

厚生労働科学研究費補助金研究成果等普及啓発事業

研究成果発表会

残留塩素に依存しない
新しい水道システムの構築に向けて

平成19年9月6日（木）

於：国立保健医療科学院別館講堂

主催：国立保健医療科学院
財団法人日本公衆衛生協会

厚生労働科学研究費補助金研究成果等普及啓発事業 研究成果発表会

残留塩素に依存しない新しい水道システムの構築に向けて

主 催： 国立保健医療科学院、(財)日本公衆衛生協会

日 時： 平成19年9月6日(木) 13:30～16:30

場 所： 国立保健医療科学院別館講堂(埼玉県和光市南2-3-6)

プログラム(予定)：

13:30-13:35 開会

13:35-13:40 来賓挨拶
滝村 朗 (厚生労働省)

13:40-13:50 水道における残留塩素保持の意義と課題
国包 章一 (国立保健医療科学院)

13:50-14:15 水道原水のクリプトスポリジウム等による汚染と
その健康リスク
西村 和之 (県立広島大学)

14:15-14:40 微生物の不活化効果および再活化特性から見た
消毒技術の評価
大瀧 雅寛 (お茶の水女子大学)

14:40-15:05 消毒副生成物による健康リスクの総括的評価
伊藤 禎彦 (京都大学)

(休憩15分)

15:20-15:45 水道の給配水過程における生物再増殖とその制御
島崎 大 (国立保健医療科学院)

15:45-16:10 水道水の給配水過程における病原微生物汚染による
健康リスクのシミュレーションモデルを用いた評価
船水 尚行 (北海道大学)

16:10-16:25 総合討議

16:25-16:30 閉会

目 次

水道における残留塩素保持の意義と課題 国包 章一（国立保健医療科学院水道工学部長）	1
水道原水のクリプトスポリジウム等による汚染とその健康リスク 西村 和之（県立広島大学環境科学科教授）	3
微生物の不活化効果および再活化特性から見た消毒技術の評価 大瀧 雅寛（お茶の水女子大学大学院人間文化創成科学研究科准教授）	5
消毒副生成物による健康リスクの総括的評価 伊藤 禎彦（京都大学大学院工学研究科教授）	1 1
水道の給配水過程における生物再増殖とその制御 島崎 大（国立保健医療科学院水道工学部 生活衛生適正技術開発主任研究官）	1 6
水道水の給配水過程における病原微生物汚染による健康リスクの シミュレーションモデルを用いた評価 船水 尚行（北海道大学大学院工学研究科教授）	2 3

水道における残留塩素保持の意義と課題

国包章一

(国立保健医療科学院水道工学部)

1. はじめに

水道の給配水過程における残留塩素の保持は、浄水処理における塩素消毒と併せて水道水の微生物学的安全性を確保する上で必須であるとされ、わが国では以前からこれらのことが国により義務づけられている。水道水の微生物学的安全性確保のために消毒が重要であることは、過去における水系感染症の発生に関する知見からも明らかである^{1)、2)}。しかし、いついかなる場合においても、残留塩素を保持することが必須かつ最善の選択と言えるか、ということに関しては疑問の余地がある。水道水質管理のより望ましい方向への発展を図るためには、このような点に関して、制度面における制約にとらわれずより柔軟な視点に立って考えることが重要である。

本稿では、厚生労働科学研究費補助金による地域健康危機管理研究事業「残留塩素に依存しない水道の水質管理手法に関する研究」(平成 17~19 年度)の動機付けとなった上記のような点を中心に、その背景や今後の検討課題などを含めて議論する。

2. 残留塩素保持義務をめぐって

残留塩素の保持が、水道水の微生物学的安全性を確保する上でどれだけ貢献しているか、定量的に評価するための十分な情報はない。長期的に見た客観的状況の変化として重要なのは、断水と漏水の著しい減少である。このことにより、今日では以前に比べて、配水過程における外部からの汚染のおそれのはるかに低くなっていると考えられる。一方、残留塩素を保持することの問題点として、消毒副生成物の生成に伴う健康リスクの増大、カルキ臭の発生に伴う快適性の喪失などが上げられる。これらはむしろ塩素消毒と直接関係しており、残留塩素の保持だけと結びつけて考えることはできないが、もし仮に残留塩素の保持が必要でなくなれば、これらの点に関して現状が大幅に改善されるであろうことは容易に想像される。

また、もし残留塩素の保持が義務でなくなれば、別の面での法規制による制約はあるものの、塩素剤によるもの以外の消毒技術、すなわち、オゾン、二酸化塩素および紫外線などによる消毒技術も、個々のケースにおいて有力な選択肢として位置づけることができる。さらに、浄水処理システム全体のあり方に対する波及効果も大いに期待し得る。

3. 「残留塩素なし」を実現するための必要条件

今日のわが国において「残留塩素なし」は実現できるであろうか。例えば、欧米諸国のうち残留塩素の保持を義務として掲げているのはごく一部の国であり、消毒すら義務づけていない場合もかなりある³⁾。諸条件が異なる欧米諸国と日本とを比較する際には、科学的根拠に基づいて議論する必要がある。「残留塩素なし」を実現するための基本的な必要条件としては、次のようなことが上げられるであろう。

①消毒が十分であること

②配水水質並びに配水システム(特に管路)の内面が良好な状態に保たれていて、腐食や生物再増殖による水質悪化が問題とならないこと

③配水過程における外部からの再汚染のおそれがないこと

④給水栓水の定期的な水質検査などが適切に行われていること

上記①に関しては、病原微生物の再活化（例えば、光回復、暗回復など）が実質的に問題とならないことも重要である。また、④に関しては、水系感染症の発生状況に関するサーベイランスなども視野に入れておくべきである。

さらに、「残留塩素なし」を実現するためには、上記に加えて以下のようなことも条件とするべきであろう。

①給水対象として貯水槽水道を含まないこと

②利用点までの到達時間が一定時間以下であること

③水温が一定レベル以下であること

このほか、水源、規模、運転管理などの面での条件付けが必要となるかも知れない。

以上のようにして考えると、「残留塩素なし」を支障なく実現することは容易ではなく、現実にこれらの条件を満たすケースは非常に限られたものとなることが予想される。しかし、少なくとも初めに上げた4つの条件は、残留塩素の有無にかかわらず、一般に安全で快適な水道水を供給する上で基本的に重要な条件である。

4. 今後の検討課題

以上の議論を踏まえて、「残留塩素なし」の実現を念頭に、水道の給配水過程におけるより望ましい水質管理について考えた場合、今後次のようなことに重点を置いて研究を進めることが重要であると考えられる。

①消毒処理における必要条件（例えば、CT値など）の明確化

②消毒処理における処理効果判定指標の再検討

③消毒技術ごとの再活化の可能性に関する検討

④給配水過程における水道水の再汚染の可能性とその健康リスクに及ぼす影響の定量的評価

⑤給配水過程における生物再増殖防止技術の開発

上記のうち①、②などに関しては、ウイルスも考慮に入れる必要がある。また、④に関しては、例えば、誤接合、火災や事故による水圧低下など、発生頻度は極めて低いが一旦発生するとその影響が甚大な不測の事態も、視野に入れておくことが必要である。

5. おわりに

水道の水質管理においては、浄水処理による汚染物質の除去と併せて給配水過程における水質管理が重要であるが、後者はこれまでわが国ではどちらかと言えば軽視されてきた。今後は、より総合的な面から水質管理の向上に取り組むことが必要である。

なお、昨今、消毒による微生物学的安全性確保の意義と必要性を無視した、塩素消毒や残留塩素保持に対する安易な反対意見も提起されているが、このような科学的な裏付けの十分でない軽率な議論は慎むべきであろう。

参考文献

- 1) 保坂三継(1998) 細菌による水道水のリスクの実態、土屋悦輝・中室克彦・酒井康行 編集：水のリスクアセスメント実務指針、サイエンスフォーラム、89-98.
- 2) 山田俊朗、秋葉道宏(2007) 最近10年間の水を介した健康被害事例、保健医療科学、56(1)、16-23.
- 3) 国包章一、島崎大(2006) 残留塩素に依存しない水道の水質管理手法に関する文献調査、①諸外国の水道における消毒及び給配水水質管理の現状、厚生労働科学研究費補助金（健康科学総合研究事業）「残留塩素に依存しない水道の水質管理手法に関する研究」分担研究報告書、平成18年3月.

水道原水のクリプトスポリジウム等による汚染とその健康リスク

西村和之

(県立広島大学環境科学科)

1. はじめに

水道水に対して感染性微生物による健康影響リスクを与える主要因は、家畜糞尿や生活排水の混入である。ここで取り上げるクリプトスポリジウムは、人獣共通感染症の原因微生物であり、細菌やウイルスと比較して耐塩素性が大きく、過去において水道水を起因とする多くの感染事故が発生すると同時に、その検出によりしばしば水道給水の停止を引き起こしている^{1,2)}。

従って、残留塩素無し水道を実現するためには、主として感染性微生物による健康リスクの所在を明らかにして、残留塩素の代わりに水道が持たなければならない要件を提示する必要がある。

本報告では、クリプトスポリジウムを例に取り、既往の研究、実態調査や室内実験等で得られた成果を元に水道に負荷されるクリプトスポリジウム・オーシスト量の推定を行い、そこから導き出される塩素なし水道の要件について考察を試みた。

2. 水道水源水中のクリプトスポリジウム・オーシスト量の推定

様々な調査により、各地の水道原水中にクリプトスポリジウム・オーシストが存在することは明らかとされてきた³⁾が、検出感度の点での定量性や存在と感染性が必ずしも一致しない点など、調査結果が何を示すのか？について議論がなされている。

近年、分子生物学的な手法の普及により、従来法よりも検出感度の高い手法の開発や遺伝子型の同定等による結果の意味づけの強化が図れるようになってきており、少ない労力でリスク管理に必要な多くの情報が得られるようになってきた⁴⁾。

本研究では、クリプトスポリジウム・オーシストの RNA を抽出して PCR を行い、酪農地帯を流れる比較的清浄な水道水源河川である江の川水系の西城川水中に存在するオーシスト量の把握を行った。また、DNA の *hsp70* 領域に対するホモロジー検索により遺伝子型の同定を合わせて行った。

その結果、約 270 頭の肉牛が飼育されている流域面積約 42km² の比和川流域では、濃度として 0~5 個 *C.p.*/100L、流出量として最大 48 個 *C.p.*/s、同じく約 300 頭の牛が飼育されている 131km² の西城川流域では、濃度として 0~1 個 *C.p.*/100L、流出量として最大 50 個 *C.p.*/s のヒト型のオーシストが存在していると算定された⁵⁾。

3. 水道に求められる要件

水道水の安全性を確保するために、様々な水質項目について水質基準が定められている。その選定根拠は、水質項目と健康影響との係わり方で異なっているが、感染性微生物に関しては、リスクアセスメントに基づき定められている。

クリプトスポリジウムの場合は、一般に Haas らの式を用いて感染確率を求め、そのリスク確率から管理水質の目標を定めることが適当とされている⁶⁾。

上に上げた調査結果を元に Haas らの式を用いて水道に求められる要件を検討すると、以下になる。

調査結果から、原水中のオーシスト量を最大 5 個 *C.p.*/100L とし、この水を直接 2 L 一人一日飲用して 1 年間過ごしたとする。この場合の感染確率は、

$$P(5 \text{ 個}/100\text{L} \times 2\text{L})_{365 \text{ 日}} = 1 - \exp(- (5 \text{ 個}/100\text{L} \times 2\text{L}) / 238.6)^{365} = 0.14216$$
となり、14.2%の確立で感染することになる。

通常、水道水が確保すべき感染性微生物に対する感染確率は、同様の飲用条件で 1×10^{-4} とされていることから、この要件を満たすためには、調査対象水を原水とする水道では、最大限の安全を見積もる場合としてクリプトスポリジウムに対して 10^{-3} 以上の除去能を有するように処理プロセスを構築する必要があると示唆される。

4. クリプトスポリジウム・オーシストの流達率の推定

3. で示した試算は、定期調査の実施等により個々の水道事業体のレベルでは実態に沿った必要要件の推定が可能であることを示している。一方、より一般的な事例において水道が持つべき要件を考察する場合において、主な排出源と推定される家畜一頭当たりの排出原単位とその流達率が得られるならば、必要とする労力が軽減される。

クリプトスポリジウムは、ヒト型の遺伝子を持つ株がヒトとウシに感染を引き起こすとされていることから、既存の文献⁷⁾などよりウシの感染率と感染牛の糞尿中オーシスト数を抽出し、ウシ一頭当たりの排出原単位を求めた結果(述べ頭数 5 0 0 0 頭に対する計算結果)は、 1.9×10^9 個 *C.p.*/頭であった。

一方、2. で示した調査と同様の手法で 6.75 時間掛けて 100L の採水を行い定量した結果、1 個 *C.p.*/100L のオーシストが検出されたことから、採水時間中に取水点を通じた約 122kt の河川水には、最大 1.2×10^6 個のオーシストが存在したと推算された。このことから、約 300 頭の牛が飼育されている 131km² の西城川流域では、 $7.5 \times 10^{11} \sim 2.0 \times 10^{12}$ 個 *C.p.*流域に負荷されたクリプトスポリジウム・オーシストが $6.3 \times 10^{-5} \sim 1.7 \times 10^{-5}$ 程度希釈されて取水点まで到達したものと推計される。

