

特集：身の回りに潜む健康リスクと我が国の安全管理への取組

＜総説＞

水道における化学物質に関する最近の話題

小坂浩司

国立保健医療科学院生活環境研究部

Recent topics on chemicals in drinking water

KOSAKA Koji

Department of Environmental Health, National Institute of Public Health

抄録

水道における化学物質の最近の話題として、ペルフルオロ及びポリフルオロアルキル化合物 (PFAS)、農薬類、ハロ酢酸を採り上げた。PFASは、2020年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) が水質管理目標設定項目に格上げされ、(公社)日本水道協会による水道統計で全国の水道での調査結果が集計されるようになった。しかし、調査地点数は他の項目に比べて少なく、より多くの地点での調査が必要であると考えられた。海外では、PFAS処理を目的に適用されている浄水プロセスが報告されているが、国内では、それらプロセスは、適用事例が多い活性炭処理を含めて、ほとんどの場合、PFAS以外の項目の除去を目的に適用されている。このため、浄水場でPFAS処理に適用した場合の運転条件について、コスト面も含めた検討が重要である。農薬類は、種類が多く、用途により使用時期等が異なるため、検出できるように測定の時期や回数を設定する必要があるが、現状は、全項目を年間1回測定するところが多い等、測定計画が適切に設定されていない場合がある。逐次改正方式により、水質管理目標設定項目に指定されている農薬類の種類や目標値は継続的に見直しが行われている。テフリトリオン、イプフェンカルバゾン等、新規に追加された農薬類の検出が報告されており、これら新たな農薬類についての対応も求められている。3種の塩素化ハロ酢酸は水質基準項目に指定されているが、特にトリクロロ酢酸は、2015年に基準値が大幅に強化された後は、基準値を超過しやすい物質の一つとなった。要検討項目の臭素化ハロ酢酸のうち、ブロモクロロ酢酸とブロモジクロロ酢酸は目標値案が示され、給水栓中でその50%を超える値が報告されており、臭素化体も含めた管理が望まれる。

キーワード：PFAS, PFOS, PFOA, 農薬類, ハロ酢酸

Abstract

Per- and polyfluoroalkyl compounds (PFAS), pesticides, and haloacetic acids were introduced as recent topics on chemicals in drinking water. As for PFAS, PFOS (perfluorooctanesulfonic acid) and PFOA (perfluorooctanoic acid) were selected as complementary items for water quality management in 2020, after which time monitoring data for these substances in the water supply system across Japan have been tallied in the Statistics on Water Supply by the Japan Water Works Association. However, as the number of these monitoring data is smaller than those for other items, more monitoring points for PFOS and PFOA are needed. Drinking water treatment processes have been

連絡先：小坂浩司

〒351-0197 埼玉県和光市南2-3-6

2-3-6 Minami, Wako, Saitama 351-0197, Japan.

Tel: 048-458-6306, Fax: 048-458-6305

E-mail: kosaka.k.aa@niph.go.jp

[令和5年6月30日受理]

applied for the purpose of PFAS removal in overseas countries. However, most of these processes, which involve activated carbon treatment, which has been applied in many cases, are applied for the purpose of removal of the substances other than PFAS in Japan. Therefore, it is important to study the operating conditions for PFAS removal at drinking water treatment plants, including cost considerations. Since there are many types of pesticides and the timing of their use depends upon the application, it is necessary to set the timing and frequency of the measurement of pesticides for their detection. However, there are currently cases where the monitoring plans for pesticides are inappropriate (e.g., all pesticides complementary items for water quality management are measured once a year at many water supply systems). The types and guideline values of pesticides that have been selected as complementary items for water quality management are continuously revised under a rolling revision system of drinking water quality regulation. As the detection of some pesticides that have been newly added as complementary items (e.g., tefuryltrione and ipfencarbazone) has been reported, countermeasures for these new pesticides are also required. Three chlorinated haloacetic acids have been selected as standard items in drinking water, and trichloroacetic acid, in particular, became one of the items most likely to exceed its standard value after a significant tightening of the value in 2015. Among the brominated haloacetic acids selected as items for further study, proposed guideline values for bromochloroacetic acid and bromodichloroacetic acid were introduced, and the acids were found in tap water at an excess of 50% over their proposed guideline values. Thus, it is considered that water quality management involving brominated species is needed for haloacetic acids.

keywords: PFAS, PFOS, PFOA, pesticides, haloacetic acids

(accepted for publication, June 30, 2023)

I. はじめに

日本の水道水質基準は、遵守義務があり検査の義務がある水質基準項目、水質基準に準じた検査が要請されている水質管理目標設定項目、毒性評価が定まらない物質や水道水中での検出実態が明らかでない要検討項目で構成され、2023年4月時点で、それぞれ51、27、46項目が指定されている[1]。水質基準は、2003年の厚生科学審議会の答申[2]により、最新の科学的知見に基づいて、逐次改正方式により見直しが行われている。最近の注視

すべき物質、関心の高い物質については、水質基準の見直しの動向や水質基準逐次改正検討会[3]の資料から、情報を得ることができる。

ペルフルオロ及びポリフルオロアルキル化合物 (PFAS) は、撥水・撥油性、熱・化学的安定性等の物性を示し、幅広い用途で使用されている[4]。2020年4月、代表的なPFASであるペルフルオロオクタンスルホン酸 (PFOS)、ペルフルオロオクタン酸 (PFOA) は、要検討項目から水質管理目標設定項目に格上げされ (目標値 (暫定) : PFOSとPFOAの合算で 50 ng/L) (表1)、2021

表1 2019年4月以降における水質基準項目と水質管理目標設定項目の見直し[1,5]

