

# 消毒下水処理水中の残留毒性物質がスサビノリ殻胞子の生育に及ぼす影響

大分高専 正会員○高見 徹 宮崎大学工学部 正会員 丸山俊朗  
青森大学工学部 三浦昭雄

## 1. はじめに

わが国の都市下水の消毒には一般に遊離塩素による塩素消毒法が採用されている。遊離塩素は下水処理水中のアンモニアと反応し、モノクロラミン ( $\text{NH}_2\text{Cl}$ ) を生成する。 $\text{NH}_2\text{Cl}$  は多くの水生生物に対して強い毒性を示す<sup>1)</sup>。都市下水処理場は沿岸域に立地している場合が多く、沿岸生物やわが国で広く養殖されているノリ（海苔）に対する影響が危惧される。現在、米国では塩素代替消毒剤として二酸化塩素 ( $\text{ClO}_2$ ) を用いた消毒法が広く採用されている。しかし、 $\text{ClO}_2$  は  $\text{NH}_2\text{Cl}$  を生成しないものの水中で分解し、亜塩素酸イオン ( $\text{ClO}_2^-$ ) と塩素酸イオン ( $\text{ClO}_3^-$ ) が残留する。他方で、 $\text{ClO}_2$  は紙パルプの塩素代替漂白剤としても用いられており、バルト海では1980年代に製紙工場からの漂白排水中の  $\text{ClO}_3^-$  が海藻（褐藻）群落に影響を及ぼしたことが報告されている<sup>2)</sup>。そこで本研究では、紅藻スサビノリ (*Porphyra yezoensis* Ueda U-511 株、図1<sup>3)</sup> の殻胞子を供試生物として、塩素消毒および二酸化塩素消毒下水処理水中の主要な毒性物質である  $\text{NH}_2\text{Cl}$  と  $\text{ClO}_3^-$  の毒性を評価することを目的とした。

## 2. 材料と方法

殻胞子は大分高専土木工学科の実験室内で保存培養しているスサビノリの貝殻糸状体から 1/20PES 培地 (N, P 濃度 : 0.46mg N/l, 0.06mg P/l) 中に放出させたものを用いた。毒性試験では、約 100 個体の殻胞子をカバーガラス (10mm × 10mm) に着生させたものを供試体とした。 $\text{NH}_2\text{Cl}$  は塩化アンモニウムと次亜塩素酸ナトリウム溶液を混合して生成させ、ジエチルエーテルを用いて抽出・精製したものを用いた<sup>4)</sup>。 $\text{ClO}_3^-$  には塩素酸ナトリウム（和光純薬社製）を用いた。1/20PES 培地に所定の濃度（8 濃度区、それぞれ n=3）になるように  $\text{NH}_2\text{Cl}$  または  $\text{ClO}_3^-$  を添加したものを試験培地（塩分 30）とした。試験方法は、試験培地を注入した組織培養用マイクロプレート (Corning 社製、24 ウェル) に供試体を暴露した。暴露開始から 4 日後まで 24 時間毎に倒立顕微鏡 (Nikon 社製、TMS-F) を用いてカバーガラス上を観察し、それぞれの濃度区における殻胞子の生残率と発芽率を求めた。 $\text{NH}_2\text{Cl}$  または  $\text{ClO}_3^-$  濃度と発芽率の関係から、Dunnett の多重比較法<sup>5)</sup> に従って所定の暴露時間における  $\text{NH}_2\text{Cl}$  または  $\text{ClO}_3^-$  の最小影響濃度 (Lowest-Observed-Effect Concentration: LOEC) を求めた。

