

令和 6 年 6 月 14 日現在

機関番号：23201

研究種目：基盤研究(C)（一般）

研究期間：2021～2023

課題番号：21K04320

研究課題名（和文）化学的・微生物学的マーカーを用いたプール水の汚染実態の解明

研究課題名（英文）Investigating pollution dynamics of swimming pool waters by means of chemical and biological markers

研究代表者

黒田 啓介（Kuroda, Keisuke）

富山県立大学・工学部・准教授

研究者番号：30738456

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 3,300,000円

研究成果の概要（和文）：学校やスポーツクラブなどの水浴プールで定期的に採水し、化学的・微生物学的な水質の実態や季節変化を明らかにした。その結果、水浴者の尿や糞便に由来すると考えられる医薬品・人工甘味料、ウイルス類、消毒副生成物が検出され、それらは屋外プールに比べて屋内プールにおいて検出が多い傾向があった。また、プールの水処理、利用者数、利用者の年齢層などが汚染に及ぼす影響を検討した。加えて、大量の試料水から微生物や動物DNAを濃縮する手法や、塩素と光が同時に存在する反応場における医薬品・人工甘味料の濃度減衰速度についても検討した。これらの知見はプール水の汚染の正確な評価や、汚染防止対策の考案に寄与すると考えられる。

研究成果の学術的意義や社会的意義

使用時と非使用時を通して屋外・屋内の様々なプールの水質の実態を明らかにしたこと、化学的な汚染マーカー、微生物学的な汚染マーカー、病原微生物を同時に測定することによってプール水の汚染メカニズムを明らかにしたこと、またプール水のような大量の清澄水を濃縮して各種微生物を検出する方法の検討は高い新規性があり、学術的意義が大きい。加えて、光・塩素存在下における汚染マーカーの減衰を考慮してプール水に混入する水浴者由来の汚染を正確に評価したことは大きな学術的意義があるとともに、プール水の効果的な汚染防止対策立案へ貢献した。これらの結果は逐次プール施設管理者等へフィードバックした。

研究成果の概要（英文）：Water samples were regularly taken at swimming pools in schools and sports clubs to assess chemical and microbiological water quality and seasonal changes. The results showed that pharmaceuticals, artificial sweeteners and viruses which are considered to be derived from the urine and faeces of bathers, and disinfection by-products were detected. These contaminants tended to be detected more frequently in indoor pools than in outdoor pools. The effects of pool water treatment, number of users and age groups of users on contamination were also investigated. In addition, methods for the concentration of microorganisms and animal DNA from large volumes of sample water, and the decay rate of pharmaceuticals and artificial sweeteners in light-chlorine systems were investigated. These findings will contribute to the accurate assessment of pool water contamination and the devising of contamination prevention measures.

研究分野：環境工学

キーワード：医薬品 人工甘味料 汚染マーカー 腸管系ウイルス レジオネラ PMMoV F特異的RNAファージ 八口酢酸

様式 C - 19、F - 19 - 1 (共通)

1. 研究開始当初の背景

学校、公園、スポーツクラブ等のプールは、通常は屋外では夏季のみ、屋内では年間を通して水浴に利用されるが、利用者の糞便による汚染によりプールの水（以下、「プール水」とする）を通じた集団感染が時折発生するほか、人の汗や尿、皮膚に塗られたローション等の混入は有害な消毒副生成物の前駆物質となることが知られている。一方、夏以外の非使用時であっても、プールには施設保護のために水が貯められており、消火用水や非常時生活用水に使用されることがある。プール水の水質は、これまで我が国では主に細菌類やトリハロメタン生成能を対象に調査例が存在するが、20年以上前の調査が多く、各種の病原ウイルスや、医薬品類等の微量汚染物質といった新規汚染物質の知見が存在しなかった。また、屋外プール水の年間の水質変動の知見は極めて限られる。新規汚染物質の一部は、人為汚染のマーカーとなることが知られており、プールにおいては水浴者が排出する汗やし尿のマーカーとして有効と考えられる。