年月	項目	内容
2019年4月	<ul style="list-style-type: none"> 水質管理目標設定項目 対象農薬リスト掲載農薬類 カルバリル (NAC), プロベナゾール, メタラキシル エディフェンホス (エジフェンホス, EDDP), エトリ ジアゾール (エクロメゾール), カルプロバミド, メチ ルタイムロン オリサストロピン 	目標値の見直し (20, 30, 200 μg/L) 削除 代謝物 ((5Z)-オリサストロピン) の濃度も合計して算出
2020年4月	<ul style="list-style-type: none"> 水質基準 六価クロム化合物 水質管理目標設定項目 PFOS及びPFOA 対象農薬リスト掲載農薬類 カルタップ, ジクワット, プロチオホス 	基準値の見直し (20 μg/L) 追加 (目標値 : 合算で 50 ng/L) 目標値の見直し (80, 10, 7 μg/L)
2021年4月	<ul style="list-style-type: none"> 水質管理目標設定項目 対象農薬リスト掲載農薬類 カルボフラン, ベンフラカルブ 	目標値の見直し (0.3, 20 μg/L)
2022年4月	<ul style="list-style-type: none"> 水質管理目標設定項目 対象農薬リスト掲載農薬類 ホスチアゼート イブフェンカルバゾン メチダチオン 	目標値の見直し (5 μg/L) 追加 (目標値 : 2 μg/L) オキソソンの濃度も合計して算出

年4月、ペルフルオロヘキサンスルホン酸 (PFHxS) は要検討項目に指定された[1,5]. PFASは、社会的にも関心が高く、しばしばニュースや記事等でも採り上げられている。また、水質管理目標設定項目に指定されている農薬類は、その種類が多いこともあるが、他の項目に比べて、高い頻度で見直しが行われている(表1) [1,5].

本稿では、水道における化学物質の最近の話題として、PFASと農薬類を対象に、規制や存在状況、対策等について紹介する。また、要検討項目のうち目標値案が提案された臭素化ハロ酢酸を含む、ハロ酢酸についても採り上げる。

II. PFAS

1. 規制の動向について

経済協力開発機構 (OECD) によると、PFASについて、少なくとも1つの完全にフッ素化されたメチル基又はメチレン基 (フッ素が結合している炭素原子に水素、塩素、臭素、またはヨウ素原子が結合していないもの) を持つフッ素化合物、と定義されている[4,6].

飲料水中のPFASの規制の動向について、海外の状況を見ると、WHOは、飲料水水質ガイドラインの背景文書案の中で、暫定ガイドライン値として、PFOS, PFOAについてそれぞれ100 ng/L, 総PFASとして500 ng/Lを提案した(総PFAS: およそ30種のPFAS関連物質) [7,8]. 米国環境保護庁 (US EPA) は、2016年、PFOSとPFOAの健康勧告値として合計値で70 ng/Lを示したが、2022年、新たに暫定勧告値としてPFOSで0.02 ng/L, PFOAで0.004 ng/Lを、健康勧告値としてヘキサフルオロプロピレンオキシドダイマー酸とその化合物 (GenX化合物) で10 ng/L, ペルフルオロブタンズルホン酸 (PFBS) で2000 ng/Lを示した[9]. 2023年3月、第一種飲料水規則に基づく最大汚染レベル案として、PFOS, PFOAでそれぞれ4.0 ng/Lを、また、ペルフルオロノナン酸 (PFNA), PFHxS, PFBS, GenX化合物のハザード指数として1.0を提案した[10,11]. ハザード指数とは、各物質の検出濃度と健康に基づく濃度 (PFNA: 10 ng/L, PFHxS: 9.0 ng/L, PFBS: 2,000 ng/L, GenX化合物: 10 ng/L) との比の和である[10,11]. 他の国々や機関でも、PFASの規制について公表、提案等を行っている[8]. 日本では、PFOS, PFOAが水質管理目標設定項目に(表1), PFHxSが要検討項目に指定され[1,5], 総PFAS (仮称) の要検討項目への指定も念頭においた取り組みも検討されている[8]. また、環境省では、PFOS・PFOAに係る水質の目標値等の専門家会議[12], PFASに対する総合戦略検討専門家会議[13]が設置

され、食品安全委員会においても、PFASに関するワーキンググループが設置された[14]. これら会議の資料には、PFASに関する国内外の情報が整理されており、より詳細な情報はそちらを参照されたい。

2. 存在実態について

環境省は、2019年度にPFOS, PFOAについて全国171地点の公共用水域等で、2020年度にPFOS, PFOA, PFHxSについて全国143地点の公共用水域等で調査を行った[15,16]. また、PFOS, PFOAは2020年度に要監視項目に指定されたため、以降は、環境基準点または補助点の公共用水域等で調査が行われている[8,17]. 厚生労働省は、2019年度にPFOS, PFOAについて全国39浄水場で調査を行い、浄水中のPFOSとPFOAは定量下限未満~46.4 ng/Lであったこと、2020年度にPFOS, PFOA, PFHxSについて全国29浄水場で調査を行い、浄水中のPFOSとPFOAは定量下限値未満~63.6 ng/L, PFHxSは定量下限値未満~14.8 ng/Lであったことを報告した (PFHxSの調査は14浄水場、PFOSとPFOAの合計濃度が50 ng/Lを超過していた浄水場では原水 (地下水) の取水を停止) [18,19]. 2020年度にPFOSとPFOAは水質管理目標設定項目に指定されたため、(公社)日本水道協会による水道統計において、PFOSとPFOAの調査結果も集計されるようになった[20]. 2020年度は、589施設の給水栓水中で調査され、目標値の50%超~100%以下が12地点、100%超が5地点であった(目標値を超過した施設は、多くが地下水を原水としており、その後、濃度低減策 (粒状活性炭 (GAC) 処理の導入、当該水源の使用を停止等) が取られた) (表2) [8,20]. 2020年度の浄水でのPFOS, PFOAの調査地点数は835であったが、他の水質管理目標設定項目では約3,300のものもあり、より多くの地点での調査が必要であると考えられた (水質基準項目の調査地点数: 9,000) [20]. 現在、PFASへの社会的関心は高く、水道事業体は、ウェブサイトを通じてPFASの紹介や水道水中の調査結果を紹介している。水道水中のPFOSとPFOAの合計濃度が目標値を超過した場合には、その後の対応も含めて公表している事例もある。PFOS, PFOA, PFHxS以外のPFASも含めて調査を行ったり[21,22], 排出源周辺やその下流の調査を行っているところもある[23]. PFOS, PFOAの今後の対応を検討する際の参考として「PFOS及びPFOAに関する対応の手引き」[24]が公表されているが、この中で、PFOS, PFOAの水環境中への排出源となりうる主な施設 (PFOS及びPFOAが含まれる泡消火薬剤を保有する施設、フッ素系界面活性剤の製造施設、これらの製品を利用する