また、(独) 国立環境研究所が行った家畜糞尿の再生利用施設における調査結果を元にして、受け入れ貯留層容積、搬入述べ頭数から牛 1 頭当たりのクリプトスポリジウム・オーシスト数を計算すると、ウシ一頭当たりの排出原単位は約 7.1×10^8 個 *C.p.*/頭(述べ頭数 5 0 0 0 頭)と成ったことから、2～4 日程度の家畜糞尿の貯留により、 10^{-1} 程度の削減効果があると推定された。

5. まとめ

感染性微生物に関する健康影響リスクから見た「塩素なし水道のあり方」は、クリプトスポリジウムに対して 10^{-3} 以上の除去能を有する処理プロセスを構築する必要であり、家畜糞尿の再生利用施設の整備等により、その要件は 10^{-1} 程度緩和されうると示唆された。

参考文献

- 1) 黒木俊郎ら：神奈川県で集団発生した水系感染 *Cryptosporidium* 症、感染症誌、70(2)、132-140、1996
- 2) 山本徳栄ら：水道水によるクリプトスポリジウムの集団感染例－国内および海外の事例－、化学療法の領域、14(2)、255-263、1998
- 3) クリプトスポリジウム等の水道水源における動態に関する研究報告書、厚生科学研究、1997
- 4) 原弘之ら：分子生物学的手法を用いたコンポストからのクリプトスポリジウムの活性オーシストの検出、第 37 回日本水環境学会第 37 回講演集、427、2003
- 5) 西村和之ら：流出クリプトスポリジウム・オーシスト量算出のための予備的調査、第 58 回全国水道研究発表会、606-607、2007
- 6) クリプトスポリジウム－解説と試験方法－、日本水道協会
- 7) 更科孝夫ら：健康牛のクリプトスポリジウム汚染の実態調査、用水と廃水、Vol.44(4)、291-294、2004

微生物の不活化効果および再活化特性から見た消毒技術の評価

大瀧雅寛

(お茶の水女子大学大学院人間文化創成科学研究科)

1 はじめに

水道において塩素消毒が使用されている理由の一つとして、これまでの使用実績に裏打ちされた不活化能力の信頼性がある。もし塩素に代えて別の消毒技術を用いることを想定する場合、代替技術が塩素と同等もしくはそれ以上の不活化能力が担保できるのかを把握しておく必要がある。ここでいう不活化能力の担保とは微生物試験における単なるコロニー形成数の減少度合いの大小を比較するというのではなく、対象微生物の損傷程度として同等の能力を担保できるかということである。本研究では、複数の消毒技術間において、様々な損傷程度の計測法を行い、比較することによって、塩素消毒の代替消毒として必要な条件とは何か提案していくことを試みた。

2 消毒効果の評価方法について

消毒プロセスもしくは環境中の多様なストレスによる微生物への影響については、これまで様々な報告がされているが、消毒プロセスの評価において VBNC (Viable but Not Culturable¹⁾) 様の微生物については、考慮する必要があると考えている。例えば、ある消毒方法の評価を病原細菌 (もしくは代替細菌として大腸菌) の死滅速度で判断することが良く行われる。通常、細菌の測定は培地培養法で行うが、ある病原細菌が消毒プロセスの影響を受けた結果、代謝機能を維持し生育活性を持ちながらも培地培養が出来ないような状態となっていれば、病原性という視点から見れば危険な状態であるにも関わらず、培地による測定法では計測されないために、不活化された (消毒された) と判断されてしまうことになる。つまり誤陰性の可能性がある²⁾。このような細菌は状況によって 10~90% を占めるとも言われている。また病原微生物は、大腸菌のような指標細菌に比べて致命的損傷を受けにくいとの報告もある³⁾。また消毒プロセスによって、微生物への作用機序は異なると考えられるのであるから、この誤陰性の可能性については、プロセス毎に (もしくは同プロセスであっても条件毎に) 評価しておかねばなるまい。

以上の事実を鑑みて、塩素消毒の代替プロセスを評価するに当たっては、そもそも塩素消毒プロセスがどの程度の損傷を与える方法であるのか、代替プロセスはそれに比べてどのような特徴を持っているのか、という視点に立脚した消毒方法の評価方法が求められるであろう。加えて各プロセスの作用機序と誤陰性の可能性を関連させて把握しておかねば、他のプロセスが塩素の消毒力を担保するか否かを評価することにはならないであろう。

3 消毒プロセスとその作用機序 (既存の知見から)

3.1 塩素消毒

多くの場合、遊離塩素は細胞膜に作用すると報告されている⁴⁾⁵⁾。細胞呼吸、物質輸送作用に損傷を与える作用があり、DNA にも作用すると報告されている⁶⁾。これらの報告は大腸菌、カンジダ菌、結核菌を用いた実験により確かめられている。

一般に塩素消毒で用いられる次亜塩素酸塩では、次亜塩素酸イオン (OCl⁻) よりも次亜塩素酸 (HOCl) の方が殺菌力が強いが、これは帯電していない次亜塩素酸の細胞内への

浸透力が大きいためと考えられている。

3.2 オゾン消毒

オゾンによる消毒は、その強い酸化力に基づくものであるが、塩素と同様、細胞膜への作用が考えられる⁴⁶⁾。特に細胞膜の糖タンパク質、糖脂質への作用が考えられている⁷⁾。また DNA への作用としてプリン、ピリミジンのどちらにも作用することが報告されている⁶⁷⁾。

オゾンは pH によってその自己分解反応速度が異なる。低 pH においてはオゾンの残存性が高いが、高 pH においてはラジカルなどの活性種へと変化し、オゾン分子の残存性は低くなる。オゾン分子とラジカルなどの活性種の作用機構は異なると考えられるが、消毒効果という点では、損傷の度合いを見るのか、損傷を与える速度を見るのかによって、その評価結果が大きく異なってくるものと考えられる。

3.3 二酸化塩素

二酸化塩素の消毒効果は、オゾン、塩素と同様にその強い酸化力に起因するが、その作用機序に関する報告は、オゾン、塩素に比べて相対的に少ない。作用箇所は明らかでないが、タンパクの合成能を阻害するという報告⁸⁾、タンパク合成作用には濃度依存性があるが、脱水素酵素阻害は完全に起こるとい報告⁹⁾などが見られる。また外膜の透過性に作用するという報告¹⁰⁾もある。

3.4 紫外線 (UV)

紫外線の消毒効果は、これまで紹介した方法と異なり、その作用機序はおおよそ明らかであり、核酸のピリミジン基が 260nm 付近の紫外光を吸収することにより、不可逆的な化学結合を誘発してピリミジン二量体を形成することによる⁴⁾¹¹⁾¹²⁾。

4 細菌への損傷測定法に関する知見

細菌の損傷を測定する方法には大きく分けて2つの方法がある。一つは培地培養の方法に工夫を加えて観察する方法であり、もう一つは顕微鏡を用いて直接観察を行う方法である。前者の方法においては、まず回復可能な細菌を計測することによって損傷度合いを探ろうというものである。損傷細菌を回復させて回復量を測定する方法として、特定培地を用いて行う方法が提案されている¹³⁾。その報告では、m-T7 培地が良いとされている。また、塩素消毒後の水などにおいて colisure™ 培地を使うと検出量が上がるという報告がある¹⁴⁾。後者の顕微鏡などによる観察によって細胞損傷を観察する方法としては、一般によく使われる方法に DAPI/PI 法がある。これは染色剤の細胞膜透過性の有無によって細胞膜の活性を調べる方法である。その他に、CTC (5-cyano-2,3-ditolyl tetrazolium を用いた呼吸活性を測定する染色法) や 6CFDA (6-carboxy fluorescein diacetate を用いたエステラーゼ活性を測定する染色法) 等を使った蛍光観察¹⁵⁾¹⁶⁾、SYBR-II を用いた方法が報告¹⁷⁾¹⁸⁾されている。その他の方法としては、電子顕微鏡を用いた直接形態観察を行った報告¹⁹⁾²⁰⁾がある。

5 本研究における実験方法

本研究においては、消毒プロセスによる損傷レベルを推定する方法として、処理後の細菌を多種の培地を用いて計数を行い、その結果を比較する方法を試みた。この方法を用いた理由としては、この方法が比較的容易に実行出来るということと、現在消毒プロセスの評価方法に用いられている培地培養方法の検証という意味がある。

本研究では、大腸菌（NBRC 3301）を主な対象細菌とし、その測定方法として、3通りの培地による培養法を併せて用いた。ここで用いた各培養法の特徴を表1にまとめた。また消毒方法として、塩素消毒、紫外線消毒、オゾン消毒方法の3プロセスを行い、その結果を比較した。デソキシコレート培地（以下 Deso 培地）の選択性は、主にデソキシコール酸塩によるグラム陽性菌の生育抑制効果と、乳糖代謝による赤色発色効果によるものである。予備実験としてデソキシコール酸塩を除いた培地によって、諸条件で測定したところその結果は TSA 培地と、ほぼ同じ結果を示すことがわかった。従って Deso 培地で測定できず TSA 培地で測定できる大腸菌は、（乳糖代謝能力を含む）代謝能力は残っているが、デソキシコール酸塩による生育抑制効果（グラム陽性菌様細菌への変質）を受けてしまうような大腸菌となったと見なすことができる。

表1 各測定方法の名称とその特徴

名称	略称	特徴
Tryptic Soy Agar 培地	TSA	代謝能力をもつ大腸菌数の測定となる
コンパクトドライ™ EC	C-EC	β-グルクロダーゼ生成能を持つ大腸菌数の測定となる。
デソキシコレート培地 (デソキシコール酸 Na 抜き)	No-DESO	乳糖代謝能力を持つ大腸菌数の測定となる
デソキシコレート培地	DESO	乳糖代謝能力を持ち、デソキシコール酸 Na 耐性のある大腸菌数の測定となる

注) No-DESOはTSAとほぼ同じ結果となることが前実験でわかったため、実験結果では示していない。

6 実験結果および考察

6.1 塩素消毒及び紫外線照射処理

大腸菌（*E.coli* (NBRC 3301)）の不活化を DESO と TSA の2つの培地で測定し比較した。結果を図1に示す。塩素消毒の場合、DESO による不活化率が TSA の不活化率を上回っている領域があり、これは CT 値が $0.05\text{mg} \cdot \text{min./L}$ 以下の時であった。またほぼ同じ不活化率となっている領域は CT 値が $0.05\text{mg} \cdot \text{min./L}$ 以上であった。本実験では CT 値は投入塩素濃度で調整したため、投入塩素濃度が低い場合では、両培地の差が大きくなったことが示されている。これは表1の特徴を併せて考えると、代謝能力は持つものの、デソキシコール酸耐性が無くなった菌の存在割合が高いことが推定される。デソキシコール酸はグラム陽性菌に作用し、グラム陰性菌には作用しない物質であるが、この差は細胞壁の違いに起因している。即ち塩素投入濃度が低い状態においては、代謝機能の失活には至らないものの、細胞壁の変質が生じてグラム陽性菌様の状態となっている（脂質二重膜の変質と考えられる）細菌の割合が高くなると考えられる。この様な細菌は、DESO 培地に関しては VBNC 状態であり、消毒効果に関しては誤陰性となる可能性が高い。一方、塩素投入濃度が高い場合は、両者の差が小さくなっており、DESO 培地についての VBNC 状態である割合が低く、誤陰性となる可能性は低いと考えられる。

紫外線消毒に関しては、いずれの UV 線量照射に関しても、一定の割合で DESO 培地と TSA 培地の差が生じていた。DESO 培地に関する VBNC 状態が、どの条件でも一定割合で生じており、誤陰性となる割合が高いことになる。ただし、紫外線消毒の作用機序は、核酸の変質によるものであり、細胞壁への影響は考えられない。従って今回の実験結果となった理由に関しては、さらに検討考察を加えていく必要がある。

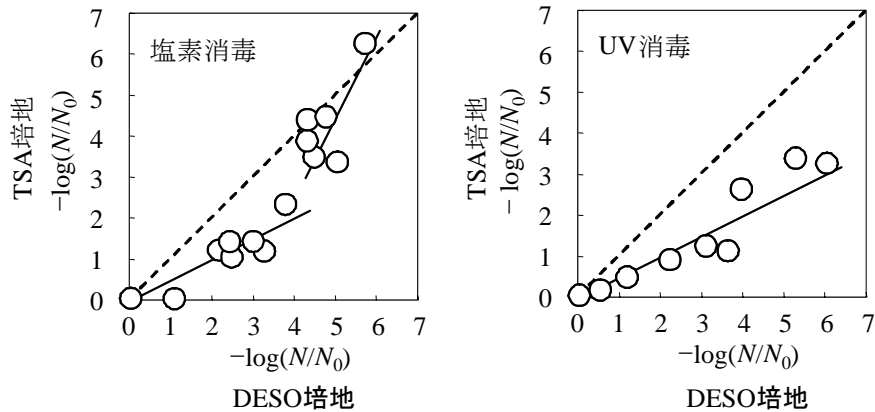


図1 DESO および TSA 培地によって測定される不活化率の相関

6.2 オゾン消毒

オゾンは高い pH 領域で、水溶液中の水酸化物イオンと反応し自己分解が促進され、ラジカルなどの活性種が生じる。従って pH によってその反応機構が大きく異なると考えられる。まずオゾンを 0.11 mg/L 程度に溶解させた水溶液において、各 pH 条件における大腸菌の不活化実験の結果から、一次反応速度定数を求めて比較した結果を図 2 に示す。

