

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）の有効性を検討してきた。この中で水道原水において PMMoV よりも高濃度で検出される場合が見られたロタウイルス A（RVA）ではウシやブタの RVA 遺伝子型が高頻度であったが、ヒトの遺伝子型が優占する試料も一部にあった。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 $3.4 \log_{10} \text{copies/L}$ だった。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 $40 \text{ mg-Cl}_2\text{-min/L}$ （pH7.0）、 $100 \text{ mg-Cl}_2\text{-min/L}$ （pH8.0）であり、配水池出口までで確保可能な値であった。水道事業者の水質担当者がろ過水や浄水中の PMMoV を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、40 mL の試料から $40 \mu\text{L}$ の核酸を抽出・精製するキットを用いることで、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。

従属栄養細菌数は一般細菌数よりも細菌類再増殖の影響を受けやすく、目標値設定には細菌類の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、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、塩素処理試料において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。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。レジオネラ属菌の再増殖は週 1 回以上の塩素接触によって抑制される可能性が示された。

耐塩索性病原微生物の検査における精度管理を例示し、検査技術の維持に資することが確認されたが、定期的な訓練の必要性も認識された。

令和 2 農薬年度の農薬製剤出荷量は昨年とほぼ同じであったが、登録農薬原体数は増加が続いている。令和 3 年度の研究班による農薬類の実態調査では、最大検出濃度は原水で 5 農薬が $1 \mu\text{g/L}$ 超過、浄水では 8 農薬が $0.1 \mu\text{g/L}$ 超過であった。個別農薬評価値は原水ではテフリトリオンが 0.80 と高い値であった。イプフェンカルバゾン浄水においても比較的高い濃度、頻度で検出された。21 種の有機フッ素化合物 PFAS の全国の浄水場の実態調査を行ったところ、一部の有機フッ素化合物は比較的高い割合で検出されたが、ペルフルオロオクタンスルホン酸（PFOS）とペルフルオロオクタン酸（PFOA）の合計は目標値を超える場合は無かった。粉末活性炭処理では Log D が大きい（疎水性が高い）PFAS ほど除去率が高い。ピリダフェンチオンについては原体に加えてそのオキソン体も測定対象とするべきであると提言された。

浄水中のハロアセトアミド（HAcAms）は総 THMs（浄水）と同様に水温および塩素注入率が高い夏季に生成が増す傾向であった。ハロベンゾキノンの細胞毒性の強さは、 $\text{QC(p-quinone-4-chloroimide)} \gg \text{DCQC(2,6-dichloro-quinone-4-chloroimide)} > \text{DCBQ(2,6-dichloro-1,4-benzoquinone)}$ であることを示した。塩素酸濃度上昇の原因は貯蔵期間や温度によるものが多かったが、そ

の他として貯留槽への外気流入の影響を受けた事例を確認した。珪藻類オーラコセイラや珪藻類スケルトネマ・サブサルサムは塩素添加により樹脂臭の原因物質 1-hexen-3-one を放出または生成する。消毒副生成物の全国調査では、塩素化体の消毒副生成物濃度には関連性があり、また、消毒副生成物間の Bromine Incorporation Factor の関連性が認められた。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、国内水道事業体の測定データを用いて解析を行った。その結果、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副生成物の目安（マーカー）となる可能性が示された。

全揮発性窒素化合物（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。臭気原因物質の一つとしてベンズアルデヒドの可能性が示された。実際の臭気強度の測定では残留塩素を消去後と消去せずに行っている水道事業体があることが分かった。メチルアミンなどを含む原水の場合には二段階塩素処理がトリクロロアミン生成量の低減に対して有効であった。実浄水からメチルアミンなどが検出されたが、この原水ではカルキ臭への寄与は限定的であると推察された。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、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たのちに、粉末活性炭あるいはオゾン処理高度浄水処理を行うことが効果的であると考えられた。

PFOS 及び PFOA の水道水中の目標値の試算を行った。最新の毒性情報を収集整理し、キースタディの選定を行い、生理学的薬物動態(PBPK) モデルを構築・実施するとともに、ヒト等価量からの目標値の試算を行った。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 とした。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。

水質分析法に関する研究としては、まず液体クロマトグラフ-四重極飛行時間型質量分析計 (LC-Q/TOFMS) を用いたスクリーニング分析法のデータベースを再構築し、実試料による定量精度の評価を行った。その結果、スクリーニング分析法で実試料から同定された 74 種の農薬類の約 86% が 0.50 以上~2.00 以内の濃度比で分析可能であり、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。また、水質検査の対象農薬としてリストアップされている 172 農薬を対象として、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メーカーが異なる 2 台の装置で合計 7 回作成し、相互比較を実施した。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は、ほとんどの農薬が 5 倍以内の定量誤差で測定され、有用性が示された。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た結果、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

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

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 官

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

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する。今年度は、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6つの研究タスクを実施した。1) 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。2) 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。3) 実浄水場の

UF 膜ろ過処理における PMMoV の除去性評価。4) 塩素処理における病原ウイルスの不活化特性評価。5) 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。6) 水道水中の PMMoV 検査方法の検討。

微生物（細菌）：細菌汚染として水質管理目標設定項目である従属栄養細菌、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、関連する文献調査ならびに実態調査を行った。具体的には従属栄養細菌数測定について、全国 21 浄水場での実態について調査した。続いて、室内実験により浄水プロセス試料に対して異なる条件で塩素処理を行った後、残留塩素消失過程を模擬することで、レジオネラ属菌、従属栄養細菌数、自由生活性アメーバ(FLA)の再増殖を経時的に調べた。最後に室内実験に基づき、給水管内面が間欠的に残留塩素と接触する状況でのレジオネラや生物膜の増殖特性を評価した。