これらのことから、平時・非常時のプール利用の安全確保のためには、病原ウイルスを含む種々の新規汚染物質のプール水における存在実態、感染性の有無、残留性、汚染源について明らかにした上で、それらが施設の条件（屋内・屋外）、利用者の特性（年齢層）、水処理（ろ過+塩素添加）、季節（使用時・非使用時）などの要素によりどのような影響を受けるかを調べ、水質汚染防止に効果的な対策を考える必要がある。

2. 研究の目的

本研究の目的は平時・非常時の両方でプール水の利用者の安全確保を図るため、様々な条件のプールにおいて化学的・微生物学的な水質と汚染の実態を解明することであり、これを達成するため(1) 定期調査によるプール水水質の実態調査、(2) 塩素・光存在下における汚染マーカーの挙動解明、(3) 汚染マーカーを用いたプール水の汚染の解明の3つのサブテーマを設定した。化学物質は汗やし尿のマーカーとなる医薬品類や人工甘味料、消毒副生成物であるハロ酢酸などを測定した。微生物は、病原微生物として腸管系ウイルスやレジオネラ遺伝子に加えて、糞便汚染指標となるウイルス類を測定した。

3. 研究の方法

(1) 定期調査によるプール水水質の実態調査

2021年度から2023年度にわたり、小学校、公園、公営水泳競技場、スポーツクラブなど13施設・21ヶ所のプールで調査し、合計137試料を得た。一部の施設では春・夏・秋・冬と経時的に試料採取した。採取した試料は、各種ウイルスや指標微生物、医薬品類・人工甘味料、ハロ酢酸（消毒副生成物）、エンドトキシン（発熱物質）を含む微生物的・化学的分析に供した。また、調査したプール施設に聞き取りを行い、利用者数やその季節変化・経年変化、利用者の年齢層、プール水の処理方法、補給水量などの情報を得た。これらの結果から、プール使用期間・非使用期間における各種微生物や汚染マーカーの濃度の変動特性、2021年夏のまん延防止等重点措置期間中の濃度変化等を把握した。

(2) 塩素・光存在下における汚染マーカーの挙動解明

医薬品・人工甘味料と塩素を添加した水道水を石英ガラス管に入れ、夏季の屋外や室内プール施設のプールサイドに設置した。経時的に濃度を分析し、塩素・光による分解速度を得た。

(3) 汚染マーカーを用いたプール水の汚染の解明

医薬品類や人工甘味料の検出濃度とプール容積・補給水量、利用人数から、水浴者1人1日あたりの汚染負荷を算出し、年齢層等、プールの情報と比較した。また、化学マーカーと糞便汚染指標微生物や消毒副生成物濃度を比較し、各物質の起源や動態について考察した。

4. 研究成果

(1) 定期調査によるプール水水質の実態調査

使用時の水浴プールでは、ほとんどの施設で塩素・濁度・大腸菌数などの遊泳用プールの衛生基準や水泳プールにかかる学校環境衛生基準を満たしていたが、数ヶ所のプールでは遊離残留塩素が基準値よりも低くなり、大腸菌が検出されていた。また、プール水の水質基準には含まれないが、バクテリアに由来するエンドトキシンが非使用時よりも高濃度の試料が見られた。濁度や大腸菌数、エンドトキシンは非使用期間が続くにつれて増加傾向にあった。

ウイルスについては、F特異的RNAファージやトウガラシ微斑ウイルス（PMMoV）、クロシアセンブリファージ（crAssphage）、*Bacteroides*属菌の遺伝子マーカー（HF183）の検出率が高く、検出率は屋内プールにおいて特に高かった（最大で90%程度）。屋内プールにおける大腸菌やF特異的RNAファージは、2021年夏のまん延防止等重点措置期間において検出率が低下しており、当該期間の利用者の減少を反映したと考えられた。一方、腸管系ウイルスはいずれの試料で

も PCR で検出されなかった。一部の非使用時の屋外プールではレジオネラの遺伝子が検出された。

医薬品類や人工甘味料は、使用時の屋内プールにおいて使用時・非使用時の屋外プールに比べて高い濃度で検出される傾向であった。特に検出頻度が高かったのは DEET、カフェイン、アセスルファミン、スクラロースであった。屋外プールで濃度が低かったのは、光分解や微生物分解、雨水による希釈に加え、定期的な換水・掃除、使用期間の短さ（夏季のみ）等に起因していると考えられた。屋内プールのうち、ジャグジーにおいては、全試料中において最大濃度を検出し、屋内の通常の 25 m サイズのプールと比べて検出濃度に大きなばらつきが見られた。これは、ジャグジーは水量が小さいため、水浴者からの汚染の影響を鋭敏に受けることや、水の入替え頻度が高いことが影響していると考えられた。

