司, 古川紗耶香, 油川一紀, 山本貢平, 今健亘, 赤坂遼平, 山崎朗子, 東北地方のある浄水場上流山間部における, げっ歯類の *Giardia* 流行調査, 日本寄生虫学会東日本大会, 2021年10月, 栃木県 (オンライン)

2. 井上亘, 泉山信司, *Cryptosporidium* のオーシスト壁の透過性に関する研究, 日本水処理生物学会, 2021年10月, 神奈川県 (オンライン)

泉山信司, 消化管寄生性原虫のクリプトスポリジウム・ジアルジアへの対応, 日本水処理生物学会, 2021年10月, 神奈川県 (オンライン)

泉山信司, 古川紗耶香, 油川一紀, 山本貢平, 今健亘, 赤坂遼平, 山崎朗子, 山間部のげっ歯類が汚染源と推定される, 腸管寄生性原虫による水道原水の汚染検出と対策の事例, 日本防菌防黴学会, 2021年9月, 大阪市 (オンライン)

井上亘, クリプトスポリジウム研究のための水質検査計画のデータの地図化およびデータベース化, 兵庫自治学会研究発表大会 2021年9月, 神戸市 (オンライン)

泉山信司, 古川紗耶香, 油川一紀, 今健亘, 赤坂遼平, 山崎朗子, 「耐塩素性病原微生物の顕微鏡検査を遺伝子検査で補い, 浄水場の対策に反映された例」, 環境技術学会, 2021年6月, オンライン

泉山信司, 「環境水 (河川, 畜舎排水, 下水放流水) 中のクリプトスポリジウム, ジアルジア調査についての研究意義と将来展望」より, 国内の検出状況等について」, 水道微生物問題研究会, 令和3年4月, 神奈川県 (オンライン)

Motomu Inoue, Shinji Izumiyama, Toshinobu Suzaki. Semi-permeability assay of *Cryptosporidium* oocyst wall using saturated sodium chloride solution. Joint online meeting of the Japan Society of Protistology and Korean Society of Protistologists. November 2020, Kobe, Japan.

泉山信司, 井上亘, 橋本温, 国内の水道原水におけるクリプトスポリジウムの検出状況, 環境技術学会, 2020年6月, 京都市 (オンライン)

井上亘, 荻田堅一, 鈴木雅和, 野村素行, 四方浩人, 水道水の感染リスク把握のための小規

模下水処理場排水の塩素抵抗性原虫調査, 水道研究発表会, 2019年11月, 函館市

泉山信司, 水道水を介してクリプトスポリジウムに感染するリスクの計算, 環境技術学会, 2019年6月, 京都市

泉山信司, クリプトスポリジウム症, 平成30年度希少感染症診断技術研修会, 平成31年2月, 東京都

泉山信司, 耐塩素性病原生物について, 水道水質検査セミナー, 平成31年2月, 青森市

今健亘, 油川一紀, 洗砂機導入の検討経過について, 第22回水道技術事例発表会, 2019年8月, 福島県

赤坂遼平, 油川一紀, 古川紗耶香, 山崎朗子, 横内川水源涵養保安林区域生態動向調査, 日本水道協会水道研究発表会, 2019年11月, 北海道

安藤大将, 松下拓, 松井佳彦, 白崎伸隆. 塩素処理による農薬フェントエートの ChE 活性阻害性の変化と阻害に寄与する生成物の推定, 第56回日本水環境学会年会, 2022.

佐藤学, 仲野富美, 上村仁. 神奈川県相模川流域における農薬類の年間を通じた実態調査. 第56回全国衛生化学技術協議会年会講演集. 2019, 206~207.

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回環境化学討論会プログラム集. 2019, P-079.

佐藤学, 上村仁, 仲野富美, 前田暢子, 吉田伸江, 浅見真理. 全国の浄水場における浄水及び原水を対象とした農薬類の実態調査. 第54回水環境学会年会講演集, 2020.

知見圭悟. 相模川・酒匂川の水道原水における農薬検出状況と対応. 令和元年度日本水道協会関東地方支部水質研究発表会講演集. 2019. 松下拓. 毒性からみた水道における有機リン系農薬管理枠組みの妥当性評価, 第58回環境工学研究フォーラム, 2021.

森智裕, 谷口佳二, 小田琢也. フィプロニル分解物の実態調査と活性炭処理における除去効

果. 令和元年度全国会議(水道研究発表会)講演集. 2019, 821~822.

吉川祐司, 大森圭, 松下拓, 松井佳彦, 白崎伸隆. 塩素処理に伴う有機リン系殺虫剤の毒性変動~代謝を考慮した ChE 活性阻害試験法の構築と適用~. 第 54 回日本水環境学会年会講演集, 2020.