微生物（寄生虫等）：

水道のクリプトスポリジウム等検査法は、遺伝子検査も可能だが、顕微鏡検査を基本となっており、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く、検査結果は原水水質、検査手法、検査者の技量等により変動する恐れがある。しかし、他の試験検査と異なり、外部精度管理が導入されておらず、日頃から試験精度を把握している検査機関は少ないと推察される。そこで、耐塩素性病原微生物の検査における精度管理とその有効性を例示することを目的とした。

化学物質・農薬: 水道水源で使用される化学物質・農薬の状況を把握し、水道の水質管理の向上に資するため、実態調査を実施し、検出傾向の解析を行った。有機リン系農薬について、代謝を考慮した場合としない場合のコリンエステラーゼ (ChE) 活性阻害試験を行った。また、有機フッ素化合物 (PFASs) を対象に、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)、塩素酸、塩化シアン、臭気物質、ハロ酢酸、トリハロメタン等を対象に、生成実態・特性、分析技術、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、現行の基準項目が未規制の消毒副生成物のマーカーとして利用できるか検討を行った。

臭気物質:

実際の試料 (水道水) を用いて、揮発性窒素 (以下、TPN: Total Purgeable Nitrogen) と臭気強度 (残留塩素含む) の関係を調査し、カルキ臭の代替指標としての TPN の有効性・妥当性を評価した。昨年度までの検討にて GC/olfactometry により、原水の塩素処理水で臭気原因として 2 物質があげられていたが、その内デカナールはカルキ臭には寄与していないと判断されたことから、残りの候補を調べた。臭気に関連する検査について、水道事業体がどのような条件で検査しているか調査した。また、カルキ臭対応集として、文献調査によりカルキ臭原因物質や前駆物質の分析方法、低減方法、浄水処理性について整理した。さらに、アミンを塩素処理した場合の未同定カルキ臭原因物質の構造推定を行った。また、二段階塩素処理が、上記で推定したトリクロラミン以外のカルキ臭原因物質に対して有効か確認し、二段階塩素処理による制御性を確かめた。

リスク評価管理: 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かつ体内からの消失速度が遅く毒性影響が高いことから、日本国内における関心も高まっている。本年度は PFOS 及び PFOA 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とした。

水質分析法: 昨年度までにスクリーニング分析用に液体クロマトグラフ-四重極飛行時間型質量分析計 (LC-Q/TOFMS) を用いたスクリーニング分析法を開発するため、データベースの

構築を行い、実試料への適用を行った。さらに、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ついてこれまでに検討してきた。本年度は、LC-Q/TOFMS については、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。GC/MS ターゲットスクリーニング分析法については、水道水質検査に適用するに当たって、測定値の再現性や装置状態の確認等の課題の検討を行った。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 14 名の他に 47 もの水道事業体や研究機関などから 92 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 6 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 8 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 11 名)、臭気分科会 (研究分担者 3 名、研究協力者 3 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 31 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）

PMMoV よりも RVA 濃度が高かった 7 地点の浄水場原水試料では、ウシやブタの RVA 遺伝子型が高頻度で検出され、動物による汚染が顕著であることがわかった。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 $3.4 \log_{10} \text{copies/L}$ だった（表 1）。さらに、図 1 に示すように、水源に都市排水が含まれる浄水場 E, F, I, J, N では PMMoV は原水から 10^6copies/L のオーダーで検出されたが、高度処理が導入されている浄水場 J および N のろ過水や浄水試料ではほとんど不検出だった。また、高度処理が導入されていない浄水場 E, F, I のろ過水や浄水試料中の PMMoV 濃度は最大で $3.2 \log_{10} \text{copies/L}$ であった。

UF 膜ろ過処理を実施している国内の浄水場における PMMoV の除去率を評価した。昨年度及び今年度実施した合計 5 回の採水において、実浄水場の 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。塩素処理対象水の pH は、CVB5 の不活化に大きく影響し、pH 8.0 においては、9 log 不活化に必要な塩素処理の CT 値は $100 \text{mg-Cl}_2\text{-min/L}$ 程度であることが明らかとなった（図 2, 3）。pH 7.1–7.2 の砂ろ過水を用いた場合の塩素処理における 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、塩素消毒対象水（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、水質の差異が不活化に与える影響は小さいものと判断された。昨年度報告したように、本研究でこれまでに対象とした浄水場 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 $840\text{--}1,300 \text{mg-Cl}_2\text{-min/L}$ の CT 値が確保されていることから、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。

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。水温を考慮して年間を通じて 8 log 不活化に必要な CT 値を推定した結果、浄水場 α で $27.5 \text{mg} \cdot \text{min/L}$ となった（例：残留塩素濃度 0.5mg/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。Promega Wizard Enviro Total Nucleic Acid Kit を用いることで 40 mL の試料から 40 μL の RNA を抽出・精製することができ、PMMoV 濃度を 10^3copies/L に調製した試料の 3/3 検体で PMMoV が陽性となった（図 4）。水道水に 10^3copies/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。

表 1. 国内 21 浄水場の原水、ろ過水、浄水試料の PMMoV 検出状況

採水月	原水		ろ過水		浄水	
	検出率 [%]	濃度の範囲 [$\log_{10} \text{copies/L}$]	検出率 [%]	濃度の範囲 [$\log_{10} \text{copies/L}$]	検出率 [%]	濃度の範囲 [$\log_{10} \text{copies/L}$]
2020 年 1 月	95	不検出–6.4	43	不検出–3.3	48	不検出–3.3