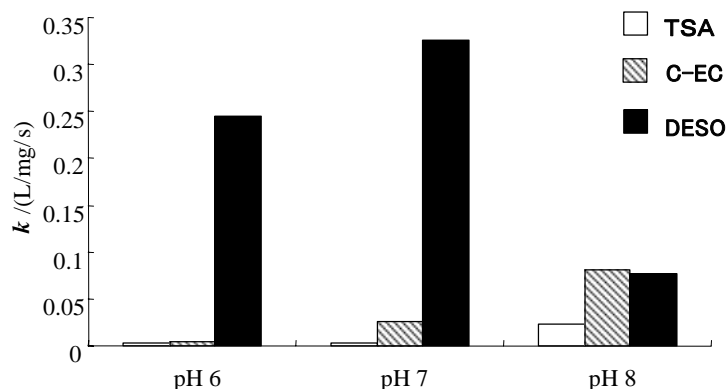


図2 各 pH のオゾン水による大腸菌の不活化速度定数（測定法 3 種）

pH6, pH7 においては、塩素消毒における低投入濃度の場合と同様に、DESO 測定法に関する VBNC 状態の割合が非常に高いと考えられる。一方アルカリ側の pH8 では DESO 測定法での不活化率が低くなるものの、C-EC 測定法および TSA 測定法の不活化率が上昇しており、DESO との差が小さくなっている。即ち、残留オゾンでは主にオゾンの細胞壁の偏性効果が高いが、代謝能力を失活するほどの能力は持たず VBNC 様となる細菌の割合が高いと考えられ、消毒効果の評価において誤陰性を生じる可能性が高いことになる。一方オゾンの分解によって生じたラジカルなどの活性種においては、VBNC 様となる細菌の割合が低く、誤陰性を生じる可能性も低くなることが考えられる。

図 3 はオゾン曝気を行った場合の同様の実験結果である。オゾン溶解水の場合に比べて、3 種の測定法による差が少なくなっている。

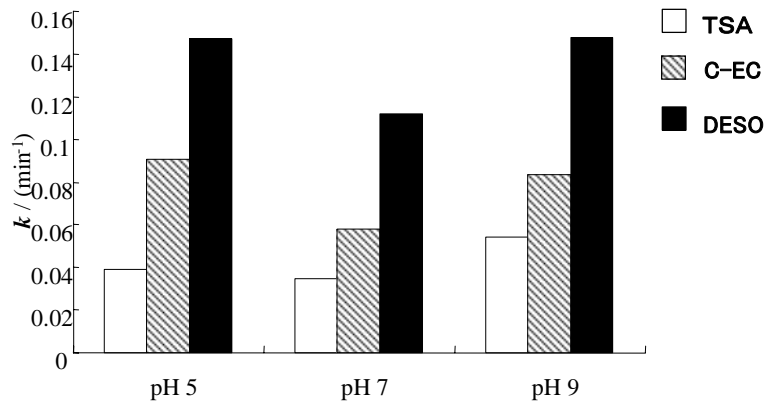


図3 各 pH におけるオゾン曝気による大腸菌の不活化速度定数

オゾン曝気による消毒では、気相中のオゾンによる直接不活化が消毒メカニズムにおいて大きな役割を果たしていると考えられる。すなわち pH の影響を受ける水中溶存オゾンによる消毒の割合が小さいため、このような結果になったのではないかと考える。

以上の3つの消毒プロセスにおける各条件における実験結果から考察したものを表2にまとめて記した。

表2 各消毒法による大腸菌への損傷メカニズム

消毒プロセス	反応主体	推定される主な損傷の対象	備考
塩素 (高濃度)	次亜塩素酸イオン	代謝能の失活	
(低濃度)		細胞壁の変性	DESO による誤陰性
UV	254nm 光	核酸の変性	DESO による誤陰性
オゾン水	オゾン	細胞壁の変性	DESO による誤陰性
	オゾン, ラジカル	代謝能失活	
オゾン曝気 (酸性～アルカリ性)	気相中オゾン	細胞壁の変性	DESO による誤陰性

7 まとめ

塩素の代替処理法としては、UV の場合、その作用機序が明確であるが、DESO による誤陰性を生じており、また核酸の変性を修復する機能（光回復、暗回復）も知られているので、その点考慮する必要がある。オゾンの場合、塩素に比べると作用機序が複雑であり pH によって大きく損傷レベルが異なると考えられる。

これらの研究を通して、副次的に明らかになったことは塩素、UV、オゾンのいずれの消毒プロセスにおいても、その消毒効果を評価する際の方法に関しては、今一度吟味していく必要があるのではないかとということである。本文の中で述べているとおり、デスオキシコレート酸塩培地での測定法では、いわゆる VBNC 様となっている大腸菌の割合が高く、消毒効果の評価においては誤陰性としている可能性が高い場合が多いことがわかった。既存の報告にもあるとおり、病原微生物は大腸菌などの指標細菌に比べて損傷を受けにくく³⁾、VBNC 様の状態となり易いと推察される。従って各消毒方法の評価においては出来る限り致死的な損傷を受けた菌の推移を測定出来る方法に統一していく必要があると思われる。

参考文献

- 1) Rita R. Colwell 「培養できない微生物たち」, 学会出版センター, 2004
- 2) APHA, 1998, *Standard methods 20th ed.*, American Public Health Association, Washington DC.
- 3) LeChevallier et al, 1985, Changes in virulence of waterborne enteropathogens with chlorine injury. *Appl. Environ. Microbiol.*, 50, p.412
- 4) 金子光美 「水質衛生学」 技報堂出版,
- 5) Haas C.N. and R.S. Engelbrecht. 1980, Physiological alterations of vegetative microorganisms resulting from aqueous chlorination, *J. Water Pollution Control Fed.*, 52(7), p.1976
- 6) Giese A.C. and E. Christensen, 1954, Effects of ozone on organisms, *Physiol. Zool.*, 27, p.101
- 7) Scott D.B.M. and E.C. Lesher, 1963, Effect of ozone on survival and permeability of *Escherichia coli*, *J. Bacteriol.*, 85, p.567
- 8) Bernarde M.A., W.B. Snow, V.P. Olivieri and B.Davidson, 1967, Kinetics and mechanism of bacterial disinfection by chlorine dioxide, *J. Appl. Microbiol.*, 15(2), p.257
- 9) Roller S.D., V.P. Olivieri and K. Kawata, 1980, Mode of bacterial inactivation by chlorine dioxide, *Wat. Res.*, 14(6), p.635
- 10) Aieta, E.M. and B. James, 1986, A Review of Chlorine Dioxide in Drinking Water Treatment, *J. AWWA*, 78(6), p.62
- 11) Wolfe, R.L., 1990, Ultraviolet Disinfection of Potable water, *Environ. Sci. Tech.*, 24(6), p.768.
- 12) WEF, 1996, *Wasterwater disinfection: manual of practice*, Alexandria, VA, USA
- 13) LeChevallier et al, 1983, New medium for the improved recovery of coliform bacteria from drinking water. *Appl. Environ. Microbiol.*, 45, p.484
- 14) McFeters G.A. et al., 1995, Comparative performance of colisure™ and accepted methods in the detection of chlorine-injured total coliforms and *E. coli*, *Wat. Sci.and Tech.*,31, p.259
- 15) Zweifel U.L., 1995, Total counts of marine bacteria include a large fraction of non-nucleoid-containing bacteria(ghost), *Appl.Environ.Microbiol.*, 61, p.2180
- 16) Luna G.M., 2002, Large fraction of dead and inactive bacteria in coastal marine sediments: comparison of protocols for determination and ecological significance, *Appl. Environ.Microbiol.*, 68, p.3509
- 17) Phe M.H. et al., 2005, Nucleic acid fluorochromes and flow cytometry prove useful in assessing the effect of chlorination on drinking water bacteria, *Wat. Res.*, 39, p.3618,
- 18) Phe M.H. et al., 2004, Chlorination effect on the fluorescence of nucleic acid staining dyes, *Wat. Res.*, 38, p.3729
- 19) Diao H.F. et al., 2004, Electron microscopic investigation of the bactericidal action of electrochemical disinfection in comparison with chlorination, ozonation and Fenton reaction, *Process Biochemistry*, 39, p.1421
- 20) Kühn K.P. et al., 2003, Disinfection of surfaces by photocatalytic oxidation with titanium dioxide and UVA light, *Chemosphere*, 53, p.71

消毒副生成物による健康リスクの総括的評価

伊藤禎彦

(京都大学大学院工学研究科)

1 はじめに

消毒とは微生物リスクの低減と副生成物による新たなリスクの生成というジレンマをかかえる技術である。塩素を使用しない、あるいは塩素使用を最小化する水道システムを指向する場合、両者のリスクがどう変化するかを把握し、これを管理する必要がある。本稿では消毒副生成物によるリスク評価について論じる。

塩素消毒では数百種類の副生成物が生成することが知られているが、現行の水質基準ではごく一部の物質がとりあげられているに過ぎない。本稿ではまず、これら個別の副生成物の塩素処理水の毒性に対する寄与度を評価し、その寄与が極めて小さいことを示す。ついで、個別物質の規制では限界があるため、有機ハロゲン化合物の総量を表す TOX (Total Organic Halides) を用いて毒性を総括的に把握し、TOX 濃度として許容レベルを提示することを試みる。また、以上の考察は *in vitro* バイオアッセイに基づいており毒性を推定できるにとどまることから、米国 EPA で進められつつあるプロジェクトを紹介する。

2 規制の現状

わが国の水道水質基準の中で消毒副生成物は、トリハロメタンやハロ酢酸を含む計 11 項目がとりあげられている（塩化シアンを含む）。2004 年に改正され施行された水質基準では、ハロ酢酸や臭素酸イオンなどが追加され、消毒副生成物に関する項目はおよそ倍増した。また、水質管理目標設定項目には消毒剤および消毒副生成物として、二酸化塩素、亜塩素酸イオンや抱水クロラールなど 5 項目がある。さらに要検討項目の中には、MX や基準項目に含まれないハロ酢酸など計 12 項目がある。なお、これら消毒副生成物については、平成 20 年より一部変更される予定である。また、要検討項目としてリストアップされているものは、確定的な動物実験が行われていないために基準値が設定できないというものが多くあり、今後毒性評価が進めば基準項目とするかどうかの判断が行われることになる。このように、消毒副生成物に関する基準項目は今後も増えていくものと考えられる。

一方、トリハロメタン問題が提起されて以来、トリハロメタン以外の副生成物を検出し同定する試みが世界中で行われてきた。それは、塩素で生成する有機ハロゲン化合物 (TOX) のうち、トリハロメタンが占める割合は高々 20~30% にすぎないからである。

この結果、現在までに約 500 種類にも及ぶ塩素処理副生成物が同定されてきた。これには、1970 年代から今日に至るまでの分析機器の高度化に依拠するところも大きい。しかし、それにもかかわらず、我々が知り得た副生成物は生成する TOX の 50% にも達していないのである。

まして、動物実験にもとづいて毒性評価が行われ、基準値や目標値が設定できる物質は、上記のように 20 にも満たない。消毒副生成物の問題に対して、30 年以上が経過した今でも、我々の科学はそのほんの一部しか解き明かしてはおらず、多くの問題を今後積み残しているといわざるをえないのである。

3 塩素処理水の毒性に対する個別副生成物の寄与度

塩素消毒で生成する副生成物のほんの一部が規制対象になっているに過ぎないことを述

べたが、これらの個別の副生成物は塩素処理水の毒性をどの程度表しているだろうか。ここでは、個別の副生成物の寄与率を評価してみた。

毒性の測定のために、発がん過程におけるイニシエーション活性、およびプロモーション活性の指標となるバイオアッセイを実施した。イニシエーション活性の指標としてはチャイニーズハムスター肺細胞（CHL/IU）を用いる染色体異常試験を行い、プロモーション活性の指標としてはマウス繊維芽細胞（BALB / 3T3A31-1-1）を用いる形質転換試験を行った。

形質転換試験法の試験方法は、はじめにイニシエーターとして既知の発がん性物質 3-メチルコラントレン（3-MC）を作用させ、DNA に損傷を与える。その後試料を加え、形成されるフォーカスを観察する。このように 2 段階で化学物質を作用させることから二段階形質転換試験ともよばれており、発がん過程のプロモーション段階の有害性を検出する指標となる。

一方、3-MC を作用させず、はじめから試料を添加し続ける方法があり、これは非二段階形質転換試験とよばれている。この場合、形質転換細胞が誘発されるためには、試料が遺伝子障害性も有している必要があることから、試料のイニシエーション段階を含めた有害性を測定できる方法といえる。

表 1 は、塩素処理水のバイオアッセイを行うとともに、個別の副生成物の生成量の測定とバイオアッセイを行い、寄与率を推定したものである^{1,2,3)}。塩素処理水は、試薬フミン酸溶液、または琵琶湖南湖表流水に対して塩素を注入して作製している。表 1 では、トリハロメタンのうちクロロホルム、ハロ酢酸類のうちジクロロ酢酸、トリクロロ酢酸、および MX、臭素酸イオンについて示している。