鈴木知美, 仲門拓磨, 倉田拓郎, 向井恵, 小坂浩司, 秋葉道宏. 塩素処理による NOM からの 2,6-ジクロロ-p-ベンゾキノン (DCBQ) の生成特性と前駆物質の特性解析. 第 54 回日本水環境学会年会講演集. 2020, 50.

鈴木知美, 越後信哉, 小坂浩司, 秋葉道宏. LC-MS/MS によるシアヌル酸の高感度分析, 令和元年度全国会議(水道研究発表会)講演集. 2019, 776-777.

Nakai T., Kosaka K., Asami M., Akiba M. Removal of halobenzoquinone precursors during ozone/biological activated carbon process. IWA Specialist Conference on Natural Organic Matter in Water 2019. 2019, C-4-4.

Tada Y., Okuta E., Cordero J.A., Kosaka K., Echigo S., He K., Funaoka H., Kurata A., Itoh S. Characterization of trichloroacetic acid precursors originated from raphidophytes using HPLC fractionation. IWA Specialist Conference on Natural Organic Matter in Water 2019. 2019, D-6-3.

多田悠人, J.A. Cordero, 越後信哉, 伊藤禎彦. 塩素処理における共存マンガニイオンのハロ酢酸生成能への影響, 第 54 回日本水環境学会年会講演集. 2020, 52.

小坂浩司, 鈴木知美, 吉田伸江, 秋葉道宏. 芳香族アミン類の塩素処理による 2,6-ジクロロ-1,4-ベンゾキノンと p-キノニンイミド類の生成特性, 第 55 回日本水環境学会年会講演集, 京都, 2021.3, 184.

施昊, 松本創, 川口佳彦, 小坂浩司, 越後信哉, 伊藤禎彦 (2019) 窒素化合物のカルキ臭生成特性および臭化物イオンの共存影響の調査, 令和元年度全国会議(水道研究発表会)講演集, 842-843.

小坂浩司, 施昊, 松本創, 川口佳彦, 越後信哉,

伊藤禎彦 (2019) 窒素化合物由来のカルキ臭原因物質の生成特性, 環境衛生工学研究, 33(3), 97-99.

林寛之, 池永健太郎, 松下拓, 松井佳彦, 白崎伸隆 (2020) GC-O を用いたカルキ臭原因物質の分離・回収と Orbitrap 質量分析計を用いた構造推定, 第 54 回日本水環境学会年会, 年会優秀発表特別賞(クリタ特別賞).

池永健太郎, 松下拓, 松井佳彦, 白崎伸隆 (2021) GC-MS-O を用いた浄水カルキ臭原因物質の推定, 第 55 回日本水環境学会年会.

松本 真理子, 川村 智子, 井上 薫, 山田 隆志, 広瀬 明彦: 水道水中の汚染化学物質に対する亜急性参照値の導出, 日本毒性学会 (2019 年 6 月, 大阪)

Mariko Matsumoto, Toshime Igarashi, Kaoru Inoue, Takashi Yamada, Akihiko Hirose: Hazard assessment of hydrazine, a possible migration contaminant from drinking water apparatus, EUROTOX 2019 (2019 年 9 月, ヘルシンキ)

松本 真理子, 重田善之, 川村 智子, 井上 薫, 山田 隆志, 広瀬 明彦: 短期的緊急時における人の健康を守るための水道水中汚染物質濃度の提案, 日本毒性学会 (2020 年 6 月, web 開催)

Mariko Matsumoto, Yoshiyuki Shigeta, Yasumasa Murata, Nozomu Hirose, Takako Iso, Akihiko Hirose: Derivation of Subacute Guidance Values of Inorganic Metal Contaminants Controlled by the Drinking Water Quality Standards in Japan, SOT 2021 (2021 年 3 月, web 開催)

松本真理子, 村田康允, 広瀬望, 重田善之, 磯貴子, 広瀬明彦: 水道水要検討項目「酢酸ビニル」の有害性評価 第 48 回日本毒性学会学術年会 (2021 年, 7 月)

村田康允, 重田善之, 磯貴子, 広瀬望, 松本真理子, 広瀬明彦: 水道水要検討項目「プロモジクロロ酢酸」の有害性評価 第 48 回日本毒性学会学術年会 (2021 年, 7 月)

Mariko Matsumoto, Yasumasa Murata, Nozomu Hirose, Yoshiyuki Shigeta, Takako

Iso, Akihiko Hirose: Hazard assessment of disinfection by-products, bromo chloroacetic acid and bromo dichloroacetic acid, in drinking water 56th EUROTOX (2021年, 9月)

土屋裕子, 小林憲弘, 高木総吉, 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法に用いる検量線の定量精度に関する検討, 第28回環境化学討論会 (2019.6.12 埼玉県さいたま市).