2020年10月	100	3.6-5.8	29	不検出-2.6	38	不検出-2.8
2021年1月	100	4.4-6.7	29	不検出-3.2	38	不検出-2.9
2021年10月	81	不検出-6.3	4.8	不検出-3.0	9.5	不検出-2.3
2022年1月	95	不検出-6.3	33	不検出-3.4	48	不検出-3.4

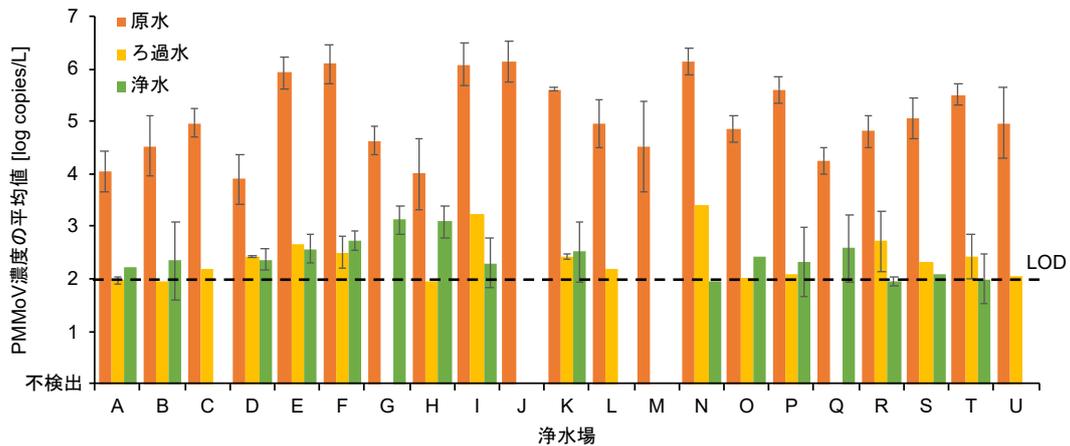


図1 国内21浄水場の原水，ろ過水，浄水試料中のPMMoV濃度の平均値．2020年1月，10月，2021年1月，10月，および2022年1月に採水した試料（それぞれN=5）について，検出濃度の平均値を示した．エラーバーは，標準偏差を示した．検出下限はおよそ2 log₁₀ copies/L．

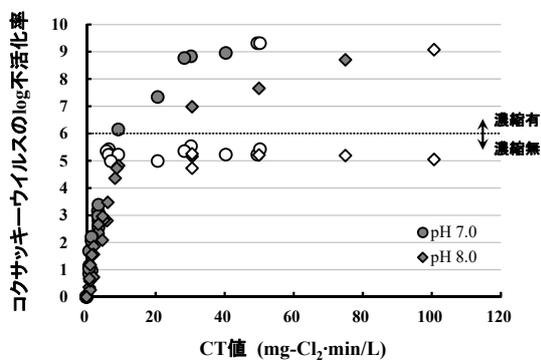


図2 リン酸バッファーを用いた塩素処理におけるCVB5の不活化特性．白抜きのは値は定量下限値以下であったため，定量下限値をプロットした．

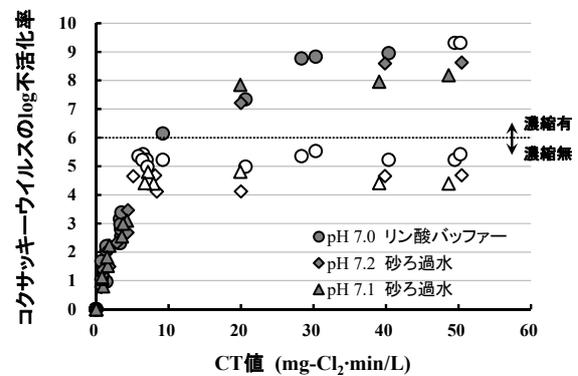


図3 塩素処理対象水の水質の差異がCVB5の不活化に与える影響．白抜きのは値は定量下限値以下であったため，定量下限値をプロットした．

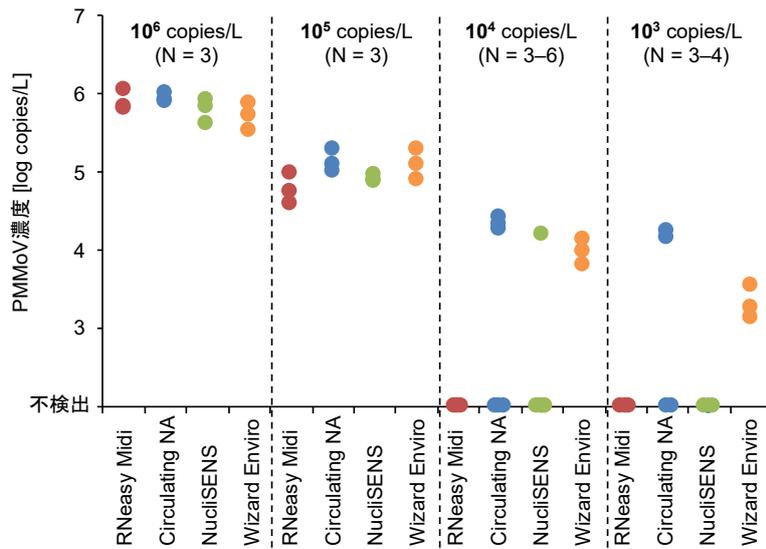


図4 PMMoV 添加水道水試料を用いた RNA 抽出精製キットの比較. PMMoV 濃度が 10^6 , 10^5 , 10^4 , 10^3 copies/L となるように調製した水道水試料から, Qiagen RNeasy Midi Kit, Qiagen QIAamp Circulating Nucleic Acid Kit, bioMérieux NucliSENS, および Promega Wizard Enviro Total Nucleic Acid Kit の 4 つのキットを用いてウイルス RNA を抽出・精製し, リアルタイム RT-PCR で PMMoV 濃度を定量した.