使用時プールにおける上記の大腸菌、エンドトキシン、ウイルス、化学マーカーは、水浴者から排出される汗や尿等が原因と考えられた。徹底した水質管理を行っていても、水浴者による汚染が生じた際には、施設の利用状況などによっては病原微生物が完全には不活化せず、プール水に残存しうると考えられた。非使用時の屋外プールでは、水を張ったままにしているため藻類の増殖や、落葉の分解、鳥類の糞便等の自然由来の汚染を受けていると考えられた。非使用時の屋外プールで検出された低濃度の医薬品類や人工甘味料は雨水や鳥の糞が起源として考えられた。

ある屋内プールで一日の朝・昼・夜に調査したところ、カフェインやジクロロフェナク、スルファミンなど日中変動を確認できた。水浴者からの排出による濃度上昇と、光や塩素による分解に伴う濃度減少の両方の影響を受けていると考えられた。ろ過施設前後においては、エンドトキシン濃度は若干の減少が見られたものの、EC、pH、遊離塩素、医薬品類、人工甘味料の濃度は一定であり、これらはろ過によって除去されていないと考えられた。また、プール内の採水場所による濃度の違いは、医薬品類・人工甘味料は場所による濃度差がほぼなかったが、遊離塩素濃度、エンドトキシンは場所ごとで濃度が異なっていることが判明した。これらの違いはプール水中における残存性の違いに起因していると考えられた。

ハロ酢酸類は、主に塩素系のモノクロ酢酸 (MCAA)、ジクロ酢酸 (DCAA)、トリクロ酢酸 (TCAA) が検出され、DCAA はほぼすべてのプールで検出された。屋外プールでは、使用時に比べて非使用時の濃度が小さかったが、非使用時でも MCAA や DCAA が検出されており、使用時に生成したハロ酢酸が非使用期間でも残留している可能性が考えられた。MCAA、DCAA、TCAA のすべてで水道水質基準を超えた試料があり、DCAA の最大値は水道水質基準値の約 19 倍であった。本研究では DCAA が最も高濃度で検出された。

(2) 塩素・光存在下における汚染マーカーの挙動解明

光単独あるいは塩素単独では分解しにくい医薬品類及び人工甘味料は、光（紫外線および可視光）と塩素が同時に存在する光・塩素システムにおいては分解が促進されることが示された。特にカルバマゼピンは、塩素単独による分解の半減期が 3 時間程度に対して模擬太陽光による光・塩素システムの半減期が 10 分程度と、分解が大きく促進された。一方、DEET およびスクラロースは室内灯、模擬太陽光による光・塩素システムでの分解が見られなかった。スクラロースと同様、プール水に混入する尿の指標となるアセスルファミンは、屋内プールサイドでの実験では 50 mg/L の塩素水中の半減期が 13～15 時間程度、室内プール内の光・塩素システムでは半減期 8 時間程度と推定された。実際のプール水においては、塩素濃度 1～2 mg/L と実験条件よりはるかに低いため、半減期は上記よりかなり長いと考えられる。しかしながら、塩素 5 mg/L で行った屋外太陽光実験と 50 mg/L で行った模擬太陽光実験では 10 分間で濃度減少が両者とも 20% 程度と同じであった。このような結果のため、光・塩素システムにおけるアセスルファミンの挙動についてはさらなる検討が必要である。また、屋外環境や模擬太陽光のように紫外線が存在する場合には残留塩素が急速に減少したが、実際のプールでは残留塩素濃度が一定に保たれるため、本実験結果の解釈には留意が必要である。上記の課題はあるものの、アセスルファミンについて光・塩素システムにおける分解を考慮すると、プール水中への尿の真の排出量はプール水中の検出濃度と補給水量から推定される見かけ上の排出量よりも数倍大きい可能性がある。