表 1 塩素処理水の染色体異常誘発性、形質転換誘発性に対する個別副生成物の寄与率の評価例

物質名	染色体異常誘発性	形質転換誘発性 (二段階試験)	実験条件等	文献
クロロホルム	0.5%	0.9%	試薬フミン酸溶液に対し、Cl ₂ /TOC=1 付近で塩素処理を行った結果から推定	1
ジクロロ酢酸	0.8%	0.25%		
トリクロロ酢酸	1.6%	0.25%		
MX	無視できるほど小さい	無視できるほど小さい	琵琶湖水を塩素処理しバイオアッセイを行うとともに MX 生成量を測定した結果から推定	2
臭素酸イオン	無視できるほど小さい	-	臭化物イオンを含む試薬フミン酸溶液に対し、オゾンおよび塩素処理を行った結果から推定	3

この結果、クロロホルム、ジクロロ酢酸、トリクロロ酢酸の 3 物質の合計でも、染色体異常誘発性に対する寄与率は 2.9%、形質転換誘発性（二段階試験）に対する寄与率は 1.4% である。MX や臭素酸イオンについては、試験条件がそれぞれ異なるものの、これらの数値よりもはるかに小さく（0.1%未満）その寄与についてはほとんど無視できるという結果であった。

なお、塩素処理水中の強変異原性物質として知られる MX についても、培養細胞を用いた試験系では、このように小さな寄与率と評価される例は他にも報告されている。

以上は塩素処理水についての結果であるが、オゾン処理水について C₀~C₃ の直鎖低分子アルデヒド（ホルムアルデヒド、アセトアルデヒド、プロピオンアルデヒド、ブチルアル

デヒド)を測定して、処理水の染色体異常誘発性に対する寄与度を検討したが、これらの物質がほとんど寄与していないことがわかっている。

この例のように、バイオアッセイ結果に対して個別の消毒副生成物物質の寄与が非常に小さいという結果は、他の研究でも示されている。例えば、Meierら⁴⁾は、10種類の塩素処理副生成物についてその寄与率を試算したところ、Ames試験のTA100株では10種類合計で7-8%、TA98株では2%未満にすぎなかったとしている。

このように、個別物質の有害性の寄与率は塩素処理水全体に対して高く見積もっても数%であり、現在水質基準として規制されている物質以外の物質の毒性が大半を占めている。個別の物質ごとに基準値を設定して水質管理を行う現在の体制では不十分といわざるをえない。消毒副生成物全体としての毒性を把握し、それを制御するための総括指標の導入を本来は検討すべきであると指摘しうる。

4 総括的評価の試み

水道水中の有機ハロゲン化合物の総量を表す指標としてTOXが用いられている。つぎに、このTOXの総括的毒性評価指標としての意義について考えてみよう。

水中天然有機物のモデル物質として、International Humic Substance Society(IHSS)より購入したSuwannee River Natural Organic Matters (SRNOM)を用いた。調製後のTOCは1000 mgC/Lで、これに初期塩素濃度1500 mgCl₂/Lとなるよう次亜塩素酸ナトリウムを加えた。塩素処理後のTOXは225 mgCl/Lであった。これを希釈しつつ染色体異常試験および形質転換試験に供した。

表2 SRNOM 塩素処理水の毒性の相対評価

	染色体異常誘発性	形質転換誘発性	
		二段階試験	非二段階試験
	D20 値 (mgCl/L)	誘発率 0.1 超過濃度 (mgCl/L)	誘発率 0.1 超過濃度 (mgCl/L)
クロロ酢酸	12	0.21	6.0
ジクロロ酢酸	25	8.3	36
トリクロロ酢酸	110	79	550
SRNOM 塩素処理水	33	0.83	0.71

表2は、SRNOM 塩素処理水とクロロ酢酸類のアッセイ結果を比較したものである。ここでD20値とは、染色体異常試験において20%の細胞に何らかの異常染色体がみられるときの投与濃度を表す。値が小さいほど染色体異常誘発性が強いことを意味する。形質転換誘発率とは、形質転換試験において観察したコロニーのうち形質転換を起こしたと判定されたコロニーの率である。誘発率0.1を超過する濃度で比較しており、値が小さいほど形質転換誘発性が強いことを意味する。

この結果、SRNOM 塩素処理水の染色体異常誘発性はジクロロ酢酸と同程度、形質転換誘発性では二段階試験でクロロ酢酸とジクロロ酢酸の間、非二段階試験ではクロロ酢酸より強いという結果となった。総じて、SRNOM 塩素処理水の毒性は、トリクロロ酢酸よりも強く、ジクロロ酢酸またはクロロ酢酸と同程度といえるようである。TOC中のClが全てジクロロ酢酸やクロロ酢酸中のClとみなすと、それが塩素処理水の毒性の強さを表すことになる、という意味である。

さて、発表者は別に、塩素処理水の有害性は、他の化学物質と比較したとき相対的にイニシエーション活性の方がプロモーション活性よりも強いとことを指摘している⁵⁾。そこで表2の中で染色体異常誘発性の結果を重視し、SRNOM 塩素処理水がジクロロ酢酸と同程

度の毒性を有すると仮定して考察を進めよう。

ジクロロ酢酸の基準値は、生涯にわたる発がんリスク増分 10^{-5} を根拠として 0.04 mg/L に設定されている。これを Cl 重量に変換すると 0.022 mgCl/L (=22.0 μ gCl/L) となる。水道水の一般的な TOX の生成量は 80~100 μ gCl/L であり、その毒性がいかに大きいかかわかる。水質基準の設定リスクレベル 10^{-5} に照らして考えると、TOX は現状の 1/4 から 1/5 しか許容できないということになる。

もちろん以上は、*in vitro* のバイオアッセイ結果から考察したものであり、動物個体に対する毒性に関して結論が得られるわけではない。TOX すなわち塩素処理水そのものの *in vivo* 試験を行い、その毒性を評価する必要があると指摘できる。

このような観点からの動物実験がこれまで全く行われてこなかったわけではない。塩素代替消毒剤を含む処理水をマウスに皮下注射して腫瘍形成性をみた例、塩素処理フミン酸水をマウスに2年間飲水投与する実験を行った例、同じく塩素処理フミン酸水を90日間飲水投与する亜慢性毒性試験を行い、暫定 NOAEL 値を得た例などがある。

今後は、TOX の水質基準値を導出できるような毒性試験が必要であると考えられる。実際米国 EPA には、まさにこの目的のためのプロジェクトが存在する⁶⁾。計画のフローを図1に示す。そこでは、発がん性のみならず、生殖/発生毒性、免疫毒性、神経毒性などの毒性も評価対象となっている。

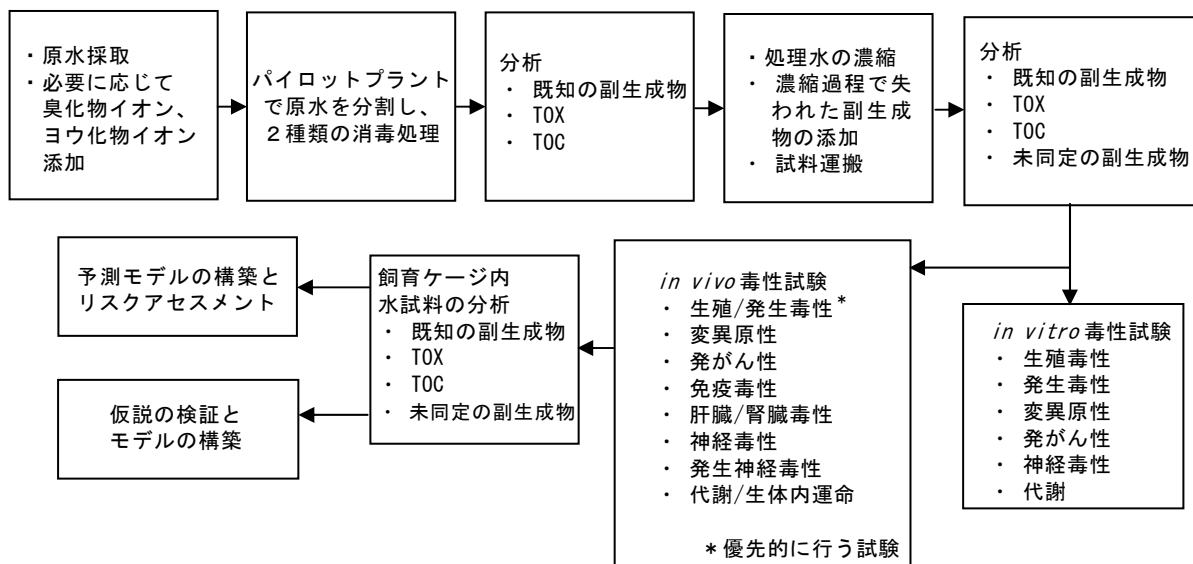


図1 米国 EPA における消毒処理水の毒性評価フロー

塩素処理副生成物による健康影響として、発がん性の次に注目されてきているものに生殖/発生毒性がある。周知のように、1990年代後半、内分泌攪乱化学物質（環境ホルモン物質）の問題に世界の大きな関心が集まった。これに伴い、消毒副生成物についてもそのような作用があるか否かが関心事となったのである。これまでの疫学調査の結果では、流産・死産の増加、低体重児の出生および胎児の生育不良、神経毒性、心臓、泌尿器、呼吸器などにおける先天異常や奇形の発生などが報告または示唆されている。発表者もエストロゲン様作用に関する検討を行ってきた⁷⁾。本プロジェクトでは、この生殖/発生毒性も重要な検討対象となっている。

図1のプロジェクトでは、RO膜による濃縮技術の整備、実験動物が飲水可能な濃縮水の調製、濃縮水の安定性などいくつかの課題が容易に想像できるが、異なる分野の専門家が

協力して試験計画を立案しプロジェクトが進められており注目に値する。

5 おわりに

消毒技術においてリスク管理を行うためには、微生物リスクと化学物質リスクという二つの異なる種類のリスクを取り扱わなければならない。この二つのリスクをどうバランスさせるかという問題は従来から議論されてきたが、リスクの質が異なるため容易ではなかった。この問題点を解決する指標として近年よく利用されるものに障害調整生存年数 (Disability-adjusted Life Year : DALYs) がある⁸⁾。DALYs は、特定の疾病要因による異なった健康影響をそれぞれ評価して統合する、または異なる要因の影響を比較するための共通の指標になりうるものである。クリプトスポリジウムのオゾンでの不活化、およびそのときの臭素酸イオンの生成とを想定し、この利害得失に対して、DALYs を指標として評価を試みた例がある⁹⁾。これによって化学物質と微生物という異なるリスク因子を比較するとともに、病原微生物に対する浄水処理上の制御目標レベルを設定することも可能にしている。

上述の米国EPAのプロジェクトで得られる毒性評価結果もこのDALYs指標を用いて論じ、消毒のあり方を議論できることが望ましい。我々はその道筋の途上にいる。

参考文献

- 1) 辻村泰聡、バイオアッセイを用いた水道水中未規制ハロ酢酸類および全有機ハロゲン化合物の毒性の推定に関する研究、京都大学大学院工学研究科修士論文、74p.、2005
- 2) 藪下登史子、哺乳動物培養細胞を用いたバイオアッセイからみた水道水質指標の活用に関する研究、京都大学大学院工学研究科修士論文、67p.、2001
- 3) 夏井智毅、染色体異常誘発性からみた浄水プロセスにおけるオゾン/塩素処理の評価に関する研究、京都大学大学院工学研究科修士論文、52p.、2003
- 4) Meier, J. R., Ringhand, H. P., Coleman, W. E., Munch, J. W., Streicher, R. P., Kaylor, W. H., Schenck, K. M., Identification of Mutagenic Compounds Formed during Chlorination of Humic Acid, *Mutation Research*, 157, 111-122, 1985
- 5) 伊藤禎彦、仲野敦士、荒木俊昭、塩素処理水の染色体異常誘発性・形質転換誘発性の変化過程と強変異原物質MXの指標性、*水環境学会誌*、Vol. 26, No. 8, pp. 499-505, 2003.
- 6) Simmons, J. E., Teuschler, L. K., Gennings, C., Speth, T. F., Richardson, S. D., Miltner, R. J., Narotsky, M. G., Schenck, K. D., Hunter III E. S., Hertzberg, R. C., Rice, G., Component-based and Whole-mixture Techniques for Addressing the Toxicity of Drinking-water Disinfection By-product Mixtures, *Journal of Toxicology and Environmental Health, Part A*, 67, 741-754, 2004
- 7) 伊藤禎彦、吉村友希、岡田朋之、辻村泰聡、水道水のエストロゲン様作用生成能の測定に関する基礎実験、*水道協会雑誌*、Vol. 74, No. 4, pp. 12-23, 2005
- 8) 金子光美、平田強監訳、水系感染症リスクのアセスメントとマネジメント、WHOのガイドライン・基準への適用、技報堂出版、434p.、2003
- 9) Havelaar, A. H., De Hollander, A. E. M., Teunis, P. F. M., Evers, E. G., Van Kranen, H. J., Versteegh, J. F. M., Van Koten, J. E. M., Slob, W., Balancing the risk and benefits of drinking water disinfection: Disability adjusted life-years on the scale, *Environmental Health Perspectives*, 108(4), 315-321, 2000

水道の給配水過程における生物再増殖とその制御

島崎大

(国立保健医療科学院水道工学部)

1 はじめに

日本国内においては水道法により給配水の過程での残留塩素の保持が義務づけられている。しかしながら、欧米諸国の水道の例を見てみると、ほとんどの国が消毒剤の残留下限値を設定しておらず、また消毒自体も表流水を水源とする場合などに限られることが多い。ここでは、欧州連合(EU)諸国や特にオランダにおける消毒および給配水水質管理の現状と考え方について概要を解説する。また、仮に日本の水道水を基準値(0.1mg/L)程度の低濃度、さらには残留塩素なしで連続的に通水した場合に、配水管内での微生物の再増殖や水道水への流出はどの程度となりうるか、当方らで行った実験結果を中心に紹介したい。