(1-2) 微生物 (細菌)

一般細菌数と従属栄養細菌数の関係性評価: 全国 21 浄水場の原水, ろ過水, 浄水での一般細菌数と従属栄養細菌数の測定結果に基づき, 相関関係を評価した (図 5). 決定係数は 0.75 と相関性が高い傾向を示した. しかし, 一般細菌数が 1 CFU/mL を下回る試料において, 従属栄養細菌数の範囲が広く, バラツキが大きい結果となった. これは, 細菌類の再増殖が影響していると推察される. 一般細菌数と従属栄養細菌数の関係性より基準値を設定する際には, 細菌類の再増殖を考慮した上で検証する必要があると言える.

残留塩素消失過程を模擬した微生物再増殖試験による従属栄養細菌の指標性評価: 室内実験により, 塩素処理試料において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ることが確

認された. 1 試料を除いて, FLA の増殖確認日より 3~12 日前に従属栄養細菌の増殖が確認され, 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おり, 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.

給配水管内におけるレジオネラ属菌に関する挙動モデルの構築: 給配水管を模擬した試験片上の従属栄養細菌数の推移は, 総じて塩素接触頻度の違いによる明確な影響は見られず, 毎回の塩素接触によって生物膜中の従属栄養細菌は不活化されるものの, 次回の塩素接触までの数日間で急速に再増殖していることが推察された. レジオネラ属菌は塩素接触のない条件のみ検出されたが塩素接触のある系では全期間で不検出であったことから, 間欠的な塩素接触によって生物膜でのレジオネラ増殖が抑制された可能性が考えられる.

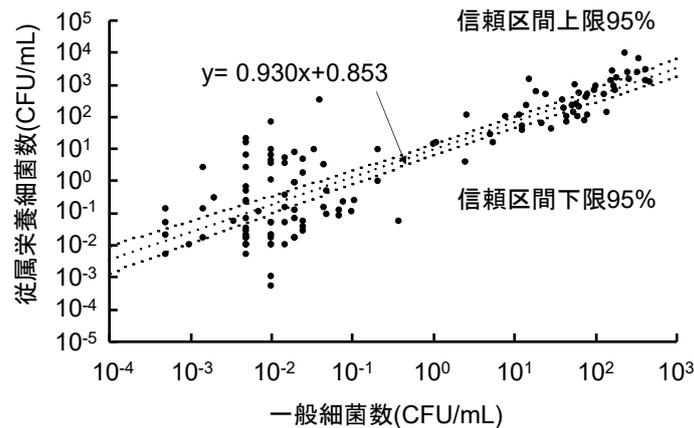


図5 一般細菌数と従属栄養細菌数の関係性評価

(1-3) 微生物（寄生虫等）

河川表流水を水源とするある水道事業者では、検査技能の維持や精度の把握を目的とした訓練が年1回実施されており、その内容は参考になると言えた。しかし、クリプトスポリジウム検査は煩雑な作業を要し、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。陽性コントロールは、安価に頻回に使えるよう、Alexa594 標識した固定試料を用意した。試験精度を高めるため、陽性コントロールの取り扱い方法を統一した。施設間の比較には、同じ河川水試料を試験試料として統一して使用した。陽性コントロールを計数した結果、変動係数は概ね 20%以内であった。5 水道事業者の間で添加回収試験を行い、いずれも回収率は 50%以上、変動係数も 20%以内と良好であった。5 事業者は同一水系で取水しており、信頼性良く原水水質を共同監視できる体制が整っていると云えた。

(2) 化学物質・農薬

令和 2 農薬年度の農薬製剤出荷量は約 22.3 万 t で昨年とほぼ同じであった。登録農薬原体数は令和 2 年 9 月現在 596 種類で、登録農薬原体数は平成 16 農薬年度以降、増加が続いている。登録農薬製剤数は令和 2 年 9 月現在、殺虫剤が 1046、殺菌剤が 885、殺虫殺菌剤が 413、除草剤が 1606 で、合計は 4275（前年比 416 件増）と大きく増加し、一昨年と同程度となっている。

令和 3 年度の研究班による農薬類の実態調査の結果、原水では 81 種、浄水では 36 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 54 種、浄水では 21 種が検出された。Σ 値の最大値は、原水が 1.00、浄水が 0.06 であった。最大検出濃度は、原水では 5 農薬が 1 μg/L を超過しており、浄水では 8 農薬が 0.1 μg/L を超過していた。検出率は、原水では 5 農薬の検出率が 20% を超過した。浄水では 2,4-DB が 63% と高い値を示したが、調査を実施した 1 事業者で測定数も 16 回であることから今後、更なる調査が必要である。個別農薬評価値は、原水ではテフリルトリオンが 0.80 と高い値を示し、それ以外で 2 農薬が 0.1 を超えていた。浄水では 6 農薬が 0.01 を超えていた。

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。イプフェンカルバゾン 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対象農薬リスト掲載農薬に変更されることとなっており、水道水源においてリスクが高い農薬が、速やかに分類変更が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。

