

金沢大学 大学院 学生員 橋本 徹  
 金沢大学 建設工学科 正員 松井 三郎  
 金沢大学 大学院 学生員 小出 芳久

1. はじめに

塩素処理は、下 wastewater 処理において最も普及している殺菌処理の一つである。塩素による殺菌は、微量にして確実な効果があり、さらに、その残留効果や化学的酸化作用により、鉄、マンガン、アンモニア等の除去にも有効である。しかしその一方、過剰の塩素は人体に対して危険であり、塩素と水中の微量有機物との結合により有機塩素化合物が生成され、その危険性が問われ始めている。

そこで本研究では、従来からの変異原物質検出系のレベルアップを図るとともに、都市下水および同活性汚泥処理水を試料水とし、変異原性という観点から塩素処理に伴う危険性 (安全性) を検討した。

2. 実験方法

1) 前年度に導入された液体 (S-9) Rec-assay・Preincubation 法<sup>1)</sup>は、前培養菌液の希釈に Nutrient broth を用いているため、Preincubation 時における菌は、検定物質による阻害効果と Nutrient broth による増殖効果の両方の作用を同時に受ける。そこで、Preincubation 時における検定物質以外の影響 (増殖, 死滅) をなくするため、前培養菌液を Tris-HCl 緩衝液によって希釈する方法を導入した。この方法を液体 (S-9) Rec-assay・Stationary 法と名付け、本研究の変異原物質検出手法に採用した。

2) 試料の調整方法<sup>2)</sup>については、従来の溶媒抽出法、XAD樹脂吸着法に加え、早津ら<sup>2)</sup>により開発された青綿吸着法についても検討した。XAD樹脂吸着法については、XAD-2樹脂を使用した。青綿吸着法は、青色色素 Cu-phytalocyanine 誘導体を固着した綿を試料水中に吊りし吸着濃縮する方法であり、多環性変異原物質を特異的に吸着する特徴を有する。

3. 変異原性の評価方法

得られた実験データから、probit 理論および標的論を適用して、変異原性指標である Rec<sup>+</sup>, Rec<sup>-</sup> の 50% 致死濃縮倍率比 R50, アロビット間面積 S-probit, 修復可能生存率 RS の値を算出した。これらの値が大きいほど変異原性は強く、変異原性の有無の判断基準として、変異原性陰性対照物質である Kanamycin のそれぞれの値を表-1に示した。

表-1 変異原性陰性対照物質 Kanamycin の R50, S-probit, および RS

	R50	S-probit	RS (%)
Stationary	1.45	0.323	18.0

表-2 液体 (S-9) Rec-assay・Stationary 法を適用した XAD樹脂吸着法による初沈懸流水濃縮サンプルの解析結果

表-2 液体 (S-9) Rec-assay・Stationary 法を適用した XAD樹脂吸着法による初沈懸流水濃縮サンプルの解析結果

Sample	pH	S-9mix	R50 = C50Rec <sup>+</sup> / C50Rec <sup>-</sup>	S-probit	RS (%)
塩素処理前	2.0	-	1.56 = 1.28 / 8.21 × 10 <sup>-1</sup>	—	—
		+	—	変異原性判定不可能	—
	7.09	-	1.23 = 6.08 / 4.94	0.180	24.6
		+	—	変異原性判定不可能	—
	12.0	-	1.17 = 1.32 / 1.15	0.138	12.5
		+	—	変異原性判定不可能	—
塩素処理後	2.0	-	0.99 = 3.86 / 3.92	-0.013	4.8
		+	—	変異原性判定不可能	—
	7.09	-	1.00 = 2.22 × 10 / 2.22 × 10	-0.002	-36.8
		+	—	変異原性判定不可能	—
	12.0	-	1.73 = 1.45 × 10 / 8.40	0.477	26.0
		+	—	変異原性判定不可能	—

4. 実験結果および考察

溶媒抽出法, XAD樹脂吸着法共に、変異原性の傾向が等しいことより、XAD樹脂吸着法による検水サンプルの解析結果を表-2, 表-3に示す。さらに、青綿吸着法では、塩素処理前の検水サンプルに十分な致死効果が得られなかったため、塩素処理後

a) 十分な致死効果が得られず、変異原性指標の算出が不可能であったものに「—」を記入した。  
 b) 変異原性傾向有り：変異原性指標の算出は不可能だが、同一体積濃縮倍率で Rec<sup>+</sup>, Rec<sup>-</sup> の生存率に差が認められるもの。

の検水サンプルの解析結果を表-4に示す。

表-3 液体 (S-9) Rec-assay Stationary法を適用したXAD樹脂吸着法による終沈越流水濃縮サンプルの解析結果

1) 溶媒抽出法, XAD樹脂吸着法: 表-2より, 初沈越流水では塩素処理前後において変異原性の変化の傾向が認められないが, 表-3では, 終沈越流水の塩素処理前後には, きりとした変異原性増加傾向が認められる。これには, 試料水中に溶存する微量有機物と塩素との結合による有機塩素化合物の生成が関与していると考えられる。尚, pH分画別では顕著な傾向はなく, 間接変異原性については, 十分な致死効果が得られなかった。