キーワード：消毒副生成物、モノクロラミン、塩素酸イオン、毒性評価、海藻

連絡先：大分工業高等専門学校土木工学科（大分市大字牧  
1666 番地・電話 097-552-7596・FAX 097-552-7949）

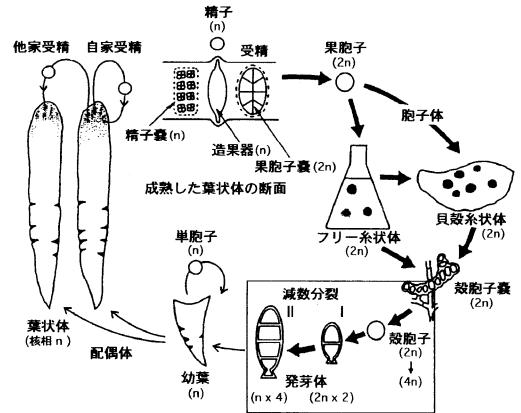


図1 スサビノリの生活環<sup>3)</sup>

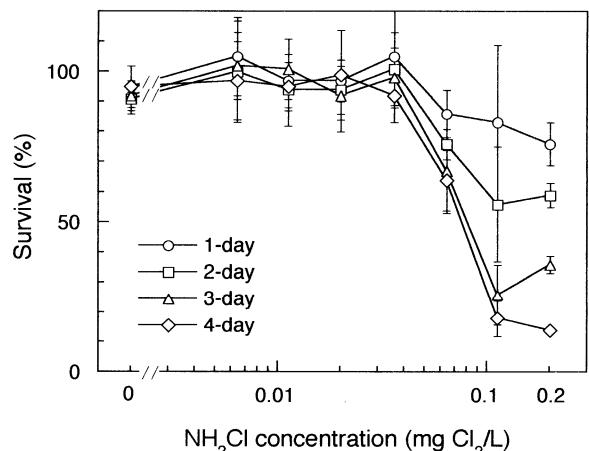


図2 生残率に対する  $\text{NH}_2\text{Cl}$  の影響 (n=3)

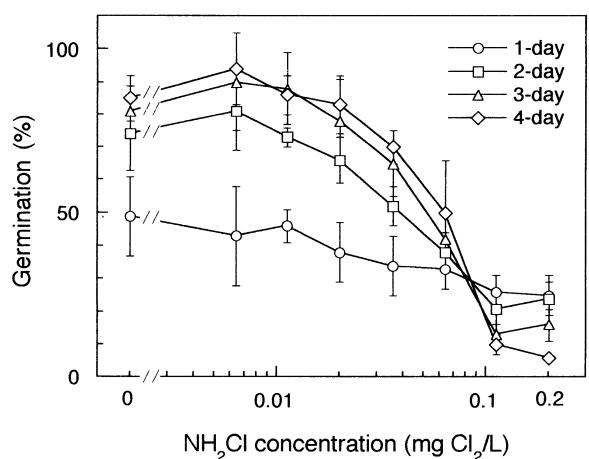


図3 発芽率に対する  $\text{NH}_2\text{Cl}$  の影響 (n=3)

### 3. 結果と考察

#### 3.1 NH<sub>2</sub>Clの毒性

NH<sub>2</sub>Cl濃度と所定時間における殻胞子の生残率の関係を図2に示す。図2より、対照区(0mg Cl<sub>2</sub>/l)の生残率は暴露開始から4日後に至るまで約90%以上のほぼ一定の値であった。しかし、NH<sub>2</sub>Cl濃度0.064mg Cl<sub>2</sub>/l以上の生残率は、時間の経過とともに急激に低下した。この結果、4日間の暴露試験における生残率に対するNH<sub>2</sub>ClのLOECは4日後に最小となり、その値は0.064mg Cl<sub>2</sub>/lとなった。また、NH<sub>2</sub>Cl濃度と所定時間における発芽率の関係を図3に示す。図3より、対照区(0mg Cl<sub>2</sub>/l)の発芽率は時間の経過とともに次第に上昇した。しかし、暴露開始から1日後ではNH<sub>2</sub>Cl濃度0.112mg Cl<sub>2</sub>/l以上、2日後では0.036mg Cl<sub>2</sub>/l以上、3日後以降では0.064mg Cl<sub>2</sub>/l以上の発芽率は対照区と比較して有意に低下した( $p < 0.05$ )。この結果、殻胞子の発芽率に対するNH<sub>2</sub>ClのLOECの最小値は0.036mg Cl<sub>2</sub>/l(2日後)が得られた。ここで、3日以後のLOEC値が2日後のLOEC値よりも大きくなかったのは、試験培地中のNH<sub>2</sub>Clが殻胞子によって消費されたことや、海水中の臭素イオンと反応することによって毒性の低い物質に変化したことが原因と考えられる。下水処理場から放流される塩素消毒処理水中のNH<sub>2</sub>Cl濃度はおよそ0.5~0.7mg Cl<sub>2</sub>/lであることが報告されている<sup>6)</sup>。この値は本研究で得られた殻胞子の生残率と発芽率に対するLOEC値の約10~20倍であることから、塩素消毒処理水中のNH<sub>2</sub>Clはスサビノリ殻胞子に対する毒性が強いといえる。

