氏 名 柳 橋 泰 生

学位(専攻分野) 博 士 (工 学)

学位記番号 工博第 2901 号

学位授与の日付 平成20年3月24日

学位授与の要件 学位規則第4条第1項該当

研究科・専攻 工学研究科都市社会工学専攻

学位論文題目 水道水に含まれる物質の気相曝露に関する研究

(主 查) 論文調查委員 教授伊藤禎彦 教授内山巖雄 教授森澤眞輔

論文内容の要旨

本論文は、水道水に含まれる物質が揮散等によって気相に移行し、人の健康や感覚に影響を与える現象を取り上げ、その 曝露評価等を行ったものである。すなわち、水道水に衛生上の措置として注入されている塩素に起因して問題が生じている カルキ臭等の臭気およびトリハロメタンに着目し、それらを課題として研究を実施した結果をまとめたものであって、7章 からなっている。

第1章は序論であり、研究の背景、目的、概要、研究フロー等を示した。

第2章では、水道水の臭気問題の現状等を整理し、水道水に対する信頼を回復するために解決すべき課題を抽出した。その結果、今後、高度浄水の導入等の対策を講ずるとともに、供給されている水道水が需要者にとって満足し得るものであることを示すことが必要であり、水道水の臭気について客観的で説得力のある測定方法を開発することが求められていることを明らかにした。

第3章では、水道水の臭気強度(TON)の測定を定量的、客観的に実施するため、三点比較法の適用を目指して偶然の 正解に関する確率論的考察等を行い、新しい臭気強度の測定方法を提案し、人工付臭水を用いた実験、および実際の水道水 の測定によりその検証を行った。

はじめに、三点比較法により臭気強度を測定する場合、偶然の正解により測定値が本来の結果からずれてしまう確率は負の二項分布(パスカル分布)を示すことが判明し、実用的には各測定において2回以上の的中を正解とみなし、かつ、パネルの人数を2人以上とすることが必要であることを示した。

以上をふまえ、偶然の正解による影響を回避した三点比較法を適用した新しい臭気強度の測定方法を提案し、人工的に付臭した検体を用いて三点比較法と従来法を比較したところ、三点比較法では臭気強度の変化が小さく、測定値に大きな変動があった人数も少なく、再現性に優れていることを示した。ついで、実際の水道水(高度浄水処理水)を採取して、残留塩素を除去した場合と除去しない場合の両方について臭気強度(TON)を測定したところ、残留塩素を除去した場合の臭気強度は、水道水の水質管理目標である3を超過したのは1箇所のみであり、残留塩素を除去しなかった場合の臭気強度の最大値は88にも達しており、両者に大きな差異が見られた。以上より、高度浄水処理水でもカルキ臭が広く存在する実態を把握した。

第4章では、水道水に含まれる物質(健康影響に係る項目)の気相曝露を研究する際のトリハロメタンの位置づけと検討すべき課題を整理した。現行の水道水水質基準では、消毒副生成物に関して、耐容一日摂取量に対する飲用寄与率を一律20%として設定している。しかしながら、トリハロメタンの曝露経路は多様と考えらるため、我が国の一般人において考慮すべきトリハロメタンの曝露経路を整理し、トリハロメタンの曝露に関する国内外における調査研究例を曝露経路別にレビューしたころ、入浴時の水道水に由来する気相を介した吸入曝露に関する知見が我が国において不足していることがわかった。第5章では、我が国の一般住居におけるトリハロメタンの気相曝露の実態調査を行い、気相曝露量の推計を行った。平成

17年11月から平成18年12月の間に、浴室、居室、台所および屋外の空気並びに給水栓水のトリハロメタンについて、近畿地方の延べ30軒で測定を行った。空気中の総トリハロメタン濃度(中央値)は、浴室において $56.5\mu g/m^3$ 、台所で $1.62\mu g/m^3$ 、居間で $0.94\mu g/m^3$ であった。トリハロメタンの各物質の浴室濃度は、台所や居間と比べると、最大値で $20\sim92$ 倍、平均値で $24\sim53$ 倍、中央値で $35\sim60$ 倍と桁違いに大きな値を示した。

以上の実態調査をもとに、トリハロメタンの気相曝露量の推定を行ったところ、中央値で、総トリハロメタン $28.3 \mu g/m^3$ であり、クロロホルム $12.7 \mu g/day$ であった。また、屋内環境におけるトリハロメタンの曝露量は浴室が最も多かった。なお、居間の空気中濃度は低かったが在室時間が長いため曝露量は浴室に近いものとなった。