Sample	pH	S-9mix	R50 = C50Rec <sup>+</sup> / C50Rec <sup>-</sup>	S-probit	RS (%)
塩素処理前	2.0	-	1.25 = 1.85×10 / 1.49×10	0.192	-2.5
		+	変異原性判定不可能	—	—
	7.05	-	1.24 = 3.47×10 / 2.79×10	0.188	13.0
		+	変異原性判定不可能	—	—
	12.0	-	2.14 = 4.73×10 / 2.21×10	0.661	46.8
		+	変異原性判定不可能	—	—
塩素処理後	2.0	-	1.59 = 3.69×10 / 2.33×10	0.401	36.1
		+	変異原性傾向有り	—	—
	7.05	-	1.97 = 3.89×10 / 1.97×10	0.590	49.0
		+	変異原性判定不可能	—	—
	12.0	-	8.78 = 2.52×10 / 2.87	1.887	63.0
		+	変異原性傾向有り	—	—

2) 青綿吸着法: 表-4より, 溶媒抽出法, XAD樹脂吸着法とは逆に, 初沈越流水の方に

表-4 液体 (S-9) Rec-assay Stationary法を適用した青綿吸着法による濃縮サンプルの解析結果 (塩素処理後)

変異原性が確認できる。このことは, 青綿吸着法が多環性変異原物質を選択的に吸着することを考慮すると, 初沈越流水には多環性変異原物質が多く存在し, 活性汚泥処理を施した終沈越流水には非多環性変異原物質が多く存在すると考えられる。さらに, 間接変異原性については, 直接変異原性の検討に必要な体積濃縮倍率より若干高いが, ほぼ等しい倍率で検討が可能であり, 大部分が「変異原性傾向有り」である。これは, 青綿が選択的に吸着する多環性変異原物質の多くは, Benzo(a)pyreneに代表されるように間接変異原性を有することを示唆している。尚, pH分画別においては, 変異原性の顕著な傾向が認められなかった。

Sample	pH	S-9mix	R50 = C50Rec <sup>+</sup> / C50Rec <sup>-</sup>	S-probit	RS (%)
初沈越流水	2.0	-	3.05 = 3.43×10 / 1.12×10	0.970	31.3
		+	1.97 = 5.55×10 / 2.81×10	—	—
	7.37	-	1.79 = 3.57×10 / 1.99×10	0.508	27.6
		+	変異原性傾向有り	—	—
	12.0	-	1.74 = 3.86×10 / 2.22×10	0.480	14.3
		+	変異原性傾向有り	—	—
終沈越流水	2.0	-	1.31 = 4.33×10 / 3.30×10	0.236	-19.5
		+	変異原性傾向有り	—	—
	6.81	-	1.23 = 5.14×10 / 4.17×10	0.176	16.6
		+	変異原性傾向有り	—	—
	12.0	-	1.30 = 5.15×10 / 3.97×10	0.228	4.3
		+	変異原性傾向有り	—	—

3) 全有機塩素化合物濃度との相関性: 検水サンプルの全有機塩素化合物濃度と変異原性指標 (R50, S-probit, RS) との相関性は得られなかった。

図-1に修復可能生存率 (RS) と全有機塩素化合物濃度 (TOX) の相関図を示す。相関性が得られなかった理由として, 以下のことが考えられる。

1. 全ての有機塩素化合物が変異原性を有するわけではない。
2. 変異原性を有する有機塩素化合物の強度が一定でない
3. 都市下水中には, 有機塩素化合物以外の変異原物質が存在する

最後に, 国立公衆衛生所真柄泰基先生, 相沢貴子先生には, TOX 測定ならびに御指導頂き感謝します。また, 金沢大学癌研究所吉川寛教授, 飯田克平助教授, 日本車輛佐々木淳君に感謝します。

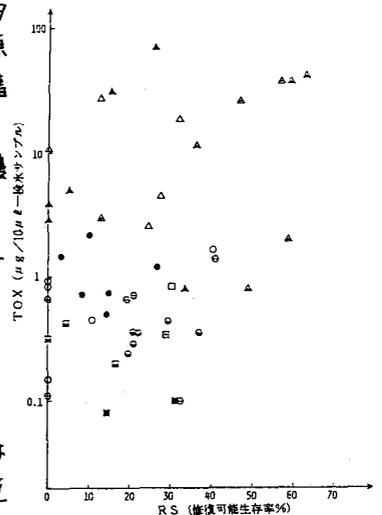


図-1 RSとTOXの相関

<参考文献> 1) 松井, 徳川, 小出, 高島: 枯草菌のRec-assayによる水環境変異原物質の検出と評価, 土木学会概要集(1982). 2) 岡山大学, 早津秀哉, 小林若, 林泰賢, 篠田純男: 環境の変異原性を測定するための新方法「青綿吸着法」とその利用. 河水, 海水の変異原性. 第9回環境汚染物質とものトキシコロジーシンポジウム概要集(1982).