2 EU 諸国における水道の消毒の現状

EU では、加盟各国が遵守しなければならない水質基準値として EU 指令を 1985 年に施行(1998 年改訂)しているが、その指令では消毒は必要とされていない。ただし大腸菌などの微生物が検出されないこととなっており、必然的に適切な消毒の実施を求めていると言えよう。この指標をもとに、加盟各国では独自に消毒剤の選定や水質基準を設定している。ここでは EU 各国の消毒に関する法規制や実施状況、考え方を整理する。なお、以下の情報は米国水道協会雑誌¹⁾からの引用であり、最新の状況を必ずしも反映していないことに留意されたい。

浄水処理での消毒について、すべての飲料水に対して法的に消毒を義務づけているのはポルトガル、スペイン、イギリスである。また、オーストリア、デンマーク、フランス、オランダは表流水から取水している場合のみに消毒を義務づけている。一方、消毒剤の残留について、日本と同様に給水栓で消毒剤の残留を法的に義務づけているのは、ポルトガルとスペインである。ポルトガルは給水末端で 0.2mg/L、スペインは 0.2~0.8mg/L の残留塩素保持が必須である。また、オーストリアとドイツは、微生物に関する基準値を達成する必要がある場合に限って残留を法的に要求している、オーストリアは同時に末端での上限値も設定しており、例として遊離塩素は 0.3mg/L 未満でなくてはならない。また、目標値(ガイドライン値)として浄水場出口で確保すべき残留濃度を示しているのは、ベルギー、フランス、アイルランドの 3 カ国である。このように残留濃度を規定している理由として、①生物学的指標値に合致するため、②生物膜の生成を防止するため、③微生物等を最小化するため、④配水システムにおける混入時の被害を最小限に対処するため、⑤汚染物質が混入した場合の指標として活用するため、などが上げられる。イギリスでは、法的に消毒を義務づけながら基準値や目標値を設定していない。残留消毒剤の濃度は、水源水質、処理方法、配水システム状況に応じて異なるという観点からである。

一方、上記の国以外では消毒剤の残留を要求していない。その主な理由は、①良好な原水水質であるため(特に地下水は微生物学的に安定)、浄水処理におけるマルチバリアによりほとんどの有害物質を除去できるため、③洗管等による維持管理で配水システムの清澄な状況を維持できるため、④消毒副生成物を防ぐため、などである。また、仮にわずかな消毒残留効果を維持していても重大な汚染混入には効果がない、さらに残留消毒を汚染物

質混入の指標として用いることは、現実的には信頼性に乏しいとの判断にもよる。

特にヨーロッパ各国においては、消毒副生成物の生成や残留消毒剤による臭気等の問題に対して、より重大な関心が寄せられていると言ってよいであろう。ギリシャ、ポルトガル、スペインを除いた他の国は、1項目あるいはそれ以上の消毒副生成物に対する基準値を設けている。また、先のオーストリアと同様に、フィンランド、スイス、ルクセンブルグも残留消毒剤の上限値を目標値として設定しており、消毒副生成物対策を主としている為と考えられる。

以上、各国の消毒剤および消毒副生成物に関する基準やガイドラインを表1にまとめた。

表1 EU各国における消毒管理の状況

国名	法的な消毒の義務づけ	消毒剤残留値 (□は法的に規制している国)			消毒副生成物基準値・ガイドライン値	
		消毒剤	浄水場出口 (mg/L)	給水栓 (mg/L)	消毒副生成物	上限濃度 (mg/L)
オーストリア	表流水	遊離塩素	0.3~0.5	0.3未満	総トリハロメタン	0.03
		オゾン	0.1以上	0.05未満		
		ClO ₂	0.05以上	0.2未満	亜塩素酸	0.2
ドイツ		遊離塩素		0.1以上	総トリハロメタン	0.01
		ClO ₂		0.05~0.2	亜塩素酸-二酸化塩素	0.2
ポルトガル	すべて	塩素		0.2		
スペイン	すべて	遊離塩素		0.2~0.8		
		結合塩素		1.0~1.8		
ベルギー		遊離塩素	0.2		総トリハロメタン	0.1
フランス	表流水	遊離塩素	0.1		クロロフォルム	0.03
フィンランド		全塩素	1.0未満		クロロフォルム	0.03
					ブロモジクロロメタン	0.06
					その他	WHOに従う
スイス		遊離塩素	0.1以下		クロロフォルム	0.1
		ClO ₂	0.05以下		ブロモジクロロメタン	0.015
		オゾン	0.05以下		ジブロモクロロメタン	0.1
		クロラミン	0.2以下	ブロモフォルム	0.1	
				総トリハロメタン	0.025(目標値)	
亜塩素酸-塩素酸	0.3					
アイルラン		遊離塩素	0.2~0.5		総トリハロメタン	0.1
ルクセンブルグ		遊離塩素	0.25未満		総トリハロメタン	0.05
オランダ	表流水				ハロゲン化炭化水素	0.001
					臭素酸	0.0005(目標値)
					総トリハロメタン	0.02(目標値)
イギリス	すべて				総トリハロメタン	0.1
					亜塩素酸-二酸化塩素	0.5
デンマーク	表流水				総トリハロメタン	0.01~0.015
イタリア					総トリハロメタン	0.03
スウェーデン					総トリハロメタン	0.05
ギリシャ						

※ドイツとオーストリアは微生物基準値を達成するために必要な場合のみ、法的な消毒剤の残留値を適用する。

3 オランダにおける水道の消毒の現状

オランダは、EU 諸国のなかでも残留消毒剤に依存しない水道システムの構築に向けた先進的な取り組みを行っている。特に同化有機炭素 (AOC : Assimilable Organic Carbon) と従属栄養細菌 (HPC : Heterotrophic Plate Count) という指標を用い、給配水系における微生物再増殖の制御に着目した水質管理を実践している。ここではオランダにおける水質管理の状況について紹介する。^{2,3)}

オランダは 1999 年の時点で、20 の供給会社により 15,500,000 人に飲料水を供給しており、国内の年間給水量は 1,300,000,000m³/年に上る。国全体で 250 の浄水場があり、そのうち 232 が地下水 (バンクフィルトレーションを含む) から取水しており、給水量は 805,000,000m³/年 (62%) である。一方残りの 18 浄水場が表流水から取水しており、給水量は 485,000,000 m³/年 (38%) である。地下水を原水とする場合は消毒を行っていない。それらは帯水層に長い年月浸透しており (1000 年以上浸透するケースもある)、大腸菌による汚染される危険がないと考えているためである。一方、表流水からの取水については、浄水処理におけるマルチプルバリアの観点から微生物を除去している。つまり完全に保護された貯水導水施設、凝集、沈殿、急速ろ過、粒状活性炭(GAC)、緩速ろ過を組み合わせている。18 施設のうち、7 施設はバリアの一つとしてオゾン処理、2 つはクロラミン処理を用いている。表流水を処理している 18 施設のうち 11 施設は、前塩素処理を行っている。そのうち 5 施設が二酸化塩素、6 施設が塩素である。浄水場内の塩素濃度は 0.1 ~0.35mg/L である。前塩素処理の目的は、①砂ろ過層や GAC 層のコロニー数を減少させる、②配水システムにおける再増殖を抑制させるためである。残りの 7 施設では、消毒副生成物の存在が明らかになった 1970 年代後半以降、前塩素処理を取りやめており、代わりに GAC、オゾン、UV を導入している。また大部分の浄水場の出口では消毒剤は消失しており、オランダ国内の全給水量の約 90%が残留消毒剤なしで配水されている (残りの約 10%の残塩濃度はおよそ 0.05mg/L)。

オランダでは EU 指令より厳しい水質基準で水質管理を行っている。例えば大腸菌の試験には 100ml ではなく 300ml の試料水を用いている。浄水場出口の HPC の基準値は定義されていない。再増殖は配水システムにおいて制御されるべきとの考えからである。配水システムでは、1 年以上 HPC が 10cfu/ml(48 時間培養 37°C)以下、100cfu/ml(72 時間培養 22°C)以下になるよう管理している。さらに水質保持の手段として以下の方策がとられている。①資機材に対する認証制度の適用、②配水システムの高水圧保持 (最低 2 気圧)、③家庭のサイホン防止のためバルブ設置、④病院などへ接続する配水管への緊急貯水槽の設置、⑤クロスコネクションを防ぐ基準やマニュアルの提供、⑥配水管工事と修理時における指導と監督、⑦工事資格者制度の導入、⑧微生物学的水質監視指標の展開である。

特に最後の項目について、オランダでは微生物学的に安定した給水と適切な管路の更新により、給配水過程での微生物の再増殖制御を確保できるとしている。配水システムにおける AOC と HPC には有意な相関があり、HPC 増加を制御するためには、AOC は 10 μg/L 以下にすべきであることが実証されており、AOC による管理が行われている。また配水管壁面上の生物膜生成の指標として、生物膜形成速度 (BFR : Biofilm Formation Rate) を使用している。アエロモナス菌の基準値である 200cfu/100ml を越えるリスクは、20% 以下であることがわかっている。したがって AOC と BFR は微生物学的指標として不可欠なものとなっている。さらに最近では生物膜形成ポテンシャル (BFP : Biofilm Formation Potential) を適用している。これは一定の作用時間におけるバッチテストにより、PVC やスチールなどの材料表面における生物膜密度を測定するものである。これにより管の材質ごとに生物膜形成の密度を比較することが可能となる。以上の水質と材質の両面からのアプローチにより、オランダでは生物膜形成に基づいた水質管理を可能にしている。

ただし、このように残留塩素を保持しない水道システムにおいては、再増殖の原因となる有機物を十分に制御した条件下であっても、一定の割合で微生物による汚染が存在する点に留意する必要がある。オランダでは糞便系汚染の指標として大腸菌 (*E.coli*) を用い、検出された場合は他の指標として腸球菌(enterococci)およびウェルシュ菌(*Clostridium perfringens*)による再検査を行っている。また配水管網あるいは浄水場での再増殖の指標として大腸菌群(ただし大腸菌などの糞便系指標が検出されない場合)を用いている。再検査でも大腸菌群が検出された場合は洗管を実施し、特に大腸菌が発見された場合は、洗管と塩素消毒を行っている。国内の 97 浄水場(表流水から取水する 11 浄水場を含む)および配水システムを対象として、大腸菌等の糞便系指標の測定データを整理したところ、1996~1998 年の耐熱性大腸菌(*coli44*)の平均検出率は 0.11%、再測定での検出率は 0.004%であった。また 1995~2000 年の間、国内で 9 件の糞便系汚染が記録され、うち 8 件は利用者への感染につながった可能性があるとしている。以上の結果を全ての浄水場に外挿すると、オランダ国内では毎年 4 ないし 5 件の糞便系汚染が発生していると推定されている。2001 年に改正された水道法では、表流水を使用する 17 浄水場および病原微生物による汚染のおそれのある地下水(バンクフィルトレーションを含む)を使用する 25 浄水場を対象に、浄水による感染リスクを暫定基準として年間 1 万人に 1 人(1×10^{-4} 人/年)を確保できるよう、定量的な評価を行うよう求めている。

4 残留塩素濃度が配水管路内における微生物再増殖性に及ぼす影響

残留塩素に依存しない水道の給配水システムでは、微生物の栄養源となる有機物や無機物の濃度が高いなど、浄水の微生物学的安定性が確保されていない場合において、微生物の再増殖性が大いに増大することが予想される。ここでは、生物膜モニタリング装置であるアニューラリアクターを用いて、残留塩素が存在しない状況下での微生物再増殖ポテンシャル、また遊離残留塩素濃度が再増殖速度や平衡濃度に及ぼす影響につき明らかにすることを目的とした実験を行った⁴⁾。

原水として国立保健医療科学院の水道水を使用し、チオ硫酸ナトリウムまたは次亜塩素酸ナトリウムを添加することにより、各系統の試料水の遊離塩素濃度がそれぞれ 0.0mg/L、0.1mg/L、0.5mg/L 程度となるように調整し、44 日間連続的にアニューラリアクターへ通水した。ただし、通水開始後 34 日目は、全ての系統において一時的に遊離塩素濃度を 1.0~1.2mg/L に上げ、形成された生物膜の剥離状況および回復状況を調べた。流入量を 10mL/分に設定し、滞留時間を約 100 分(容積約 1L)とした。試験片の材料はポリカーボネイトとした。回転ドラムを 180rpm の速度で回転させ、流速 50cm/秒、内径 200mm に相当する給水管内の状況を再現した。各試料水の水温は 20°C 前後に維持した。試験片表面に付着した生物膜は、滅菌済みのスクレーパーで剥ぎ取り、試験片 1 枚あたり 10mL の希釈水(リン酸塩緩衝希釈水)で攪拌したものを試料とした。流入水、流出水および試験片表面に付着した微生物を週 2 回の間隔でサンプリングし、各系統の流入水、流出水および試験片表面における一般細菌と従属栄養細菌を測定した。測定は上水試験方法に準じ、従属栄養細菌は R2A 培地(Difco 社製)を用いて 20°C で 7 日間培養した。なお本院の水道水における AOC 濃度は平均 199 μ g/L であり、国内の測定事例と比較しても高い濃度であった。