21 種の有機フッ素化合物の全国の浄水場の実態調査を行ったところ、一部の有機フッ素化合物は比較的高い割合で検出されたが、PFOS と PFOA の合計は目標値を超える場合は無かった。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。

ピリダフェンチオンは塩素処理で消失するが、その 20% はオキソン体へと変換された。代

謝を考慮しない ChE 阻害試験（直接毒性）と代謝を考慮した ChE 活性阻害試験（間接毒性）を組み合わせ、ピリダフェンチオンの塩素処理に伴う毒性変動を調べた結果、ピリダフェンチオンオキソンは、他の有機リン系農薬のオキソン体より高いことが分かった。さらに、塩素処理前試料と塩素処理試料が誘発した毒性は、ピリダフェンチオンとオキソン体由来であることが分かった。以上のことから、ピリダフェンチオンについては原体に加えてそのオキソン体も測定対象とすることが提言された。

(3) 消毒副生成物

総ハロアセトアミド (HAcAms) は、浄水処理工程において殺藻用塩素注入により沈澱処理水で生成し、オゾン処理では増減しないものの、活性炭処理により低減した。次いでろ過水では中間塩素処理及び後塩素注入により生成され、浄水はさらに生成した。水温および塩素注入率が高い夏季に浄水の HAcAms の生成が増す傾向であった。これは、浄水の総トリハロメタン (THMs) と同様の生成傾向であった。活性炭による処理について、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。

ハロベンゾキノロン類 (2,6-dichloro-quinone-4-chloroimide (DCQC) , 2,6-dichloro-1,4-benzoquinone (DCBQ), p-quinone-4-chloroimide (QC)) について、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、QC >> DCQC > DCBQ であることを示した。

用水供給事業に比較して規模の小さい水道事業の浄水場で、過去 10 年間に浄水場出口の塩素酸が 0.20 mg/L を超えて検出される事例が多くあった。塩素酸濃度上昇の原因は、次亜塩素酸ナトリウムの貯蔵期間や貯蔵温度によるものが多かったが、その他にも次亜塩素酸ナトリウム貯留槽への外気流入の影響を受けた事例を確認した。

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 処理により除去され、GAC 処理以降の処理水ではシアン化合物は不検出であった。

珪藻類オーラコセイラは、塩素添加により細胞が破壊され体外に放出され、樹脂臭の原因物

質 1-hexen-3-one を放出することがわかった。活性炭処理により最大 90% 除去できることを示した。珪藻類スケルトネマ・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ることを示した。

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。

THM 生成能と 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を作成する手法を整理した。特に蛍光 1 成分でも有効なモデルが作成できることを示した。

高度浄水処理導入により総トリハロメタン濃度は低減されたが、臭素化トリハロメタンの生成割合、生成量は従来に比べ大きい傾向にある。BAC 処理後の THM 生成能と有機物指標項目 (E260, 蛍光強度) との相関は弱かった。

小規模浄水施設における原水水質悪化時のピークカットの有効性を示す事例を整理した。豪雨時の消毒副生成物濃度の上昇を確認した。

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 (図 6)。

消毒副生成物の全国調査では、塩素化体の消毒副生成物濃度には関連性があり、また、消毒副生成物間の Bromine Incorporation Factor (BIF) の関連性が認められた (図 7)。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 (図 8)。目標値案が示されたブロモクロロ酢酸、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。

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、国内水道事業体の測定データを用いて解析を行った。その結果、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 (図 9)、現行の基準項目がある程度未規制副生成物の目安 (マーカー) となる可能性が示された。

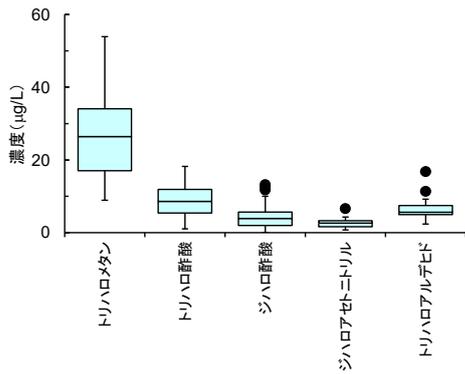


図6 各消毒副生成物グループの合計濃度の分布 (2021年10月)