表2 2020年度における給水栓水中のPFOSとPFOAの合計濃度 (ng/L) [8,20]

	N.D.	N.D. 超5以下	5超25以下	25超50以下	50超
地点数	452	51	69	12	5
割合 (%)	76.7	8.7	11.7	2.0	0.8

N.D.: 定量下限値未満

フッ素系樹脂の製造施設、PFOS及びPFOAが含まれる製品を処理した実績のある廃棄物処理施設等)が示され、国内の水源でのPFASの排出源を特定した事例もあるが、その数は少ない。排出源での対策は、水道水中のPFAS濃度を低減する有効な方法であるため、排出源調査も重要である。

なお、国内の水環境中でのPFASに関する調査は、2000年代前半から実施されてきた[25,26]。PFOS, PFOA, PFHxS以外のPFASについての調査結果も数多くある[26,27]。水道においても、以前から調査は行われており[28,29]、厚生労働省による全国調査も実施された[30]。例えば、表流水を原水とする浄水場における2005～2021年の調査では、浄水中のPFOSは数ng/Lで一定、PFOAは2007年に約45 ng/Lで最大となり、その後は低下し、5～10 ng/L程度の範囲で一定となった(一部の結果は、図からの読み取り)[21,31]。

現在、厚生労働省は、PFOS, PFOA, PFHxSの水質検査方法を示している[32]。これらPFASには多くの異性体が存在するが、検査方法では、それぞれの直鎖の標準を用いて分岐鎖も合わせて定量することが述べられている[32]。また、環境省[15]やUS EPAによる分析方法[33]でも、方法は異なるが、分岐鎖の取り扱いについて記述されている。一方、検査方法が公開されるより以前は、分岐鎖の取り扱いについて共通の考え方は示されていない。したがって、過去の結果と現在の結果、異なる研究の結果を比較する場合、検査法の違いについても確認する必要があると考えられる。

3. 低減策について

PFASについて、現状、海外で実用化されている浄水プロセスとして、活性炭処理、イオン交換処理、膜処理(逆浸透(RO)、ナノろ過)が挙げられる[34]。これら処理プロセスのPFAS除去特性についての研究も数多く行われている。活性炭処理によるPFASの除去性は、同

族体の場合、炭素数が少ない方が疎水性が低く除去率も低いこと[35,36]、ペルフルオロスルホン酸(PFSA)やPFOA等のペルフルオロカルボン酸(PFCA)等の場合、疎水性の指標としてLog D(解離を考慮したオクタノール/水分配係数)と除去性に関連性があることが報告されている[35,36]。異なる活性炭や陰イオン交換樹脂によるPFAS除去の検討や、PFAS除去に適した陰イオン交換樹脂の開発も行われている[37,38]。

国内では、イオン交換処理やRO膜処理の浄水場への適用事例は少なく、適用事例が多い活性炭処理でも、ほとんどがPFAS以外の項目(かび臭原因物質、消毒副生成物前駆物質等)を処理対象として適用されているため、PFAS除去を目的とした場合の運転条件の検討が求められる。例えば、GAC処理は、GACの使用期間が長い生物活性炭処理として運用している場合が多いが、GAC処理によるPFASの除去性は、使用期間が長くなると低下し[39]、GACが破過して除去率が負になる場合もある(図1)[40]。GACの使用期間を短くするとコストも増えるため、その点も含めた条件の検討が必要となる。

PFAS処理後の使用済みのGAC、イオン交換樹脂、RO・ナノろ過膜処理の濃縮廃水にはPFASが含まれているため、それらの焼却等の処理やGACの再賦活化におけるPFASの挙動についての検討も必要である。環境省は、PFOS, PFOA含有廃棄物を分解処理する場合、それらの分解率(99.999%以上)と管理目標(排ガス、廃水、残さ中のPFOSおよびPFOA濃度、排ガス中のフッ化水素濃度)を示し、これらの要件は、燃焼ガスの温度がPFOS含有廃棄物で850℃以上、PFOA含有廃棄物で約1,000℃以上(約1,100℃以上を推奨)で、該当すると考えられると述べている[41]。また、GACの再賦活化については、PFCAは1,000℃、PFSAは800℃以上で脱フッ素化が80～100%(対象物質の分解はそれより低い温度で達成)、GACの表面積の回復は700～1,200℃で60～80%(800℃では80～100%)、マイクロ孔の回復は800～1,200℃