(3) 汚染マーカーを用いたプール水の汚染の解明

水浴者 1 人 1 日当たりの医薬品類・人工甘味料の排出量は、大人の利用が多いプールのスクラロースの排出量が子どもの利用が多いプールに比べて有意に大きくなった。一つの屋内プールにおける回帰分析の結果、スクラロースは大人による排出が大きかった。一方、同じ人工甘味料であるアセスルファミンは子どもによる排出が大きく、大人は小さかった。人工甘味料の摂取に年齢の違いがあるかは不明であるものの、これらの結果から汚染マーカーの排出量は年齢層により異なる可能性がある。また、皮膚に塗布される DEET をはじめとした 3 物質でジャグジーの方が屋内プールに比べ 1 人 1 日排出量が有意に小さくなった。このように、プールの種類も汚染負荷に影響すると考えられた。

プール水中で高い相関が見られた医薬品類・人工甘味料は DEET、イブプロフェン、アセスルファミン、スクラロースであった。これらは光・塩素システム実験において分解速度が小さかった

物質であった。微生物学的汚染指標については、crAssphage と HF183 の間に高い正の相関があったが、医薬品類・人工甘味料との有意な相関は見られなかった。これは、プール水中の減衰に加えて、医薬品類・人工甘味料が肌塗布または尿中排出が主であるのに対して、微生物指標は糞便に由来する違いが影響している可能性がある。

消毒副生成物の MCAA と DCAA は複数の医薬品類・人工甘味料と有意な正の相関がみられた。特に MCAA では多くの医薬品類・人工甘味料と相関がみられ、人為的汚染によって生成量が増加することが示唆された。DCAA はアセスルファム/カフェイン濃度比、スクラロース/カフェイン濃度比、プールの CT 値と有意な正の相関がみられ、プールの滞留時間と塩素濃度に応じて生成量が増加することが示唆された。DCAA 濃度は溶存有機炭素濃度や結合塩素濃度とも相関があり、結合塩素と DOC の反応によって DCAA が生成される反応経路が関連していると考えられた。また、電気伝導度は MCAA や TCAA と相関がみられ、消毒剤の大量使用や尿の排出との関連が考えられた。このように八口酢酸類の生成には水浴者に由来する人為的汚染が影響するほか、高い塩素濃度や滞留時間も濃度が上昇する要因と考えられた。

これらの知見から、プール水の安全安心対策には、入浴前のシャワーで入念に皮膚の汚れを落とすこと、入浴中のマナーの喚起を行うこと、滞留時間を短縮すること等により人為的汚染を減らすことが有効と考えられた。プールにおける人為的汚染負荷は年齢層やプールの種類により異なる可能性があるため、プールの利用者特性や種類に応じたきめ細かい対策を取ることが重要であると考えられる。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計3件（うち査読付論文 2件 / うち国際共著 1件 / うちオープンアクセス 0件）

1. 著者名 高松 由樹, 石黒 伶奈, 明地 柚乃, 黒田 啓介, 端 昭彦	4. 巻 46
2. 論文標題 利用状況の異なる水浴プールにおける健康関連微生物の存在実態	5. 発行年 2023年
3. 雑誌名 水環境学会誌	6. 最初と最後の頁 113-122
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.2965/jswe.46.113	査読の有無 無
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Kuroda Keisuke, Lu Bing, Hama Yuna, Yang Yu	4. 巻 35
2. 論文標題 Recent progress in photocatalysts for oxidation of As(III) and photocatalyst-impregnated adsorbents for removing aqueous arsenic	5. 発行年 2023年
3. 雑誌名 Current Opinion in Environmental Science & Health	6. 最初と最後の頁 100498-100498
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.coesh.2023.100498	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 該当する

1. 著者名 羽間 悠菜, 黒田 啓介	4. 巻 78
2. 論文標題 グラフィティックカーボンナイトライドを用いた光触媒担持吸着剤の開発と水中有機色素除去への適用	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 土木学会論文集G (環境)	6. 最初と最後の頁 111_441-111_448
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.2208/jscej.78.7_111_441	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