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ターゲットスクリーニング分析法を用いた水道水・水道原水中農薬の実態調査とその定量精度の検証, 第28回環境化学討論会 (2019.6.13 埼玉県さいたま市).

高木総吉, 小池真生子, 長谷川有紀, 安達史恵, 吉田仁, 小林憲弘, 山口進康. 水道水質における農薬類検査法としてのGC-MSターゲットスクリーニング分析法の有用性評価, 第28回環境化学討論会 (2019.6.13 埼玉県さいたま市).

小林憲弘, 土屋裕子, 高木総吉, 五十嵐良明. GC/MSターゲットスクリーニング分析法による水道水・水道原水中農薬の実態調査とその分析精度の評価, 第22回日本水環境学会シンポジウム (2019.9.6 北海道札幌市).

高木総吉. 水道原水・浄水試料におけるGC/MSターゲットスクリーニング分析法の定量精度について, 環境科学会2019年会 (2019.9.14 愛知県名古屋市)

土屋裕子, 小林憲弘, 五十嵐良明. 水道水中の塩素酸・亜塩素酸・過塩素酸・臭素酸のLC/MS/MS一斉分析法の開発, 環境科学会2019年会 (2019.9.13 愛知県名古屋市).

Kobayashi, N., Tsuchiya, Y., Takagi, S., Ikarashi, Y. Application and quantitative accuracy evaluation of GC/MS target screening analytical method for agricultural chemicals in raw and ground water. SETAC North America 40th Annual Meeting (2019.11.4 Toronto, ON, Canada).

高木総吉, 小池真生子, 長谷川有紀, 安達史恵, 吉田仁, 小林憲弘, 山口進康. ターゲットスクリーニング分析法を活用した未知農薬類の探索について, 令和元年度全国会議 (水道研究

発表会) (2019.11.8 北海道函館市)

高木総吉, 小池真生子, 長谷川有紀, 安達史恵, 吉田仁, 小林憲弘, 山口進康. 水質監視手法としてのGC/MSターゲットスクリーニング分析法の応用について, 第56回全国衛生化学技術協議会年会 (2019.12.6 広島県広島市)

小林憲弘, 土屋裕子, 五十嵐良明. 水道水中の陰イオン類のLC/MS/MS一斉分析法の開発と妥当性評価, 第56回全国衛生化学技術協議会年会 (2019.12.6 広島県広島市).

土屋裕子, 小林憲弘, 高木総吉, 五十嵐良明. 水道原水・水道水中の農薬類のGC/MSターゲットスクリーニング分析法による実態調査と定量精度の評価, 第56回全国衛生化学技術協議会年会 (2019.12.5 広島県広島市).

小林憲弘, 土屋裕子. 水道水中農薬のGC/MSスクリーニング分析法のバリデーション試験, 統計数理研究所共同研究「令和2年度 情報科学による環境化学分野の問題解決と新展開に関する研究集会」(オンライン開催), 2021/2/15.

Kobayashi, N., Tsuchiya, Y., Takagi, S., Ikarashi, Y. GC/MS target screening method for 176 agricultural chemicals in drinking water samples. SETAC North America 41st Annual Meeting (Online), 2020/11/15-20.

Takagi, S., Hasegawa, Y., Koike, M., Yoshida, J., Adachi, F., Kobayashi, N., Kadokami, K., Yamaguchi, N. Concentrations of agricultural chemicals in water sources by the target screening method using LC-QTOF-MS-SWATH. SETAC North America 41st Annual Meeting (Online), 2020/11/15-20.

高木総吉, 長谷川有紀, 小池真生子, 吉田仁, 安達史恵, 小林憲弘, 門上希和夫, 山口進康. 液体クロマトグラフ-四重極飛行時間型質量分析計によるターゲットスクリーニング分析法を用いた水道水源中農薬類の存在実態の把握, 第68回質量分析総合討論会(紙上開催), 2020.

吉田仁, 高木総吉. 水道水質における有機フッ素化合物の一斉分析法の検討, 令和2年度全国会議 (水道研究発表会) (紙上開催), 2020.

Takagi, S., Yoshida, J., Adachi, F., Hasegawa, Y.,

Koizumi, Y., Nakajima, T., Taniguchi, T., Yamaguchi, N. Wide Distribution of Per- and Polyfluoroalkyl Substances in Raw and Drinking Water in Osaka, Japan. SETAC North America 42nd Annual Meeting (online), 2021/11/14-18.

高木総吉, 鈴木俊也, 川元達彦, 小林 浩, 西村哲治, 森田久男, 石橋融子, 川崎直人, 北村壽朗, 環境試験法, 水質試験法, ペルフルオロアルキルおよびポリフルオロアルキル化合物 (PFAS), 日本薬学会第 142 年会(オンライン開催), 2022/3/26.