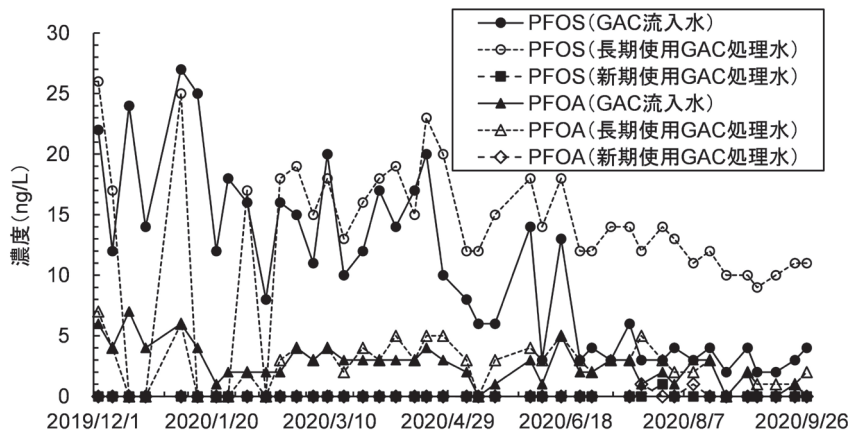


図1 GAC処理によるPFOS, PFOA濃度の推移(対象水はオゾン処理水;長期使用GACは2016年度より使用;長期使用GAC処理水は2019年12月16, 23日, 2020年1月14～27日, 2月20日が, 新規使用GAC処理水は2020年7月7日が未測定)[40]

で80~100%であったと報告されている[42].

III. 農薬類

1. 規制の動向について

水道水質基準において、農薬類は、水質管理目標設定項目に指定されており、各農薬類の検出濃度とその目標値の比の総和（検出指標値）が1を超えないように管理されている[43]. 2023年4月時点、水質管理目標設定項目の対象農薬リスト掲載農薬類として、115農薬類が、その目標値とともに示されている[5]. この数は、2003年の水質基準改正時は101であったが、2010年に102、2013年に120、2018年に118、2019年に114、2022年に115となった[1]（2012年度までは、対象農薬リスト掲載農薬類は第1候補群と呼ばれていた[44]）。なお、2023年4月時点で、農薬類の分類は、対象農薬リスト掲載農薬類以外に、水質基準農薬類（0種、水質基準への分類要件に適合し個別に水質基準を設定する農薬類）、要検討農薬類（15種、積極的に安全性評価及び検出状況に係る知見の収集に努める農薬類）、その他農薬類（86種、測定しても浄水から検出されるおそれが小さく、検討の優先順位が低い農薬類）がある[45]. 対象農薬リスト掲載農薬類以外で、目標値が示されている農薬類が検出さ

れた場合には、対象農薬リスト掲載農薬類と同様に検出指標値の算出に含める。

対象農薬リスト掲載農薬類の見直し以外に、農薬類の目標値、評価方法の見直しも行われている（表1）[1,5]. 後者の例として、一部の農薬類は、代謝物（分解物）の濃度も合計して算出しているが、2022年4月、有機リン系農薬のメチダチオンについて、オキソンの体のコリンエステラーゼ活性阻害等の知見を踏まえて[45]、オキソンの体の濃度も合計して算出することになった（表1）[1,5]. 現在、15種の農薬類について、代謝物（分解物）の濃度も合計して算出しているが、そのうち、11種が有機リン系農薬である[5].

2. 存在実態について

農薬類は、種類が多く、用途により使用時期等が異なる（図2）[46]. 特に、水稻用農薬類は、田植えのあと、降雨後などに検出されやすい傾向がある[47]. このため、測定する農薬類は、その地域で使用されている可能性のある農薬を選択し、確実に検出することができるよう、測定の時期や回数を設定する必要がある[48]. これまでの研究で、原水または浄水で農薬類を測定している水道事業は、全体の52%、原水と浄水の両方で測定しているのは16%であったことが報告されており[48]、測

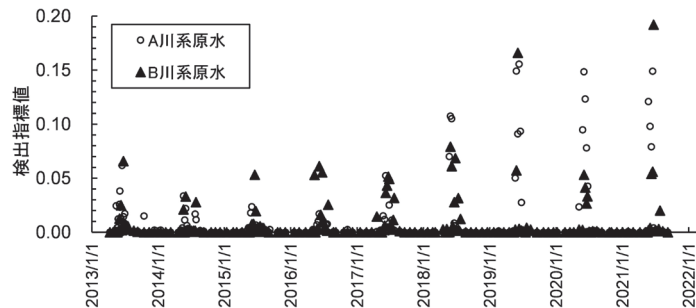


図2 浄水場原水の検出指標値の推移[46]

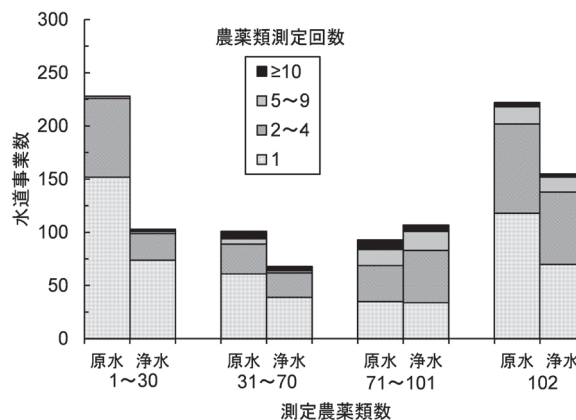


図3 2009年度において原水、浄水で農薬類測定を行っていた水道事業数を測定農薬類数で分類したときの各農薬類測定回数の内訳（第1候補群の農薬類数：102）[48]