#### 3.2 ClO<sub>3</sub><sup>-</sup>の影響

ClO<sub>3</sub><sup>-</sup>濃度と所定時間における生残率の関係を図4に示す。図4より、対照区(0mg/l)およびClO<sub>3</sub><sup>-</sup>濃度0.1~100mg/lのすべての濃度区における生残率は、暴露開始から4日後に至るまでほぼ一定となり、ClO<sub>3</sub><sup>-</sup>の影響は認められなかった(LOEC > 100mg/l)。また、ClO<sub>3</sub><sup>-</sup>濃度と所定時間における発芽率の関係(図5)より、ClO<sub>3</sub><sup>-</sup>濃度0.1~100mg/lの発芽率は対照区と比較して有意差は認められず( $p > 0.05$ )、LOECは>100mg/lとなった。消毒処理水中の二酸化塩素の残留量はClO<sub>2</sub><sup>-</sup>とClO<sub>3</sub><sup>-</sup>を含めて1mg/l程度が適当とされる<sup>7)</sup>。この値は本研究で得られたClO<sub>3</sub><sup>-</sup>のLOEC値の1/100以下であることから、二酸化塩素消毒処理水中のClO<sub>3</sub><sup>-</sup>はスサビノリ殻胞子に対する毒性は極めて弱い。ただし、ClO<sub>3</sub><sup>-</sup>は褐藻類に対する被害が報告されていることから<sup>2)</sup>、他の海藻種や、長期間暴露、貧栄養等の様々な条件下でのClO<sub>3</sub><sup>-</sup>の毒性について十分に検討する必要がある。

### 4. まとめ

本研究の結果、以下の知見を得た。(1) 塩素消毒下水処理水中の主要な毒性物質であるNH<sub>2</sub>Clは、紅藻スサビノリ殻胞子の生育に対して強い毒性を示した。4日間の暴露試験において、スサビノリ殻胞子の生残率と発芽率に対するNH<sub>2</sub>ClのLOECの最小値は、それぞれ0.064mg Cl<sub>2</sub>/l(4日後)と0.036mg Cl<sub>2</sub>/l(2日後)であった。(2) 二酸化塩素消毒処理水中の残留物質であるClO<sub>3</sub><sup>-</sup>は、0.1~100mg/lの濃度範囲においてはスサビノリ殻胞子の生残と発芽を阻害しなかった(LOEC > 100mg/l)。

今後の課題として、(1)長期間暴露や栄養塩濃度を低下させた条件下でのNH<sub>2</sub>ClとClO<sub>3</sub><sup>-</sup>の毒性を評価する、(2)ClO<sub>3</sub><sup>-</sup>の被害が報告されている褐藻類に対する影響を検討する、ならびに(3)ClO<sub>2</sub><sup>-</sup>のもう一つの分解産物であるClO<sub>2</sub><sup>-</sup>の毒性を評価する等の検討が必要であると考える。

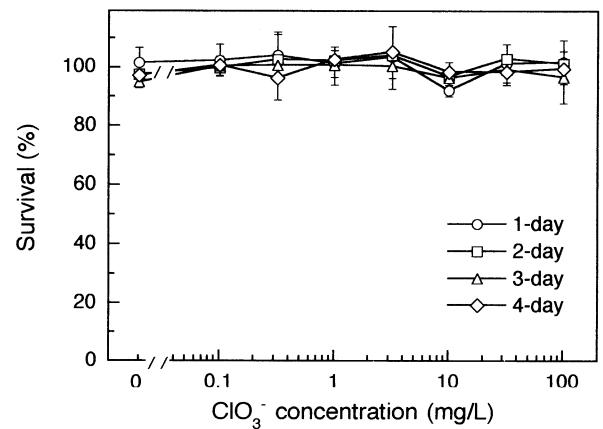


図4 ClO<sub>3</sub><sup>-</sup>濃度と生残率の関係 (n=3)

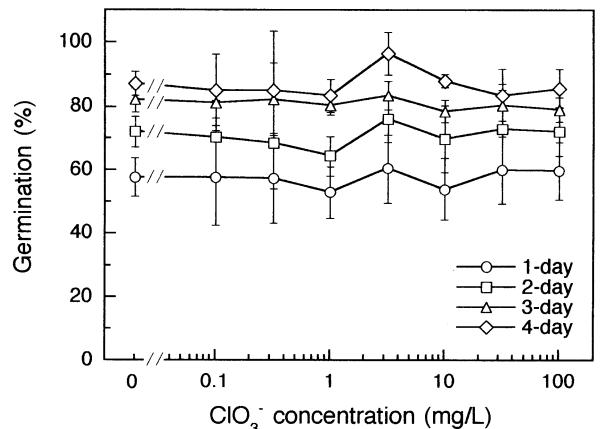


図5 ClO<sub>3</sub><sup>-</sup>濃度と発芽率の関係 (n=3)

- 参考文献 1) Wolfe, R.L., et al. (1997) *Jurnal AWWA*, 76, pp.74-88. 2) Rosemarin, A. et al. (1994) *Environmental Pollution*, 85, pp.3-13. 3) 三浦昭雄 (1992) 食用海藻の栽培 (三浦昭雄編著), p.11, 恒星社厚生閣, 東京. 4) Bousher, A. et al. (1989) *Water Research*, 23, pp.1049-1058. 5) U.S.EPA (1988) EPA-600/4-87/028, pp.319-417. 6) 鈴木祥広ら (1996) 下水道協会誌論文集, 33 (407), pp.93-103. 7) 金子光美 (1996) 水質衛生物学, p.323, 技報堂出版, 東京.