## 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 (ウイルス) 分科会>

北澤 弘美	(公社) 日本水道協会工務部
小田 琢也	神戸市水道局事業部水質試験所
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
板持 雅恵	富山県衛生研究所ウイルス部
鳥居 将太郎	東京大学大学院工学系研究科
瀧野 博之	国立保健医療科学院生活環境研究部

### <微生物 (細菌) 分科会>

大河内 由美子	麻布大学 生命環境科学部
浅田 安廣	国立保健医療科学院 生活環境研究部
中西 智宏	京都大学大学院 工学研究科

### <微生物 (寄生虫等) 分科会>

井上 亘	神戸大学大学院農学研究科
古川 紗耶香	青森市企業局水道部
鎌田 智子	神奈川県内広域水道企業団技術部
大杉 由利子	神奈川県企業庁企業局
宮本 雅史	横浜市水道局
藤瀬 大輝	川崎市上下水道局
古口 健太郎	川崎市上下水道局
森山 富美	横須賀市上下水道局
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
中嶋 直樹	神奈川県衛生研究所

### <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
関川 慎也	八戸圏域水道企業団水質管理課
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検査課
浅見 真紀	茨城県企業局水質管理センター
神谷 航一	茨城県企業局水質管理センター
吉田 岳己	千葉県企業局水質センター
木下 英二	千葉県企業局水質センター
今井 美江	東京都水道局水質センター
広木 孝行	東京都水道局水質センター

	一
藤巻 志津恵	神奈川県内広域水道企業団浄水部西長沢浄水場
金子 透	神奈川県内広域水道企業団浄水部
高橋 英司	新潟市水道局技術部水質管理課
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
谷口 佳二	神戸市水道局事業部水質試験所
山口 敏彦	神戸市水道局事業部水質試験所
山本 徹	奈良県水道局広域水道センター水質管理センター
高林 泰斗	奈良県水道局水質管理センター
吉野 泰盛	広島市水道局技術部水質管理課
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

<消毒副生成物分科会>

小牧 裕佳子	静岡県立大学
大瀬 俊之	東京都水道局
今井 美江	東京都水道局
柴 雅彦	茨城県企業局
関 純子	茨城県企業局
豊田 大晃	北千葉広域水道企業団
渡邊 みどり	北千葉広域水道企業団
柿沼 良介	川崎市上下水道局
眞鍋 晋	川崎市上下水道局
船岡 英彰	京都市上下水道局
岩谷 健斗	京都市上下水道局
北本 靖子	大阪市水道局
今中 壮一	大阪市水道局
孝石 健	大阪広域水道企業団
竹田 泰治	大阪広域水道企業団

中谷 悠	奈良県水道局
山中 俊弥	奈良県水道局
片木 孝徳	阪神水道企業団
塩川 敦司	沖縄県企業局
愛甲 俊郎	沖縄県企業局
鈴木 知美	国立保健医療科学院生活環境研究部

<臭気分科会>

今井 美江	東京都水道局
大瀬 俊之	東京都水道局
清宮 佳幸	千葉県企業局水道部
庭山 秀一	新潟市水道局技術部

<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
西村 哲治	帝京平成大学
小林 憲弘	国立医薬品食品衛生研究所
井上 薫	国立医薬品食品衛生研究所
山田 隆志	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
長谷川 隆一	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
山口 治子	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
重田 善之	国立医薬品食品衛生研究所
村田 康允	国立医薬品食品衛生研究所
広瀬 望	国立医薬品食品衛生研究所
馬野 高昭	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
大畑 秀雄	国立医薬品食品衛生研究所

<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
--------	--------------

	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
小池 真生子	(地独)大阪健康安全基盤研究所
長谷川 有紀	(地独)大阪健康安全基盤研究所
鈴木 俊也	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
小杉 有希	東京都健康安全研究センター
飯田 春香	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
渡邊 喜美代	東京都健康安全研究センター
栗田 翔	東京都健康安全研究センター
小田 智子	東京都健康安全研究センター
坂田 脩	埼玉県衛生研究所
渡邊 弘樹	埼玉県衛生研究所
今井 浩一	埼玉県衛生研究所
清野 弘孝	千葉県衛生研究所

橋本 博之	千葉県衛生研究所
神力 絢子	千葉県衛生研究所
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
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
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
門上 希和夫	北九州市立大学
寺中 郁夫	埼玉県水質管理センター
小嶋 隼	埼玉県水質管理センター
代 龍之介	埼玉県水質管理センター
野村 あづみ	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
粕谷 智浩	(一財)千葉県薬剤師会検査センター
松澤 悠	(一財)千葉県薬剤師会検査センター
山口 和彦	(一財)千葉県薬剤師会検査センター
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
古川 浩司	(一財)三重県環境保全事業団