〔学会発表〕 計14件（うち招待講演 1件 / うち国際学会 2件）

1. 発表者名 高松 由樹, 石黒 伶奈, 明地 柚乃, 黒田 啓介, 端 昭彦
2. 発表標題 利用状況や利用者属性に応じたプール水中での化学的・微生物学的汚染指標群の関連
3. 学会等名 第59回環境工学研究フォーラム
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 Keisuke Kuroda, Reina Ishiguro, Rina Kakinoki, Cong Li and Akihiko Hata
2. 発表標題 Occurrence of artificial sweeteners acesulfame and sucralose in swimming pools: evaluating emission from swimmers
3. 学会等名 The 13th International Symposium on Southeast Asian Water Environment (SEAW-13) (国際学会)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 羽間 悠菜, 黒田 啓介
2. 発表標題 グラフィティックカーボンナイトライドを用いた光触媒担持吸着剤の開発と水中有機色素除去への適用
3. 学会等名 第59回環境工学研究フォーラム
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 黒田 啓介
2. 発表標題 地下水利用における水質リスク
3. 学会等名 第25回水環境学会シンポジウム
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 Cong Li, Rina Kakinoki, Masato Yamagishi, Keisuke Kuroda
2. 発表標題 Occurrence and Fate of Selected Pharmaceuticals, Personal Care Products and Artificial Sweeteners in a Wastewater Treatment Plant
3. 学会等名 Water and Environment Technology Conference Online 2021 (国際学会)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 李 聡, 柿木 里菜, 山岸 正都, 木下 絢喜, 黒田 啓介
2. 発表標題 富山県における医薬品類・人工甘味料の下水中存在実態の解明
3. 学会等名 第56回日本水環境学会年会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 石黒 伶奈, 李 聡, 木下 絢喜, 端 昭彦, 黒田 啓介
2. 発表標題 利用者・用途の異なるプールにおける水質特性と医薬品・人工甘味料の分布
3. 学会等名 第56回日本水環境学会年会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 高松 由樹, 石黒 伶奈, 明地 柚乃, 黒田 啓介, 端 昭彦
2. 発表標題 平常時のプール水における微生物学的水質調査
3. 学会等名 第56回日本水環境学会年会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 高松 由樹, 黒田 啓介, 三小田 憲史, 松岡 修太, 端 昭彦, 花本 征也
2. 発表標題 細菌・ウイルス・動物DNA濃縮手法としての中空糸限外ろ過膜法およびシリンジ式精密ろ過膜法の比較
3. 学会等名 第26回日本水環境学会シンポジウム(招待講演)
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 関 明日香, 羽間 悠菜, 黒田 啓介
2. 発表標題 可視光駆動型光触媒による亜ヒ酸の酸化
3. 学会等名 令和5年度日本水環境学会中部支部研究発表会
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 高松 由樹, 黒田 啓介, 松岡 修太, 三小田 憲史, 花本 征也, 端 昭彦
2. 発表標題 水中の動物DNA・細菌・ウイルス濃縮手法としてのUFの利用可能性の追求
3. 学会等名 第58回日本水環境学会年会
4. 発表年 2024年

1. 発表者名 羽間 悠菜, 黒田 啓介
2. 発表標題 水中有機色素除去のための可視光応答型光触媒g-C3N4のドーピングの検討
3. 学会等名 第58回日本水環境学会年会
4. 発表年 2024年

1. 発表者名 LU Bing, 羽間 悠菜, 黒田 啓介
2. 発表標題 Visible Light Photocatalysis Enhances Mineralization of Sulfamethoxazole by Ozonation
3. 学会等名 第58回日本水環境学会年会
4. 発表年 2024年

1. 発表者名 関 明日香, 羽間 悠菜, 黒田 啓介
2. 発表標題 g-C3N4/TiO2ヘテロ接合光触媒を用いた可視光下のヒ素除去
3. 学会等名 第58回日本水環境学会年会
4. 発表年 2024年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

富山県立大学工学部環境・社会基盤工学科 黒田 啓介 https://sites.google.com/view/uwml
--

6. 研究組織

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
研究分担者	端 昭彦 (Hata Akihiko) (70726306)	富山県立大学・工学部・准教授 (23201)	

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関			
中国	北京師範大学			
インド	石油・エネルギー大学			
メキシコ	モンテレイ工科大学			