定の状況は十分ではないと考えられる。また、測定回数や測定する種類数を調査したところ、全項目を年間1回だけ測っている水道事業が多かったことも報告されており(図3)[48]、測定計画の見直しが望まれるところがあることを示唆している。測定する農薬類の選定方法として、農協等から地域の農薬類の出荷量を入手する等が考えられるが[48]、参考情報として、厚生労働省は、ウェブサイト上で、都道府県別・地域ブロック別の農薬原体出荷量を提供している[47]。また、農薬類の検出結果、出荷量、物性や土地利用等の情報を用いて、表流水中の農薬類の検出可能性を推定する機械学習モデルの開発も行われており[49]、検出可能性の高い農薬類の選定への活用も期待される。

2012～2017年、全国12水道事業体で原水中の農薬類を調査したところ、目標値に対する検出濃度の比が0.1以上での検出率は、テフリトリオン(8.4%)が最も高かった(ただし、テフリトリオンは塩素処理で速やかに分解する)[50]。また、2022年の調査では、イプフェンカルバゾンは、浄水からも検出され、検出指標値に占める割合が高い浄水場もあったことが報告されている[46]。テフリトリオンは2017年に、イプフェンカルバゾンは2022年に対象農薬リスト掲載農薬類に追加された新規の農薬類である。このように、農薬類は種類が多いが、従来からの農薬類だけでなく、新規に追加された農薬類についても情報を収集し、対応していくことが重要であると言える。

IV. ハロ酢酸

1. 規制の動向について

ハロ酢酸は、塩素処理による消毒副生成物の一種である。水道水質基準において、ハロ酢酸のうち、3種の塩素化ハロ酢酸(クロロ酢酸、ジクロロ酢酸、トリクロロ酢酸)は基準項目、6種の臭素化ハロ酢酸は要検討項目に指定されている[5]。ジクロロ酢酸、トリクロロ酢酸は、2015年に基準値が強化されたが(いずれも30g/L)、特に、トリクロロ酢酸はそれまでの値が300g/Lであったため、10分の1まで下げられたことになる[1,5]。その結果、基準値を超過する地点が報告されるようになった[11]。

2. 水質管理について

山間部で緩速ろ過処理を導入していた浄水場では、トリクロロ酢酸濃度が高くなる場合があったため、低減策として、緩速ろ過池にGACを敷き込み、前駆物質を除去することで対応した[51]。また、ダムや湖沼を水源とする一部の浄水場では、ラフィド藻類が発生するとトリクロロ酢酸濃度の原水での生成能や水道水中濃度が上昇することが報告された[52,53]。この対策として、浄水場では、トリクロロ酢酸とジクロロ酢酸の比率を監視し、比率が上昇した場合、処理強化が取られている[52]。これまで、ラフィド藻類由来の前駆物質の構造は明らかとは

なっていないが、親水性が非常に高い高分子の物質であることが推測されている[54]。

要検討項目の臭素化ハロ酢酸のうち、プロモクロロ酢酸とプロモジクロロ酢酸は、目標値案が示されたため(いずれも10g/L)、給水栓水における存在状況を調査したところ、いずれも目標値案の50%を超過する地点があることが示された[8]。原水中の臭化物イオンが、消毒剤である次亜塩素酸と反応して次亜臭素酸となり、次亜臭素酸が原水中の前駆物質と反応することで、臭素化ハロ酢酸を含む臭素化消毒副生成物が生成する[55]。このため、原水中の臭化物イオンが高い地点では、臭素化ハロ酢酸濃度が高い可能性がある。一般的に、同じ消毒副生成物のグループの場合、塩素化消毒副生成物より、臭素化消毒副生成物の方が毒性は高いことが知られている。

一方で、水道水から検出された消毒副生成物は600～700種との報告もあり、測定する消毒副生成物の種類を増やしていくことには限界があるため、水質管理上の工夫も求められる。例えば、一部の消毒副生成物を他の消毒副生成物のマーカーとして活用可能かどうかの検討が行われている[56]。

V. おわりに

水道における最近の話題として、PFAS、農薬類、ハロ酢酸を採り上げ、水質管理の視点から紹介した。これら物質について、分析方法を構築し、存在状況を把握することは重要であるが、浄水プロセスを含めた低減策についての検討も必要である。特に、PFASについては、国内の浄水場で、ほとんどの場合、PFAS以外の項目の除去を目的に適用されているため、PFAS除去のための運転条件について、コストも含めた検討が望まれる。なお、本稿で紹介した内容は、現在進行中のものもあるため、より最新の知見に基づいて更新される可能性がある。

利益相反

利益相反なし

謝辞

本研究の一部は、厚生労働科学研究(22LA1007)において実施した。関係水道事業体の方々には、試料やデータの提供をいただいた。記して謝意を表する。

引用文献

- [1] 厚生労働省. 水道水質基準について. Ministry of Health, Labour and Welfare (MHLW). [Drinking water quality regulation in Japan.] (in Japanese) <https://www.mhlw.go.jp/stf/seisakunitsuite/bunya/topics/bukyoku/kenkou/suido/kijun/index.html> (in Japanese)(ac-