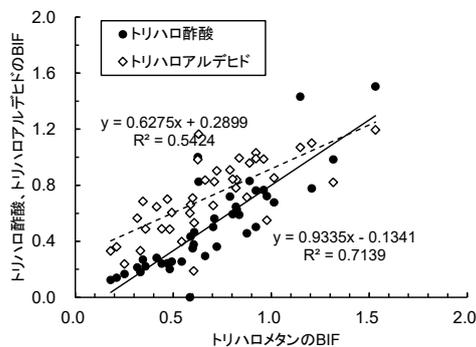


図7 トリハロメタンのBIFとトリハロ酢酸，トリハロアルデヒドのBIFの関係

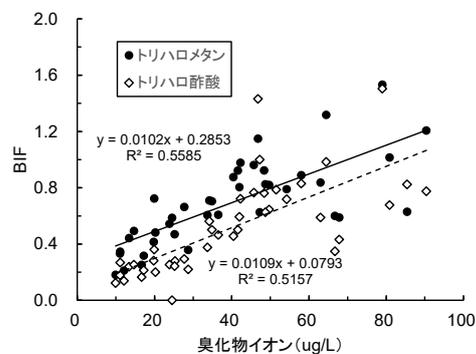


図8 原水の臭化物イオンとトリハロメタン，トリハロ酢酸のBIFの関係

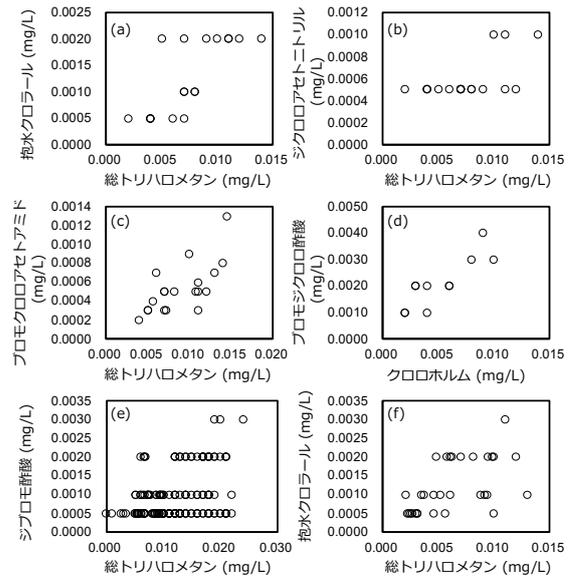


図9 確認された関係性の例 ((a),(b)C 事業体-1, (c)D 事業体-2, (d)F 事業体, (e) H 事業体-1, (f)I 事業体)

(4) 臭気物質

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。TPNと臭気強度の関係図(図10)より、多くのプロットが、直線(実験室にて調整したトリクロラミン水溶液における、TPNと臭気強度の関係)付近にあることから、トリクロラミンが主なカルキ臭原因物質であると考えられた。また、TPNが低い場合は(A浄水場ではTPN<0.004 mg/L程度、M浄水場ではTPN<0.006 mg/L程度)、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かった。このことから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。

GC/MSライブラリサーチと標準品を用いたGC/Olfactometryの組み合わせにより、全国8ヶ所の浄水場原水の塩素処理水で感知されたGC保持時間9.2~9.5分の臭気の原因物質は、ベンズアルデヒドである可能性が高いと判断され、塩素処理水のカルキ臭への寄与が示唆された。

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測定対象としていたが、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。

文献調査により、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。

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ロ体へと変化していることから、これらのジクロロロ体が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、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。今回対象とした窒素化合物については、トリクロラ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。アミン類による浄水臭気強度への寄与を推定したところ、メチルアミンは 1.5 程度であった。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 と物質により大きく異なる結果となった。

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。

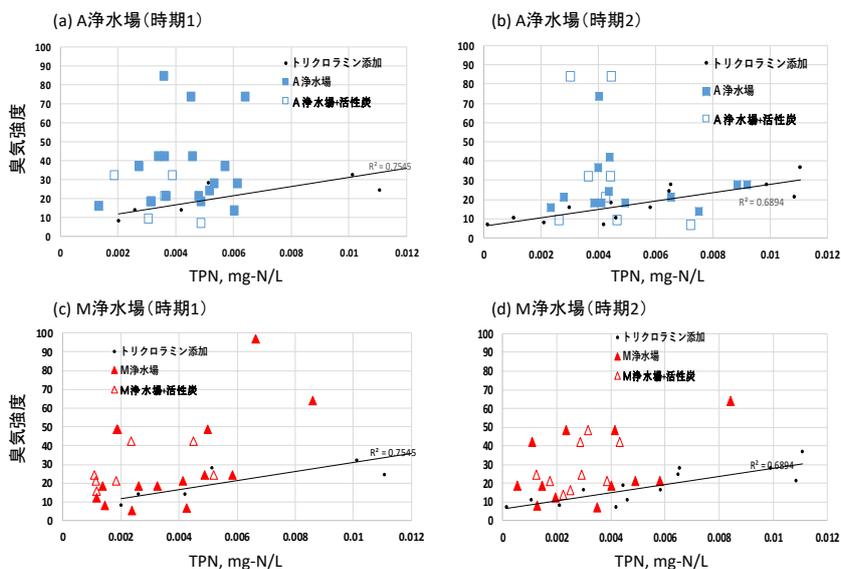


図10 新潟市の水道水における TPN と臭気強度の関係

(5) リスク評価管理

PFOS 及び PFOA は令和2年4月より水道水質基準等における位置づけが「要検討項目」から「水質管理目標項目」に変更され、PFOS 及び PFOA の量の和として 0.00005mg/L (50 ng/L) 以下という目標値が暫定的に適用されている。本年度は①PFOS 及び PFOA の最新の毒性情報を収集整理し、キースタディ候補の選定を行い、②生理学的薬物動態(PBPK) モデルの構築を行い、③ヒト等価量からの目標値の試算を行った。

① PFOS はラットの混餌投与で発生毒性影響が認められた2世代試験(Luebkerら, 2012)をキースタディとし、NOAEL : 0.1 mg/kg/day を参照用量導出の POD (Point of Departure) とした。PFOA については、妊娠マウスに17日間強制経口投与し、発生毒性影響が認められた発生毒性試験 (Lauら, 2006) をキースタディとし、LOAEL : 1 mg/kg/day を参照用量導出の POD とした。

② PFOS 及び PFOA のキースタディについて、POD における平均内部曝露量を PBPK モデルで解析し、母動物の平均血清中濃度として PFOS : 7.3 mg/L 及び PFOA : 38.9 mg/L が推定された。