試験片表面の一般細菌密度および従属栄養細菌密度を図 1 に示す。一般細菌密度は、残留塩素濃度 0.0mg/L の場合は通水開始当初から、残留塩素濃度 0.1、0.5mg/L の場合は 6 日目以降から増加し始めた。その後 15~20 日以降は、全ての系統において、小さな変動はあるものの増加しなくなり定常期に達した。定常期(16~23 日)における試験片表面の一般細菌密度は、残留塩素濃度 0.0mg/L で $4.3 \times 10^5 \sim 1.3 \times 10^6$ CFU/cm² であり最も大きかった。残留塩素濃度 0.1mg/L、0.5mg/L の場合は、それぞれ $1.8 \times 10^2 \sim 6.1 \times 10^2$ CFU/cm²、

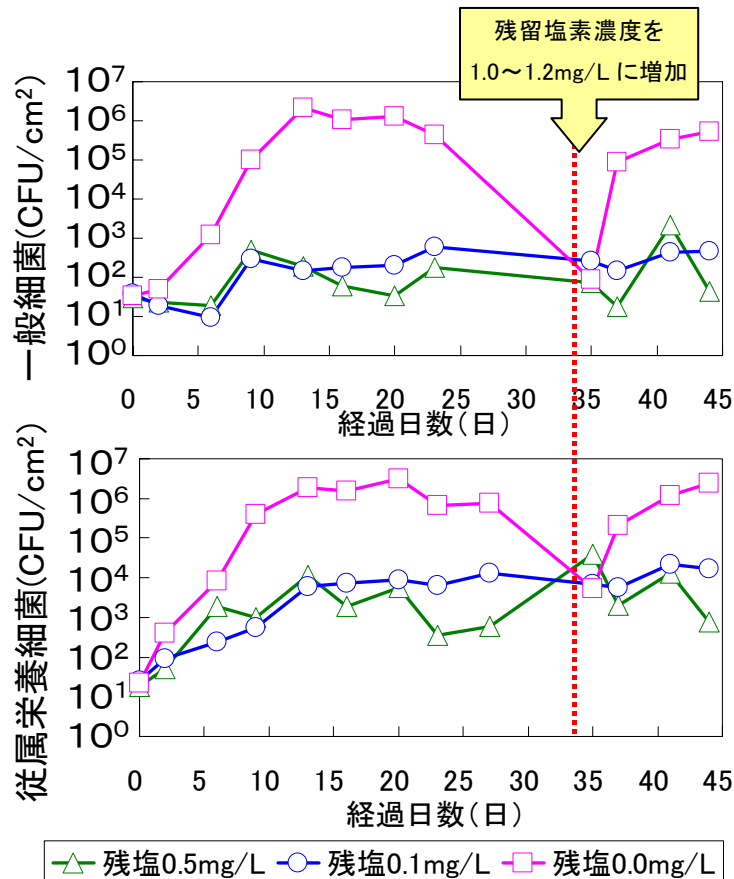


図1 異なる残留塩素濃度における試験片上の一般細菌および従属栄養細菌の密度

$3.5 \times 10 \sim 1.8 \times 10^2 \text{CFU/cm}^2$ となった。試験片表面における一般細菌密度は、残留塩素が無い場合に比べて、残留塩素濃度 0.1mg/L で3~4桁程度、 0.5mg/L で4桁程度抑えられた。従属栄養細菌密度は、いずれの残留塩素濃度においても、通水開始当初から増加し始め、15~20日以降は定常期に達した。増殖期における試験片表面の従属栄養細菌増加速度は残留塩素濃度 0.0mg/L が最も速く、残留塩素により微生物膜の増殖が抑制されていた。定常期(16~23日)における試験片表面の従属栄養細菌密度は、残留塩素濃度 0.0mg/L で $6.5 \times 10^5 \sim 3.1 \times 10^6 \text{CFU/cm}^2$ であり最も大きく、 0.1mg/L と 0.5mg/L の場合は、各々 $6.4 \times 10^3 \sim 1.3 \times 10^4 \text{CFU/cm}^2$ 、 $3.5 \times 10^2 \sim 5.7 \times 10^3 \text{CFU/cm}^2$ となった。試験片表面における従属栄養細菌密度は、残留塩素が無い場合に比べて、残留塩素濃度 0.1mg/L で2桁程度、 0.5mg/L で3桁程度抑えられた。一般細菌、従属栄養細菌ともに残留塩素濃度 0.5mg/L の場合は変動が大きく、不安定な微生物膜が形成されたと考えられる。

流入水・流出水中の一般細菌濃度および従属栄養細菌濃度を図2に示す。流出水中の一般細菌濃度は、塩素濃度 0.1mg/L 、 0.5mg/L では20日目を除いて、流入水中との差がほとんどなく、残留塩素により一般細菌濃度の増加が抑えられたといえる。塩素濃度 0.0mg/L の場合も、0~6日は流入水とほとんど差がないが、その後は増加して15~20日で定常期に達しており、定常期(16~30日)の一般細菌濃度は $8.4 \times 10^3 \sim 7.1 \times 10^4 \text{CFU/ml}$ であった。試験片表面の微生物膜が増殖し始めてしばらくは流出水中の濃度に変化はないが、ある程度 ($1.0 \times 10^5 \text{CFU/cm}^2$) まで大きくなると剥離して流出水中に入ると考えられる。流出水中の従属栄養細菌濃度については、いずれの残留塩素濃度の場合でも流入水中より多い。塩素が存在することで一般細菌の増加は抑えられていたが、従属栄養細菌では塩素が

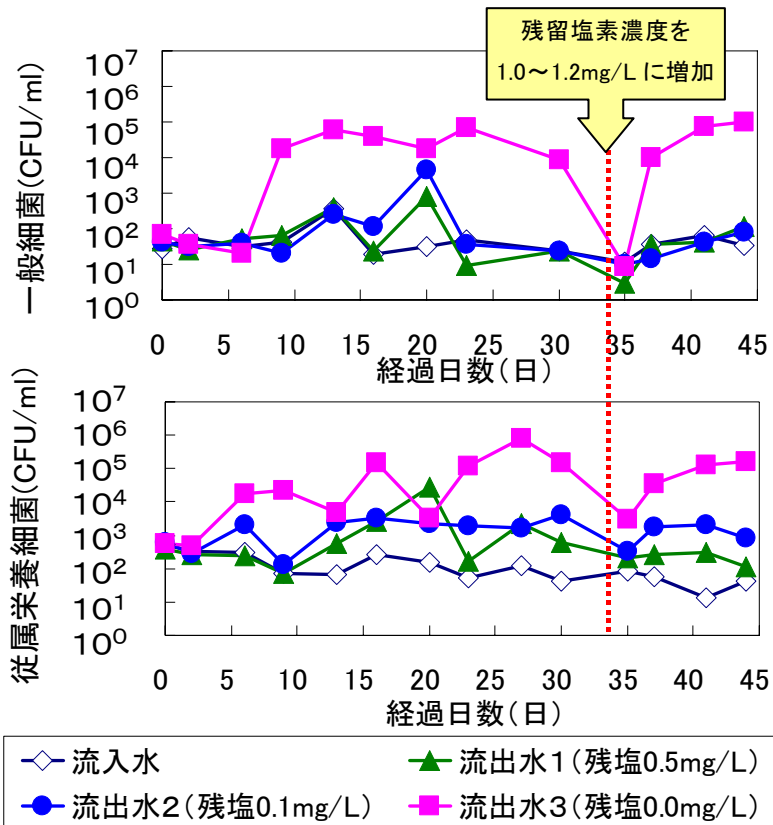


図2 異なる残留塩素濃度における流出水中の一般細菌および従属栄養細菌の濃度

存在するにもかかわらず増加していることから、一般細菌に比べて塩素に対する耐性が強いといえる。従属栄養細菌濃度は、いずれの残留塩素濃度においても 15~20 日で定常期に達した。定常期 (16~30 日) の従属栄養細菌濃度は、残留塩素濃度 0.0mg/L の場合は $3.4 \times 10^3 \sim 8.0 \times 10^5$ CFU/ml、残留塩素濃度 0.1mg/L で $1.6 \times 10^3 \sim 4.2 \times 10^3$ CFU/ml であった。残留塩素濃度 0.5mg/L では増減を繰り返しているが、20 日目を除き、他の残留塩素濃度における値以下を示し、最高で 2.3×10^3 CFU/ml であった。35 日目は、一般細菌、従属栄養細菌ともに残留塩素濃度を高めた影響を受けて流出水中の濃度が減少しているが、一時的なものであり 5 日前後で回復した。また、この時、試験片表面、流出水ともに従属栄養細菌では最大で 2 桁程度下がったが、一般細菌では最大で 4 桁程度低下しており、従属栄養細菌は塩素濃度による影響が一般細菌に比べて小さい。

5 おわりに

EU 諸国においては、消毒副生成物の生成や残留消毒剤による臭気等の問題に対してより大きな関心が寄せられており、日本のように残留塩素の保持が義務づけられている国は少数である。その中でスペインやポルトガルは他国と比べて温暖な気候に属するため、微生物の再増殖性が比較的高い可能性が考えられる。オランダでは微生物の再増殖制御に関して先進的な取り組みが行われており、国内の大半の配水システムが残留消毒剤に依存していないが、その一方、年間 1 万人に 1 人の感染リスク (暫定基準) を許容している点にも注目すべきである。また、仮に日本国内の水道水を残留塩素無しで配水した場合、高濃度の AOC が含まれる等の理由により、水中の細菌濃度が極めて高まる可能性が示された。現状としては、残留塩素の保持によって微生物学的な安全性が確保されている面が大いにあり、残留塩素に依存しない水道を実現する上では、配水過程はもちろんの

こと、水源保全や浄水処理（消毒）を含めた水道システム全般にわたって、取り組むべき課題が多いと考える。

参考文献

- 1) Owen Hydes: European regulations on residual disinfection”, J. AWWA, 91(1), pp.70-74 (1999).
- 2) Dick van der kooji, J. Hein M.van Lieverloo, Jon Schellart,and Peter Hiemstara: Maintaining quality without a disinfectant residual, J. AWWA, 91(1), pp.55-64 (1999).
- 3) J. Hein M. van Lieberloo, Gertjan Medema and Dick van der kooji: Risk Assessment and risk management of faecal contamination in drinking water distributed without a disinfectant residual, J. Water Supply: Research and Technology - AQUA, 55(1), pp.25-31(2006).
- 4) 高井正子，島崎大，国包章一：配水過程における微生物再増殖に及ぼす残留塩素濃度の影響，第 58 回全国水道研究発表会講演集， p. 616-617(2007).

水道水の給配水過程における病原微生物汚染による 健康リスクのシミュレーションモデルを用いた評価

船水尚行

(北海道大学大学院工学研究科環境創生工学専攻サニテーション工学研究室)

1 はじめに

本研究では、残留塩素に依存しない系において、給配水系ではどのようなリスク要因があり、それぞれの要因の健康リスクへの寄与度はどの程度であるか推測することを目的としている。そして、残留塩素に依存する系としない系ではDALYを評価指標とした場合にどの程度の差が生じるか？また、残留塩素に依存しない系において、健康リスク値を一定以下にするためにはどのような運転管理が必要となるかも検討することを目的としている。

これらの検討を実施するためには、Hazard Identification 段階で対象とすべき病原微生物と化学物質(副生成物)を定め、これらの対象物が給配水系でどのように変化するか(管網内での反応、コンタミネーション、微生物のregrowth)を給配水系の流況(圧力・滞留時間分布)との関係で考察し、給水栓における対象物質の濃度分布から健康リスクの確率特性を求めることになる。

給水栓における対象物質の濃度分布に影響を与える要因として、(1)浄水の水質、(2)配水管網の規模、構造、(3)給水系の構造、(4)給配水系の運転・利用状況があげられる。浄水の水質は、原水水質とその変動パターン、処理システムの構成と個々の処理効率ならびにその変動特性に依存する。配水管網の規模、構造としては、配水池容量、需要水量と管径のバランス、管網の絶対的な大きさが関連する。給水系では高架水槽等、その規模が重要である。給・配水系の運転状況としては、通常時、火災時、管路事故時、災害時、制限給水時等が想定されねばならない。

また、このような検討を行うためには、原水水質＋処理系＋消毒系＋配水池＋配水管網＋給水系を総合的に扱うモデルフレームの構築と確率的な検討を行うためのシミュレーションが必要となる。加えて、シミュレーション対象を類型化することも必須である。

ここでは、(1) 検証対象物質(病原微生物)の選定、(2) 原水水質＋処理系＋消毒系＋配水池＋配水管網＋給水系を包括的に表現し、健康リスクを確率的に推算するシミュレーションモデルの構築とシミュレーション対象の類型化について報告する。

2 研究方法

(1) 検証対象病原微生物の選定

検証対象物質(病原微生物)の選定では、国立感染症研究所¹⁾のデータをもとに、日本における感染症の事例、ならびに水系感染症の事例を調査し、年間の発生数を感染症による疾病の影響程度による重み付けをおこなうことで、検討対象微生物の選定を試みた。疾病の影響程度の表現にはDALY値を用いた。DALYとはDisability Adjusted life Yearの略で日本語では障害調整生命と言われている。1993年にWHOや世界銀行が世界の疾病負担の総合的な指標として公表したものである²⁾。