- cessed 2023-06-29)
- [2] 厚生科学審議会. 水質基準の見直し等について. 2003.
Heath Science Council of Japan. [Report of revisions of drinking water quality regulation.] 2003. <https://www.mhlw.go.jp/shingi/2003/04/s0428-7.html> (in Japanese)(accessed 2023-06-29)
- [3] 厚生労働省. 水質基準逐次改正検討会.
MHLW. [Investigative commission of rolling revision of drinking water quality regulation.] <https://www.mhlw.go.jp/stf/seisakunitsuite/bunya/topics/bukyoku/kenkou/suido/kentoukai/kijun.html> (in Japanese)(accessed 2023-06-29)
- [4] 環境省. PFASに対する総合戦略検討専門家会議 (第2回) 議事次第・配付資料. 2023.
Ministry of Environment (MOE). [Agenda and handout of second Expert Meeting of Comprehensive Strategy Review for PFAS.] https://www.env.go.jp/water/pfas/pfas_00002.html (in Japanese)(accessed 2023-06-29)
- [5] 厚生労働省. 水質基準項目と基準値 (51項目).
MHLW. [Items of drinking water quality standards and their standard values (51 Items).] <https://www.mhlw.go.jp/stf/seisakunitsuite/bunya/topics/bukyoku/kenkou/suido/kijun/kijunchi.html> (in Japanese)(accessed 2023-06-29)
- [6] Organisation for Economic Co-operation and Development. Reconciling terminology of the universe of per- and polyfluoroalkyl substances: Recommendations and practical guidance. Series on Risk Management No. 61. 2021.
- [7] World Health Organization. PFOS and PFOA in drinking-water: Background document for development of WHO Guidelines for Drinking-water Quality (Draft, Version for public review). 2022.
- [8] 厚生労働省. 令和4年度第2回水質基準逐次改正検討会. 2023.
MHLW. [The second investigative commission of rolling revision of drinking water quality regulation in FY 2022.] 2023. https://www.mhlw.go.jp/stf/shingi2/0000183130_00013.html (in Japanese)(accessed 2023-06-29)
- [9] United States Environmental Protection Agency (US EPA). Drinking water health advisories for PFOA and PFOS. <https://www.epa.gov/sdwa/drinking-water-health-advisories-pfoa-and-pfos> (accessed 2023-06-29)
- [10] US EPA. Proposed PFAS national primary drinking water regulation. <https://www.epa.gov/sdwa/and-polyfluoroalkyl-substances-pfas> (accessed 2023-06-29)
- [11] 厚生労働省. 令和5年度第1回水質基準逐次改正検討会. 2023.
MHLW. [The first investigative commission of rolling revision of drinking water quality regulation in FY 2023.] 2023. https://www.mhlw.go.jp/stf/shingi2/0000183130_00015.html (in Japanese)(accessed 2023-06-29)
- [12] 環境省. PFOS・PFOAに係る水質の目標値等の専門家会議.
MOE. [Expert meeting of water quality guideline values of PFOS and PFOA] <https://www.env.go.jp/water/pfas/pfos-pfoa.html> (in Japanese)(accessed 2023-06-29)
- [13] 環境省. PFASに対する総合戦略検討専門家会議.
MOE. [Expert Meeting of Comprehensive Strategy Review for PFAS.] <https://www.env.go.jp/water/pfas/pfas.html> (in Japanese)(accessed 2023-06-29)
- [14] 食品安全委員会. 有機フッ素化合物 (PFAS) ワーキンググループ.
Food Safety Commission of Japan. [PFAS Working Group.] <https://www.fsc.go.jp/senmon/sonota/#a8> (in Japanese) (accessed 2023-06-29)
- [15] 環境省. 令和元年度PFOS及びPFOA全国存在状況把握調査の結果について. 2020.
MOE. [Results of national survey of occurrence of PFOS and PFOA in FY 2019.] <https://www.env.go.jp/press/108091.html> (in Japanese)(accessed 2023-06-29)
- [16] 環境省. 令和2年度有機フッ素化合物全国存在状況把握調査の結果について. 2021.
MOE. [Results of national survey of occurrence of PFAS in FY 2020.] <https://www.env.go.jp/press/109708.html> (in Japanese)(accessed 2023-06-29)
- [17] 環境省. 公共用水域水質測定結果.
MOE. [Results of water quality in public water body.] <https://www.env.go.jp/water/suiki/index.html> (in Japanese) (accessed 2023-06-29)
- [18] 厚生労働省. 水道水におけるPFOS及びPFOAの調査結果. 2020.
MHLW. [Survey results of PFOS and PFOA in drinking water.] 2020. <https://www.mhlw.go.jp/content/10900000/000638290.pdf> (in Japanese)(accessed 2023-06-29)
- [19] 厚生労働省. 水道水におけるPFOS等の水質検査の実施状況. 2021.
MHLW. [Implementation status of water examination of PFOS etc. in drinking water.] 2020. <https://www.mhlw.go.jp/content/10900000/000856210.pdf> (in Japanese)(accessed 2023-06-29)
- [20] (公社) 日本水道協会. 令和2年度水道統計水質編. 東京: (公社) 日本水道協会; 2022.
Japan Water Works Association (JWWA). [Water supply statistics (Water quality).] Tokyo: JWWA; 2022. (in Japanese)
- [21] 吉村誠司, 鶴田朋子, 巽有紀子, 服部晋也, 稲田康志, 北本靖子. 淀川水系を取り巻く有機フッ素化合物 (PFCs) の変遷と大阪市の取り組み. Yoshimura S, Tsuruta T, Tatsumi Y, Hattori S, Inada Y, Kitamoto Y. [Change of PFCs in Yodogawa River and countermeasures of Osaka city for PFCs.] <https://www.city.osaka>