③ PFOS 及び PFOA のヒトの半減期についてはいくつかの値が報告されている。このため、動物実験における内部曝露量をヒト等価量に換算すると、使用する半減期によって値は異なるが、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 の範囲となった(表2, 3)。なお、PFOS について、ヒトの PBPK モデルを用い、定常状態で PFOS 血中濃度が 7.3 mg/L となる外部曝露量を推定した結果は 6.5×10^{-4} mg/kg/day であった。PFOA については、定常状態で PFOA 血中濃度が 38.9 mg/L となる外部曝露量は 3.9×10^{-3} mg/kg/day であった。ともに半減期から推定された範囲の中であった。PFOS について、UF : 30 (個体差 : 10, 種差 : 3) を適用すると、参照用量は $2.0 \times 10^{-5} \sim 6.3 \times 10^{-5}$ mg/kg/day と算出された。水道水中の目標値を試算すると 50~158 ng/L となった。算出された参照用量の下限値は PFOS の暫定目標値案を検討した際に用いた TDI (20 ng/kg/day) と同値であり、現在の暫定目標値 50 (ng/L)] を支持する結果となった。

PFOA について、UF : 300 (個体差 : 10, 種差 : 3, LOAEL の使用 : 10) を適用すると、参照用量は $2.8 \times 10^{-6} \sim 8.4 \times 10^{-5}$ mg/kg/day と算出された。水道水中の目標値を試算すると 7~210 ng/L となった。報告されているヒト半減期が大きく異なっているため、算出された参照用量や目標値に大きな幅がある。しかし、PFOA の暫定目標値案を検討した際に用いた TDI (20 ng/kg/day) の根拠となっている Bartell ら (2010) の半減期を用いると、参照用量は 18 ng/kg/day となり、TDI に近い値となった。この参照用量を用いた目標値は $18 \times 50 \times 0.1/2 = 45$ ng/L となり、現在の暫定目標値 50 (ng/L) に近い値となった。

以上、現在の PFOS 及び PFOA の暫定目標値を含む結果が得られたが、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2 PFOS の半減期, ヒト等価量, 参照用量

情報源	半減期 (年)	ヒト等価量 (mg/kg/day)	参照用量 (mg/kg/day)
Olsen ら (2007) 職業曝露	5.4	5.9×10^{-4}	2.0×10^{-5}
Li ら (2018) 一般集団	3.4	9.4×10^{-4}	3.1×10^{-5}
Worley ら (2017) 一般集団	3.3	9.7×10^{-4}	3.2×10^{-5}
Xu ら (2020) 職域曝露	1.7	1.9×10^{-3}	6.3×10^{-5}

表3 PFOA の半減期, ヒト等価量, 参照用量

情報源	半減期 (年)	ヒト等価量 (mg/kg/day)	参照用量 (mg/kg/day)
Yeung ら (2013ab) 一般集団	14.9	8.4×10^{-4}	2.8×10^{-6}
Olsen ら (2007) 職業曝露	3.8	3.3×10^{-3}	1.1×10^{-5}
Bartell ら (2010) 一般集団	2.3	5.5×10^{-3}	1.8×10^{-5}
Xu ら (2020) 職域曝露	1.5	8.4×10^{-3}	2.8×10^{-5}
Dourson (2021) 臨床データ Elcombe ら (2013)	0.5	2.5×10^{-2}	8.4×10^{-5}

ーク面積比を基に算出した各検量線から得られる定量値の差の最大値

D. 結論

(1-1) 微生物（ウイルス）

PMMoV よりも RVA の濃度が高い原水試料に含まれた RVA の遺伝子型を解析した結果、すべての地点からウシやブタの遺伝子型が高頻度で検出され、動物による汚染が顕著であることがわかった。国内 21 箇所の浄水場から収集したろ過水および浄水試料中の PMMoV 濃度の最大値はろ過水、浄水試料ともに $3.4 \log_{10}$ copies/L だった。CVB5 の不活化に必要な塩素処理の CT 値は pH 8.0 で $100 \text{ mg-Cl}_2\text{-min/L}$ であり、配水池出口でこの値が達成されていれば、病原ウイルスは $9 \log$ 以上不活化されていると判断された。一方で 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。PMMoV を添加した水道水試料を用いて PMMoV の検査方法を検討し、PMMoV 濃度を 10^3 copies/L に調製した試料の 3/3 検体で PMMoV が陽性となった。

(1-2) 微生物（細菌）

一般細菌数と従属栄養細菌数に相関関係は見られたが、浄水とろ過水では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。室内実験では塩素処理試料において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ることが確認され、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。間欠的な塩素接触条件でレジオネラの再増殖が抑制される兆しが確認された。

(1-3) 微生物（寄生虫等）

河川表流水を水源とする水道事業体では、検査技能の維持や精度の把握を目的とした訓練が年 1 回実施されており、その内容は参考になると言えた。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った結果では回収率は概ね 50%以上と良好であった。

(2) 化学物質・農薬

令和 2 農薬年度の農薬製剤出荷量は約 22.3 万 t で昨年とほぼ同じであった。登録農薬原体数は平成 16 農薬年度以降、増加が続いている。

令和 3 年度の研究班による農薬類の実態調査では、 Σ 値の最大値は、原水が 1.00、浄水が

0.06 であった。最大検出濃度は、原水では 5 農薬が $1 \mu\text{g/L}$ を超過しており、浄水では 8 農薬が $0.1 \mu\text{g/L}$ 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。

21 種の有機フッ素化合物の全国の浄水場の実態調査では PFOS と PFOA の合計は目標値を超える場合は無かった。疎水性が高い PFAS ほど粉末活性炭によるの除去率が高い。

ピリダフェンチオンは塩素処理で消失するが、その一部はオキソン体へと変換され、強い ChE 阻害を示すことからピリダフェンチオンについては原体に加えてそのオキソン体も測定対象とするべきであると提言された。