第6章では、トリハロメタンの曝露経路として、水道水の飲用による曝露量、浴室、台所および居間における気相曝露量、 食品経由の曝露量、経皮曝露量、大気汚染による曝露量、並びに水泳プール、公衆浴場における曝露量について、曝露媒体 中の濃度および摂取量に関する調査事例を収集整理し、各経路の曝露量を推計した。また、経口曝露、吸入曝露等の毒性評 価例についてとりまとめ、直接飲用および水道水の寄与率に関して総合評価を行った。

その結果、平均的な推計によると、トリハロメタンの各物質について、気相曝露量等を加えた水道水に由来する曝露量の合計は、直接飲用による曝露量の3.2~4.7倍に達した。水道水由来を含め全ての経路について、曝露量を足し合わせ経路別の内訳を算定したところ、クロロホルムに関しては、日常的にプールで水泳を行うか、循環式浴槽施設の公衆浴場に入浴するかで大きく結果が異なった。日常的にはプールで水泳を行わず家庭で入浴する場合は、水道水の直接飲用の曝露量の割合は17%、水道水由来の曝露量は79%と推計された。クロロホルム以外では、水道水の直接飲用の曝露量の割合は、ブロモジクロロメタン29%、ジブロモクロロメタン27%、ブロモホルム20%であった。

各曝露経路の曝露量を推計したところ、特異的に曝露量が大きくなる場合があり、水道水、食品等について塩素剤使用の 適正管理等が必要であることを指摘した。また、トリハロメタン等消毒副生成物の曝露量評価に当たって今後集積すべき知 見ついて整理した。

第7章は結論であり、本論文で得られた成果について要約している。

論文審査の結果の要旨

本論文は、水道水に含まれる物質が揮散等によって気相に移行し、人の健康や感覚に影響を与える現象を取り上げ、その 曝露評価等を行ったものであり、得られた主な成果は次のとおりである。

- 1. 水道水の臭気の測定を定量的、客観的に実施するため、臭気強度(TON)の測定に三点比較法を適用した。まず、臭気強度を測定する場合必然的に生じる偶然の正解について、確率論的考察を行い、実用的には各測定において2回以上の的中を正解とみなし、かつ、パネルの人数を2人以上とすることが必要であることを示した。ついで、三点比較法と従来法を比較したところ、三点比較法では臭気強度の変化が小さく、また測定値に大きな変動があった人数も少なく、再現性に優れていた。さらに、実際の水道水を採取して、残留塩素を除去した場合と除去しない場合について臭気強度を測定したところ、両者に大きな差異がみられること、および高度浄水処理水の場合でもカルキ臭が広く存在する実態を把握した。
- 2. 現行の水道水水質基準では、消毒副生成物に関して、耐容一日摂取量に対する飲用寄与率を一律20%として設定している。本研究では、トリハロメタンについて、我が国における気相曝露等の経路による曝露量を推計し、水質基準設定のために必要な飲用および水道水の寄与率を求めている。近畿地方の一般住居において実態調査を行った結果、台所や居間と比べると、浴室の濃度が桁違いに大きいなどの結果を得た。また、トリハロメタンの曝露経路として、水道水の飲用による曝露量、浴室、台所および居間における気相曝露量、食品経由の曝露量、経皮曝露量、大気汚染による曝露量、並びに水泳プール、公衆浴場における曝露量について、曝露媒体中の濃度および摂取量に関する調査事例を収集整理し、各経路の曝露量を推計した。この結果、水道水の直接飲用の曝露量の割合は17%程度、水道水由来の曝露量は79%程度と推計した。

本論文で得られた水道水臭気の測定方法に関する成果については、今後、上水試験方法の臭気強度の新しい測定方法として採用され、客観的で再現性の高い測定に寄与することが期待され、また、水道水中のトリハロメタンの曝露評価に関する成果については、今後の我が国の水道水水質基準の改正の際の貴重な知見になるものと考えられ、学術上、実際上寄与する

ところが少なくない。よって、本論文は博士(工学)の学位論文として価値あるものと認める。また平成20年 2 月27日、論文内容とそれに関連した事項について試問を行った結果、合格と認めた。