(2) シミュレーション対象の類型化

日本の水道統計を用い、(1)主成分分析により給水区域、水量からシミュレーション対象の類型化を行い、平均的な浄水量、処理方式、配水区域面積の数値を定めた。(2)また、この類型化した対象をもとに、原水水質の変動特性、処理効率の大きさを定めた。加えて、(3)これまで測定

されて、統計的数値を用いることが可能な水質項目(過マンガン酸消費量, 大腸菌群数)とリスク評価に必要なパラメータ(BDOC, 病原微生物濃度)との相関関係の統計的な検討を実施した。

(3)シミュレーションモデルの構築

シミュレーションモデルの構築では、原水水質の統計的性質の把握、処理効率の変動特性の把握により、水源モデル(原水水質モデル)、処理系モデルの同定を行った。また、配水池、配水管網、給水系のうちの貯留水槽について、他栄養細菌の増殖、残留塩素消費をバルクの水、壁面についてシミュレーションするモデルのコード化を実施した。

3 検証対象病原微生物の選定

ここでは、以下の14の感染症について感染の報告数、または患者数を調査した。これらの感染症の報告数・患者数の経年変化をまとめたものを図-1に示す。図は報告数・患者数の対数値を縦軸、横軸に年度をとったものである(腸炎ビブリオ、ブドウ球菌、サルモネラ、カンピロバクター、赤痢菌、ノロウイルス、ロタウイルスは患者数、クリプトスポリジウム、ジアルジア、チフス、腸管性出血大腸菌、レジオネラ、コレラは報告数)。図より、クリプトスポリジウム、ジアルジアなどの報告数自体はそれほど多くはないことがわかる。一方、食中毒由来であると思われる腸炎ビブリオ、ブドウ球菌、サルモレラ、腸管性出血大腸菌、カンピロバクターなどは多く報告されている。また、ノロウイルス、ロタウイルスなどのウイルスの報告も多く見られる。次に DALY 値を用いて重み付けを行った結果を図-2に示す。図には現在、DALY 値³⁾を入手できるクリプトスポリジウム、カンピロバクター、O-157、ロタウイルス、A型肝炎について示してある。図では腸管性大腸菌について右軸、ロタウイルス、カンピロバクター、クリプトスポリジウムは左軸を参照されたい。容易にわかるように、腸管性大腸菌の値が非常に大きくなっている。これは、腸管性大腸菌の DALY 値が他と比べて非常に

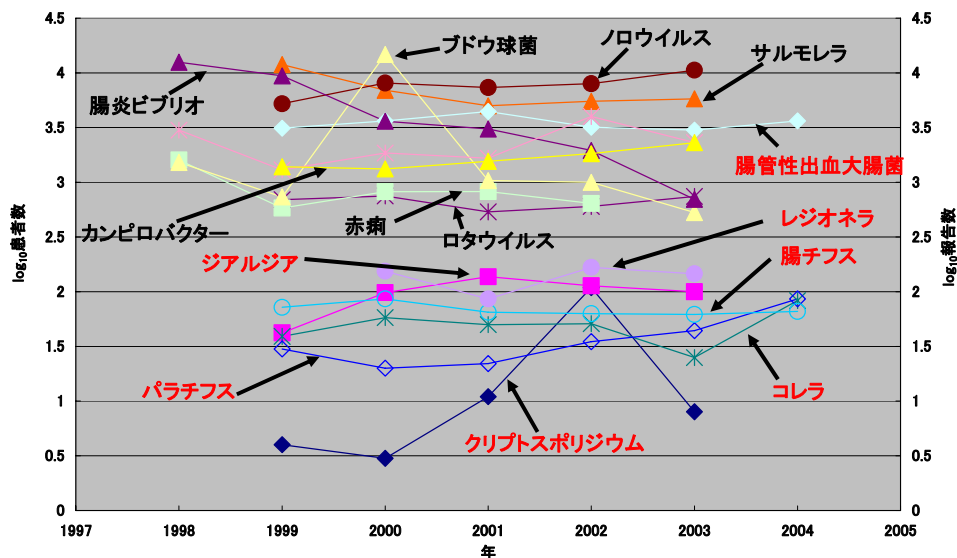
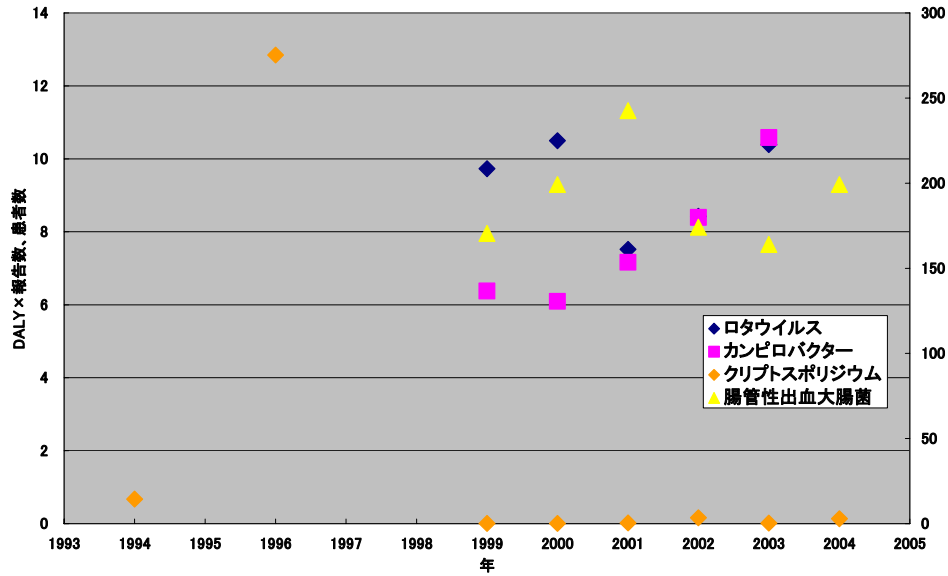


図-1各疾病の報告数・患者数の比較



図—2 DALY値で重み付けした報告数・患者数

大きくなっていることによる。しかし、サルモネラやノロウイルスなどの DALY がまだ把握できていないことから、どの感染症に注目するかについてはもう少し議論を必要とすると思われる。

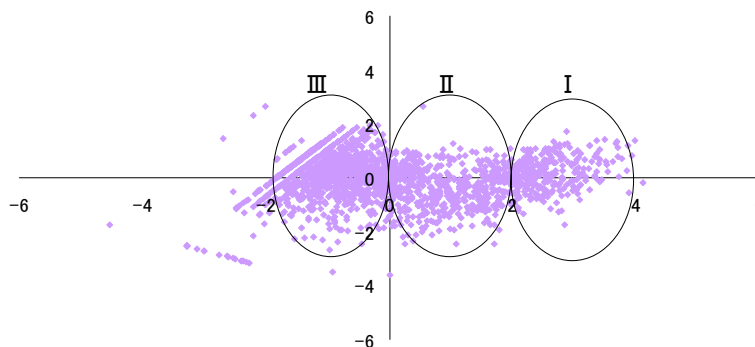
4 シミュレーション対象の類型化

(1) 類型化の方法

日本水道統計 2003 のデータを用いて類型化を行った。類型化に用いた項目は、浄水量、大腸菌群数、過マンガン酸消費量を取り上げた。浄水量は配水区の規模を表現し、大腸菌群数と過マンガン酸消費量は水質の程度を表現している。大腸菌群数は微生物量、過マンガン酸消費量は微生物再増殖を考えたときの有機物量、消毒副生成物を考慮している。2109 の浄水場について主成分分析を行い、類型化を行った。

(2) 類型化の結果

第1、第2主成分の得点値を用いてプロットした結果を図—3に示す。図より、データは第1主成分上(横軸)におおよそ分布しており、第1主成分値のみで、浄水場の特性を評価できることがわかる。



図—3 浄水場データの主成分分析結果

類型 I は規模が大きくて、原水水質が悪いグループ(第1主成分値2以上)、類型 III は規模が小さくて、原水水質が良いグループ(第1主成分値0以下)、類型 II はその中間のグループとすることができる。そして、それぞれの特徴を以下のように整理される:

類型 I:

浄水量平均40,000m³/day 程度の大規模システム. 処理方式は急速ろ過方式.
過マンガン酸消費量:平均:10^{1.09}, 標準偏差:10^{0.31}の対数正規分布
大腸菌群数:平均:10^{4.36}, 標準偏差:10^{0.65}の対数正規分布

類型 II:

浄水量平均3,000m³/day 程度のシステム. 主要処理方式は急速ろ過方式
過マンガン酸消費量:平均:10^{0.61}, 標準偏差:10^{0.35}の対数正規分布
大腸菌群数:平均:10^{1.95}, 標準偏差:10^{1.85}の対数正規分布

類型 III:

浄水量平均1,300m³/day 以下の小規模システム. 主要処理方式は消毒のみ.
過マンガン酸消費量:平均:10^{-0.25}, 標準偏差:10^{0.38}の対数正規分布
大腸菌群数:平均:10^{-1.43}, 標準偏差:10^{1.15}の対数正規分布

5 原水質から給水質を予測するシミュレーションモデルの構築

(1) モデルの概要

原水の水質から給水栓水質を推定するためには, 図-4に示すような, システムを構成する要素についてモデル化する必要がある. 以下, 本研究で実施したモデル化について記述する. 給水栓における水道水質にかかわるリスクの予測においては, 病原微生物に関連するリスクと消毒副生成物等の化学物質に関連するリスクを検討する必要がある. 本報告では病原性リスクに関するリスクを上げる. 病原性微生物によるリスクは

- ① 原水中に含まれていた病原性微生物が処理/消毒過程, 配水系において残留して, 給水栓に到達することに起因する場合: 検討対象の病原性微生物はカンピロバクター, ノロウイルス, クリプトスポリジウムとした.
- ② 給配水系における微生物の再増殖に主として起因する場合: 検討対象はレジオネラを想定しているが, 現段階で微生物の再増殖とレジオネラの定量的な関係が不明のため, 本報告では, 微生物の再増殖そのものをシミュレーションの対象とした.

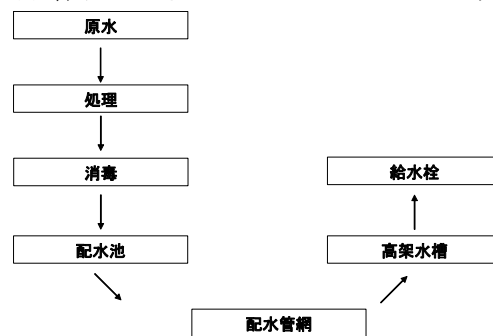


図-4 モデルの概要

(2) 処理・消毒モデル

① 過マンガン酸カリウム消費量の除去率

原水と浄水の過マンガン酸消費量の関係を調べ, その除去率を統計的に定めた. その結果, 類型 I, II について除去率は表-1のような正規分布で記述可能であることが確認された. 一方, 類型 III については, 原水と浄水中の過マンガン酸消費量に関係が見られず, 値が上昇している浄水場なども散見された. そこで, シミュレーションでは除去率 0 とした.

② 病原性微生物の除去率

文献^{3), 4), 5)}により, 大腸菌群数と病原性微生物菌数の関係を定め, 次に, 処理方式(緩速ろ過, 急速ろ過, 塩素消毒)ごとの細菌, ウイルス, 原虫の除去率を文献により定めた^{6), 7)}(表-2). なお, シミュレーションではモンテカルロ法により, 除去率の変動を考慮した.

表-1 過マンガン酸消費量の除去率

除去率	類型 I	類型 II	類型 III
平均	0.735	0.575	—
標準偏差	0.11	0.275	—

表-2 病原性微生物の除去率

	緩速ろ過	急速ろ過	塩素消毒
細菌	22~97%	98~99.9%	99.9~99.99%
ウイルス	22~97%	98~99.9%	99.9~99.99%
原虫	-	2~2.5log	
		-	85~95%

(3) 配水池, 配水管網, 高架水槽モデル

① 微生物再増殖モデル

本報告では Munavalli の論文⁸⁾を参考に配水系モデル(図-5)を作成した. このモデルは配水システム中でのバクテリアの再増殖を表現するモデルとしてマルチコンポーネント反応輸送モデルを提案している. このモデルは, 微生物増殖の現象は有機物と消毒剤の塩素との関係によって支配されることを前提に, 流水部とパイプ壁での基本プロセス(例えば微生物増殖と不活化, パイプからの吸着と脱着, 基質利用, 消毒)について簡略された式を利用している.