(3) 消毒副生成物

総ハロアセトアミド HAcAms は水温および塩素注入率が高い夏季に生成が増す傾向であった。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、 $\text{QC} \gg \text{DCQC} > \text{DCBQ}$ であることを示した。

用水供給事業に比較して規模の小さい水道事業の浄水場における塩素酸濃度上昇の原因は貯蔵期間や温度によるものが多かったが、その他として貯留槽への外気流入の影響を受けた事例を確認した。シアン化合物はオゾン注入率が高くなると増加する傾向があったが、GAC により除去されていた。珪藻類オーラコセイラと珪藻類スケルトネマ・サブサルサムは塩素添加により樹脂臭の原因物質 1-hexen-3-one が放出／生成することがわかった。

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。THM 生成能と 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を作成する手法を整理した。高度浄水処理導入により総トリハロメタン濃度は低減されたが、臭素化トリハロメタンの生成割合、生成量は従来に比べ大きい傾向にある。小規模浄水施設における原水水質悪化時のピークカットの有効性を示す事例を整理した。豪雨時の消毒副生成物濃度の上昇を確認した。

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つ

た。

消毒副生成物の全国調査では、塩素化体の消毒副生成物濃度、消毒副生成物間の BIF にはそれぞれの関連性が認められた。総トリハロメタン等基準項目はある程度未規制副生成物の目安（マーカー）となる可能性が示された。

(4) 臭気物質

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。

GC/MS ライブラリサーチと GC/Olfactometry の組み合わせにより臭気原因物質の一つとしてベンズアルデヒドの可能性が示された。

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。

二段階塩素処理は、メチルアミン、エチルアミン、ピペラジン、*N,N*-ジメチルアニリンを塩素処理した場合のトリクロラミン生成量の低減に対して有効であったが、メチルアミン、エチルアミン、*N,N*-ジメチルアニリンを塩素処理した場合のジクロロ体生成量の低減に対しては効果が小さかった。一方で、千葉県企業局の浄水からメチルアミン、エチルアミン・ジメチルアミンが検出されたが、これらのカルキ臭への寄与は限定的であると推察された。

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、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たのちに、粉末活性炭あるいはオゾン処理高度浄水処理を行うことが効果的であると考えられた。

(5) リスク評価管理

国内外で関心の高い有害物質として、PFOS 及び PFOA の目標値試算を行った。PFOS 及び PFOA の POD 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。

(6) 水質分析法

LC-Q/TOFMS を用いたスクリーニング分析法のデータベースを再構築し、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 0.50~2.00 の濃度比で分析可能であるなどから、農薬類の簡便な測定手段として有用性が示された。

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、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、有用性が示された。一方で、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った。

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た結果、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、妥当性評価ガイドラインに示されている真度・併行精度の目標を満たした。

E. 健康危険情報

なし

F. 研究発表

1. 論文発表

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.

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

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.

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, 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, 松中宗平, 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, 2022. 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.

高木総吉, 長谷川有紀, 小池真生子, 吉田 仁, 安達史恵, 2022. 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.

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, 2022. 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.

古川浩司, 橋本 真, 小林珠美, 滝埜昌彦, 2022. 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.

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, 2022. 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.

岩間紀知, 窪田吉洋, 中村弘揮, 2022. 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.

2. 著書

なし

3. 解説・総説

なし

4. 学会発表

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).

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)

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)

安藤大将, 松下拓, 松井佳彦, 白崎伸隆 (2022) 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.

松下拓 (2021) 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.

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「ブロモジクロロ酢酸」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)

Sokichi Takagi, Jin Yoshida, Fumie Adachi, Yuki Hasegawa, Yoshihiko Koizumi, Takae Nakajima, Tadao Taniguchi, Nobuyasu Yamaguchi, Wide

Distribution of Per- and Polyfluoroalkyl Substances in Raw and Drinking Water in Osaka, Japan, SETAC North America 42nd Annual Meeting (2021.11.15 WEB 開催)

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 (2022.3.26 WEB 開催)

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>

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
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>

鎌田 智子	神奈川県内広域水道企業団技術部
藤瀬 大輝	川崎市上下水道局 水管理センター水道水質課
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
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
中沢 禎文	国立保健医療科学院生活環境研究部
上條 宏滋	八戸圏域水道企業団
寺嶋 誠	仙台市水道局
神谷 航一	茨城県企業局
木下 英二	千葉県企業局
広木 孝行	東京都水道局
藤巻 志津恵	神奈川県内広域水道企業団
金子 透	神奈川県内広域水道企業団
高橋 英司	新潟市水道局
高林 泰斗	奈良県水道局
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
木村 英雄	広島市水道局
佐藤 卓郎	福岡県南広域水道企業団
仲宗根 卓志	沖縄県企業局
佐藤 学	神奈川県衛生研究所理化学部
成田 健太郎	株式会社 NJS 東部支社東京総合事務所

<消毒副生成物分科会>

小牧 裕佳子	静岡県立大学
今井 美江	東京都水道局
関 純子	茨城県企業局

渡邊 みどり	北千葉広域水道企業団
眞鍋 晋	川崎市上下水道局
岩谷 健斗	京都市上下水道局
今中 壮一	大阪市水道局
竹田 泰治	大阪広域水道企業団
片木 孝徳	阪神水道企業団
中谷 悠	奈良県水道局
愛甲 俊郎	沖縄県企業局

<臭気分科会>

今井 美江	東京都水道局水質センター
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
馬野 高昭	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
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
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
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
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
今井 浩一	埼玉県衛生研究所
清野 弘孝	埼玉県衛生研究所
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

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
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