- lg.jp/suido/cmsfiles/contents/0000245/245422/280608yodogawasuikei.pdf (in Japanese)(accessed 2023-06-29)
- [22] 大阪府. 大阪府水道水中微量有機物質調査. Osaka Prefectural Government. [Survey of micropollutants in drinking water in Osaka.] <https://www.pref.osaka.lg.jp/kankyoisei/biryoyuki/index.html> (in Japanese)(accessed 2023-06-29)
- [23] 沖縄県企業局. 企業局における有機フッ素化合物の検出状況及び水道水の安全性について. Okinawa Prefectural Enterprise Bureau. [Analytical results of PFOS, PFOA, and PFHxS by Okinawa Prefectural Enterprise Bureau and safety of drinking water.] <https://www.eb.pref.okinawa.jp/oheb/309/619> (in Japanese)(accessed 2023-06-29)
- [24] 環境省, 厚生労働省. PFOS及びPFOAに関する対応の手引き. 2020. MOE, MHLW. [Response guide of PFOS and PFOA.] 2020. (in Japanese)
- [25] Saito N, Sasaki K, Nakatome K, Harada K, Yoshinaga T, Koizumi A. Perfluorooctane sulfonate concentrations in surface water in Japan. *Arch Environ Contam Toxicol*. 2003;45:149-158.
- [26] 村上道夫, 滝沢智. フッ素系界面活性剤の水環境汚染の現状と今後の展望. *水環境学会誌*. 2010;33:103-114. Murakami M, Takizawa S. [Current status and future prospects of pollution in water environments by perfluorinated surfactants] *J Japan Soc. Water Environ*. 2010;33:103-114. (in Japanese)
- [27] 西野貴裕, 加藤みか, 下間志正, 北野大. 東京都内地下水における有機フッ素化合物の汚染実態と土壌浸透実験における挙動の考察. *環境化学*. 2015;25:149-160. Nishino T, Kato M, Shimoma S, Kitano M. [Perfluorinated compounds in the groundwater in Tokyo and their behavior in soils during leaching experiments.] *J Environ Chem*. 2015;25:149-160. (in Japanese)
- [28] Lien NPH, Fujii S, Tanaka S, Nozoe M, Wirojanagud W, Anton A, et al. Perfluorinated substances in tap water of Japan and several countries and the relationship to surface water concentration. *Environ Eng Res*. 2006;43:611-618.
- [29] 服部晋也, 大西勇輔, 宮田雅典. PFOA・PFOS等有機フッ素化合物の淀川水系での実態及び浄水処理性. *水道協会雑誌*. 2008;77:2-11. Hattori S, Onishi Y, Miyata M. [Occurrence of PFAS such as PFOA and PFOS in Yodogawa River basin and their treatability during water treatment processes.] *J JWVA*. 2008;77:2-11. (in Japanese)
- [30] 厚生労働省. 平成21年度未規制物質等の水道における存在実態調査委託報告書. 2009. MHLW. [Commissioned report of occurrence of unregulated chemicals in drinking water in FY 2008.] 2009. (in Japanese)
- [31] 大阪市. 大阪市の水道水における有機フッ素化合物の検出状況について. Osaka city. [Results of PFAS concentrations in drinking water in Osaka.] <https://www.city.osaka.lg.jp/suido/page/0000499786.html> (in Japanese)(accessed 2023-06-29)
- [32] 厚生労働省. 別添4 水質管理目標設定項目の検査方法. 水質基準に関する省令の制定及び水道法施行規則の一部改正等並びに水道水質管理における留意事項について (平成15年10月10日健水発第1010001号 [最終改正令和5年3月24日薬生水発0324第1号]). MHLW. [Appendix 4 inspection methods of complementary items. Ministerial ordinance enactment, partial revision of enforcement regulation of waterworks act, considerations of water quality control (MHLW Notification No. 1010001, October 10, 2003, most recent revision No. 0324-1 March 24, 2023).] <https://www.mhlw.go.jp/content/10900000/001077038.pdf> (in Japanese)(accessed 2023-06-29)
- [33] US EPA. Method 533: Determination of per- and polyfluoroalkyl substances in drinking water by isotope dilution anion exchange solid phase extraction and liquid chromatography/tandem mass spectrometry. 2019.
- [34] US EPA. Perfluoroalkyl and polyfluoroalkyl substances (PFAS) technologies for reducing PFAS in drinking water. https://www.epa.gov/sites/default/files/2019-10/documents/pfas_drinking_water_treatment_technology_options_fact_sheet_04182019.pdf (accessed 2023-06-29)
- [35] Park M, Wu S, Lopez IJ, Chang JY, Karanfil T, Snyder SA. Adsorption of perfluoroalkyl substances (PFAS) in groundwater by granular activated carbons: Roles of hydrophobicity of PFAS and carbon characteristics. *Water Res*. 2020;170:115364.
- [36] 小坂浩司, 吉田伸江, 中沢禎文, 浅見真理, 松井佳彦, 秋葉道宏. 浄水場でのPFASの粒状活性炭, 粉末活性炭による除去特性. 京都大学環境衛生工学研究会第44回シンポジウム: 2022.7.29-30; 京都. *環境衛生工学研究*. 2022;36:18-20. Kosaka K, Yoshida N, Nakazawa Y, Asami M, Matsui Y, Akiba M. [Removal characteristics of PFASs by granular activated carbon and powdered activated carbon processes at drinking water treatment plants.] 44th Symposium of the Assoc. Environ. Sanitary Eng. Res.; 2022.7.29-30; Kyoto. *Environ Sanitary Eng Res*. 2022;36:18-20. (in Japanese)
- [37] Erica Gagliano E, Sgroi M, Falciglia PP, Vagliasindi FGA, Roccaro P. Removal of poly- and perfluoroalkyl substances (PFAS) from water by adsorption: Role of PFAS chain length, effect of organic matter and challenges in adsorbent regeneration. *Water Res*. 2020;171:115381.
- [38] Dixit F, Dutta R, Barbeau B, Berube P, Mohseni M. PFAS