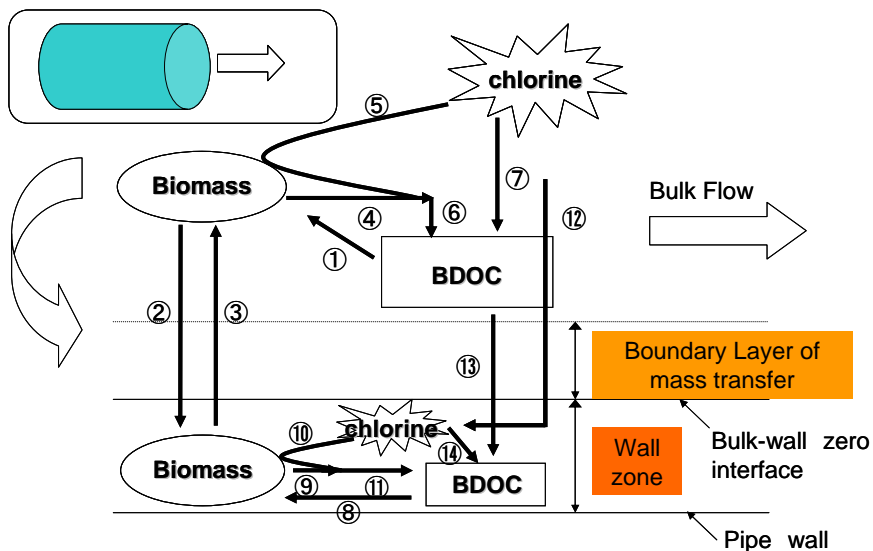


図-5 モデルの概要

② 過マンガン酸カリウム消費量とBDOCの関係

配水管網における微生物再増殖を検討するためには, 生物分解可能な有機物量(BDOC)の値を知る必要がある. そこで, 本研究では, 過マンガン酸消費量→TOC→BDOCの順に推定する方法を用いた. すなわち, 平成14年度厚生科学研究・分担研究報告書「WHO 飲料水水質ガイドライン改訂等に対応する水道における化学物質等に関する研究」⁹⁾による, 過マンガン酸カリウム消費量とTOC間の相関, ならびに, Munavalliら⁸⁾によるTOCとBDOCの関係を用いた.

③大腸菌群数と一般細菌数の関係:

シミュレーションでは、微生物の再増殖量の推算を行う。このため、処理モデルで求められる大腸菌群数値から他栄養細菌を推算する必要がある。そこで、統計データより、一般細菌数と大腸菌群数の関係を整理した結果、大腸菌群数と一般細菌の関係がオーダーで同じになったので大腸菌群数＝一般細菌と考えることとした。

(4)シミュレーション結果

① 配水管網の設定

類型ごとに配水区の大きさが異なることから、まず、給水量と配水人口の関係を整理した。次に、人口と面積の関係を整理した。これらの関係を用いて、類型ごとに人口、配水区面積を表一3のように定めた。

表一3 各類型に設定した配水区面積

	面積(km ²)
類型 I	8
類型 II	5
類型 III	4

次に、シミュレーションのための配水管網を設計するために正方形の管網を設定し、各節点に人口を等配分した。また、消火用水も水道施設設計指針に則り考慮した。

② 塩素の残留効果がない場合の微生物再増殖のシミュレーション

シミュレーションでは、原水モデル→処理/消毒モデル→配水池+配水管網+高架水槽モデルを用い、モンテカルロ法により、乱数を発生させることにより、原水水質の変動、処理効率の変動を表現した。

(a)壁面付着微生物量の経日変化

はじめにパイプ壁面付着微生物量(図一6)、高架水槽壁面付着微生物量(図一7)の経日変化の計算結果を示す。計算結果より、パイプの壁における微生物量は約1週間程度で安定することがわかった。また、その後長期的なシミュレーションを行っても大きな変化は見られなかった。浄水場の規模により3つのグループに類型化して、シミュレーションしているが、規模と原水水質との相関があり、大規模(グループI)ほど、配水池に供給される浄水中のBDOCの値が高くなっている。しかし、この有機物濃度の差は壁面付着微生物量に大きく影響しない結果となっている。

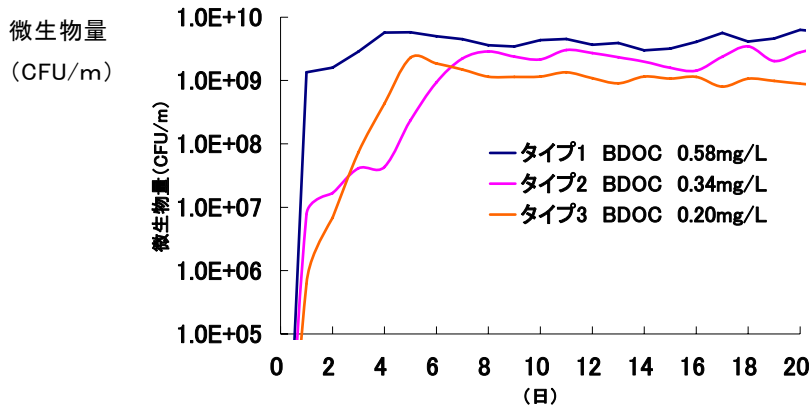
(b)パイプ内の有機物、微生物量の変化

次に、配水管網内の微生物量がほぼ一定になった後の、管網内の有機物濃度、微生物濃度の空間分布の計算例を図一8(類型 I)に示す。管網規模の大きな類型 I の場合、配水池から約10,000m～15,000mの位置で生物分解可能な有機物はほぼ消費され、その地点で微生物濃度が最大値を示している。他の類型においても、同じような傾向を示しているが、類型 II、類型 III と規模が小さくなるに従い、原水水質が良くなり、配水池に供給される浄水中の有機物レベル、一般細菌数も低くなることから、有機物濃度がゼロ、微生物濃度が最大となる地点は配水池により近い場所となっている。

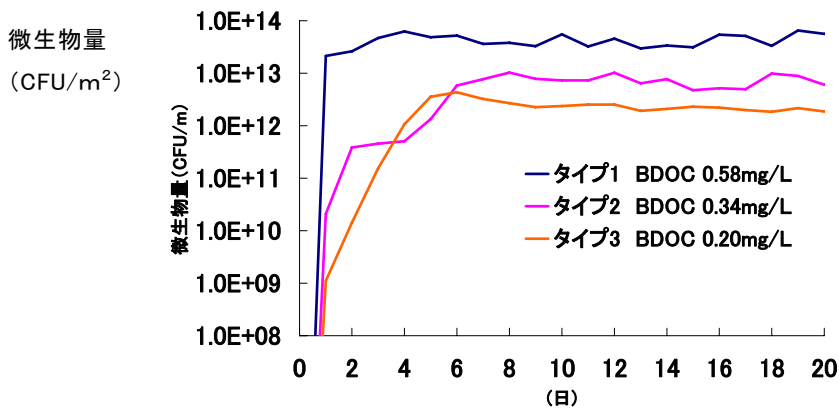
③ 病原微生物によるリスク評価(現状評価)

病原性微生物による健康リスクの推算を実施した。各類型ごとに、原水モデル+処理/消毒モデルに加え、配水管網内で病原微生物濃度の変化が無いと仮定して、モンテカルロシミュレーションを実施した。暴露のシナリオとしては、1人1日2L 摂取すると仮定した。対象微生物は前年度の検討から、カンピロバクター、ノロウイルス、クリプトスポリジウムとした。

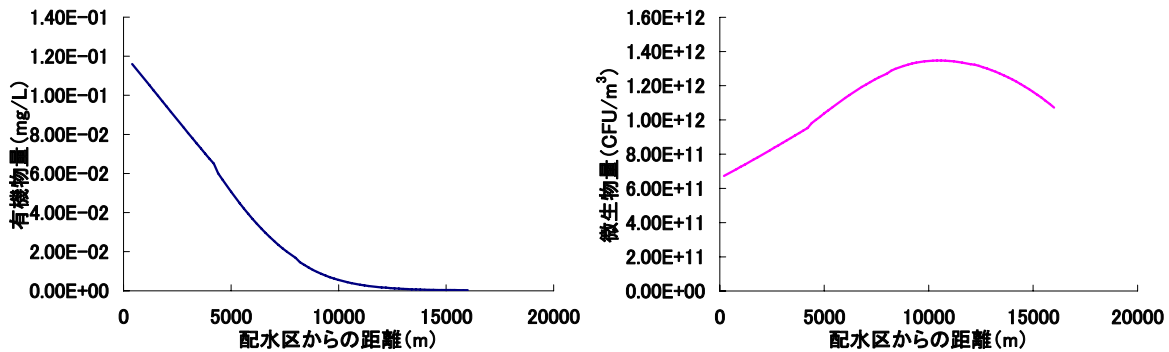
シミュレーションでは50年間の感染リスクとDALYの期待値を計算した。感染リスクは大腸菌群数、過マンガン酸カリウム消費量の原水質を日々変化させ、1日の感染リスクを求めた。50年間でそれぞれ1人が1回以上感染する確率を求めた。



図—6 パイプ壁面付着微生物量の経日変化



図—7 高架水槽壁面付着微生物量の経日変化



図—8 配水管網内の有機物濃度, 微生物量(類型 I)

本報告では現状の評価, すなわち, 現状の原水水質データ+塩素消毒を行っているとして, DALY 値の推算を行った. 結果を図—9~11に示す. なお, 図中の点線はWHOの許容値(1.0×10^6 DALY/year/person)を示している. また, 図中棒の上端は5%値, 下端は95%値, 箱の上端は25%値, 下端は75%値を示している. 計算では, 50年間のDALYの期待値を算出し, その対数値を取ることで比較を行った.

WHOの許容値と推算結果を比較すると, カンピロバクター, ノロウイルス, クリプトスポリジウムのすべてにおいて許容値内であることがわかる. これにより今回構築したモデルはある程度現状を評価できるものではないかと推測された. ただし, 今回の結果の数値をどのように評価するかには課題が残っている.

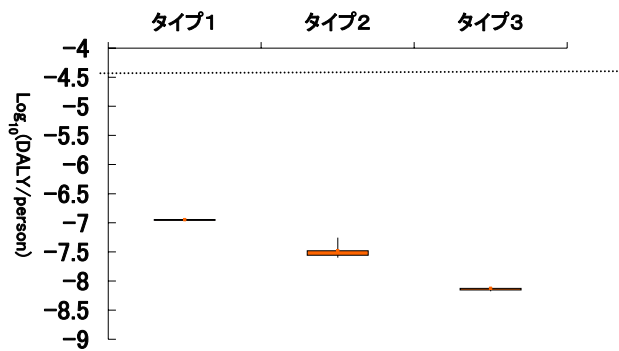


図-9 カンピロバクターによるリスクの推算結果

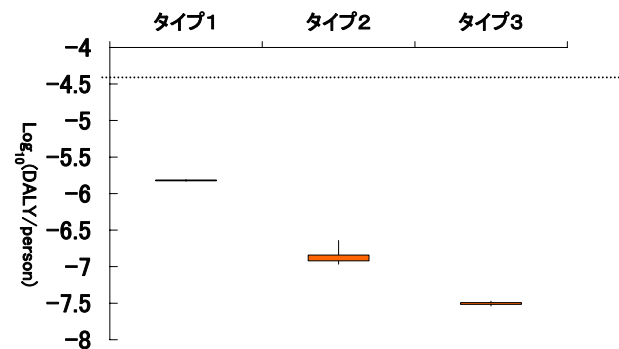


図-10 ノロウイルスによるリスクの推算結果

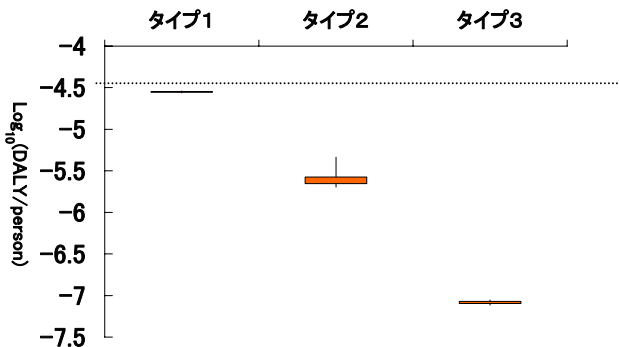


図-11 クリプトスポリジウムによるリスクの推算結果

6 まとめ

残留塩素に依存しない給配水系におけるリスク要因とそのレベル，ならびに残留塩素に依存しない系においてリスク値を一定以下にするため方策を検討するために必要な，原水水質から処理系，そして給配水系を包括的に表現し，健康リスクを確率的に推算するシミュレーションモデルの構築について検討し，モデルを用いた検討から，次の結果が得られた：

- (1) 消毒剤の残留効果が無い場合を対象にシミュレーションを行った．パイプや高架水槽壁面付着微生物量の経日変化を計算した結果，壁面微生物量は約 1 週間程度で安定することがわかった．また，その濃度は現状の原水質（それにとまなう浄水質）の差に大きく影響されない結果であった．配水管網内の有機物濃度，微生物濃度の空間分布の計算結果より，管網の中流域で有機物が消費され，かつ，微生物濃度が最大となることが示された．
- (2) 病原性微生物に関する現状のリスク推算を行った．計算では，50 年間の DALY の期待値を算出し，WHO の許容値と推算結果を比較した．その結果，カンピロバクター，ノロウ

イルス、クリプトスポリジウムのすべてにおいて許容値内であった。
残された研究期間において、長期シミュレーションによる残留塩素非依存系の健康リスク評価を実施する予定である。

参考文献

- 1) 国立感染症研究所 <http://www.nih.go.jp/niid/>
- 2) 森 亭(1994)日本の主要疾患におけるDALY(障害調整生命年)の意義
- 3) 厚生科学審議会生活環境水道部会水質管理専門委員会
- 4) APSU: Quantitative health risk assessment 2.2006
- 5) 金子光美: 水環境学会誌 No. 29 (2006)
- 6) 金子光美 飲料水の微生物学 p298, p 327~354
- 7) Review paper Drinking water treatment processes for removal of Cryptosporidium and Giardia , Journal of Japan Society on Water Environment(Vol29 2006)
- 8) G.R.Munavalli, M.S.Mohan Kumar: Dynamic simulation of multi-component reaction transport in water distribution systems, water research, 2004
- 9) 平成14年度厚生科学研究・分担研究報告書「WHO 飲料水水質ガイドライン改訂等に対応する水道における化学物質等に関する研究」