- removal by ion exchange resins: A review. *Chemosphere*. 2021;272:129777.
- [39] Takagi S, Adachi F, Miyano K, Koizumi Y, Tanaka H, Watanabe I, Tanabe S, Kannan K. Fate of perfluorooctanesulfonate and perfluorooctanoate in drinking water treatment processes. *Water Res*. 2011;45:3925-3932.
- [40] 水道事業者から提供されたデータ。 Data provided by a water utility. (in Japanese)
- [41] 環境省. PFOS及びPFOA含有廃棄物の処理に関する技術的留意事項. 2022. MOE. [Technical important notice of waste incineration containing PFOS and PFOA.] 2022. (in Japanese)
- [42] Baghirzade BS, Zhang Y, Reuther JF, Saleh NB, Venkatesan AK, Apul OG. Thermal regeneration of spent granular activated carbon presents an opportunity to break the forever PFAS cycle. *Environ Sci Technol*. 2021;55:5608-5619.
- [43] 厚生労働省. 農薬の考え方について. MHLW. [The way of management of pesticides.] <https://www.mhlw.go.jp/stf/seisakunitsuite/bunya/topics/bukyoku/kenkou/suido/suishitsu/05.html> (in Japanese)(accessed 2023-06-29)
- [44] 厚生労働省. 農薬類の分類見直しについて (健水発0328第4号平成25年3月28日). 2013. MHLW. [Revision of classification of pesticides (Notification No. 0328-4, March 28, 2013).] 2013. <https://www.mhlw.go.jp/topics/bukyoku/kenkou/suido/hourei/jimuren/dl/130328-3.pdf> (in Japanese)(accessed 2023-06-29)
- [45] 厚生労働省. 令和3年度第1回水質基準逐次改正検討会. 2021. MHLW. [The first investigative commission of rolling revision of drinking water quality regulation in FY 2021.] 2021. https://www.mhlw.go.jp/stf/shingi2/0000183130_00008.html (in Japanese)(accessed 2023-06-29)
- [46] 松井佳彦. 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. 令和3年度研究報告書. 2022. Matsui Y. [Comprehensive research for drinking water quality management based on detection status of chemicals etc.] Research report in FY 2021. 2022. (in Japanese)
- [47] 厚生労働省. 都道府県別・地域ブロック別の農薬原体出荷量等について. MHLW. [Shipment volume of pesticide active ingredients by prefecture or regional block.] 2021. https://www.mhlw.go.jp/stf/seisakunitsuite/bunya/topics/bukyoku/kenkou/suido/suisuishi/05_00003.html (in Japanese)(accessed 2023-06-29)
- [48] 小坂浩司, 浅見真理, 佐々木万紀子, 松井佳彦, 秋葉道宏. 水道統計を基にした水道事業者等における農薬類の測定計画の解析. *土木学会論文集G (環境)*. 2013;69(7):III_363-III_374. Kosaka K, Asami M, Sasaki M, Matsui Y, Akiba M. [Analysis of monitoring programs of pesticides at water utilities using statistics on water supply.] *Journal of Japan Society of Civil Engineers, Ser. G (Environmental Research)*. 2013;69(7):III_363-III_374.
- [49] Narita K, Matsui Y, Matsushita T, Shirasaki N. Screening priority pesticides for drinking water quality regulation and monitoring by machine learning: Analysis of factors affecting detectability. *Journal of Environmental Management*. 2023;326(Part A):116738.
- [50] Kamata M, Matsui Y, Asami M. National trends in pesticides in drinking water and water sources in Japan. *Science of the Total Environment*. 2020;744:140930.
- [51] 村尾崇, 小山美喜彦, 中村佳代, 高島弘明, 小林利男, 大曾根猛, 他. 緩速濾過池におけるトリクロロ酢酸生成抑制. *水道協会雑誌*. 2015;84:8-16. Murao T, Koyama M, Nakamura K, Takashima H, Kobayashi T, Osone T, et al. [Formation control of trichloroacetic acid in slow sand filtration process.] *J JWWA*. 2015;84:8-16. (in Japanese)
- [52] 松井佳彦. 平成29年度水道水質の評価及び管理に関する総合研究. 研究報告書. 2018. Matsui Y. [Comprehensive research for evaluation and management of drinking water quality.] Research report in FY 2017. 2018. (in Japanese)
- [53] 横井貴大, 荻野賢治, 細田耕, 船岡英彰, 小倉明生. ラフィド藻類の塩素処理による給水トリクロロ酢酸濃度の上昇及びその原因調査. *水道協会雑誌*. 2021;90:13-20. Yokoi T, Ogino K, Hosoda K, Funaoka H, Ogura A. [Increase of concentrations of trichloroacetic acid by chlorination of raphidophytes and its cause investigation.] *J JWWA*. 2021;90:13-20. (in Japanese)
- [54] Tada Y, Kosaka K, Echigo S, Itoh S. High formation of trichloroacetic acid from high molecular weight and ultra-hydrophilic components in freshwater raphidophytes upon chlorination. *Science of the Total Environment*. 2023;879:163000.
- [55] 伊藤禎彦, 越後信哉. 水の消毒副生成物. 東京: 技報堂出版; 2008. Itoh S, Echigo S. [Disinfection byproducts in water.] Tokyo: Gihodo; 2008. (in Japanese)
- [56] 越後信哉, 奥村夏子, 多田悠人, 小坂浩司, 伊藤禎彦. 国内の水道事業者のデータにおける基準項目と未規制消毒副生成物の関係性. 令和4年度全国会議 (水道研究発表会); 2022.10.19-21; 名古屋. 同講演集. p.656-657. Echigo S, Okumura N, Tada Y, Kosaka K, Itoh S. [Relationship between standard items and unregulated disinfection byproducts in data of water utilities in Japan.] Research Conference of JWJA in FY 2022; 2022.10.19-21; Nagoya. Proceedings. p.656-657. (in Japanese)