

## B-38 信濃川下流域における水道原水の変異原性生成能と水道水の変異原性との関係について

○奥田絵美\*, 古関健一\*, 小松俊哉\*\*, 姫野修司\*\*, 藤田昌一\*\*

## 1. はじめに

水道水は一般に変異原性を示すことが知られている。水道水が変異原性を示す主な原因は、原水中の変異原前駆物質からの塩素消毒による変異原物質の生成である。そのため、塩素を添加した水試料の変異原性を測定する変異原性生成能 (Mutagen formation potential: MFP)<sup>1)</sup> が原水の有効な指標となっている。さらに水道水の変異原性は浄水プロセスにも左右されることから、MFP と浄水プロセスを併せて評価することが変異原性を低減化させるために重要であると考えられる。

われわれは 2002 年の 1 年間、Ames 変異原性試験により信濃川下流域 6 地点における水道原水の MFP と水道水の変異原性について調査を行い、MFP の有用性を確認した<sup>2)</sup>。しかし、浄水プロセスとの関連の検討は不十分であった。そこで今回は、水道水の変異原性に及ぼす塩素添加位置の影響を検討した。さらに、中塩素処理を想定し、原水に浄水方法として一般的な凝集沈殿処理を施した後の MFP を測定し、MFP 低減化の程度を調べた。

## 2. 実験方法

## 2.1 試料水と採水地点および浄水プロセスについて

図 1 に示す信濃川における A~C の 3 地点において 2003 年 3 月から 2004 年 2 月までの 12 ヶ月間毎月一回平日の日中に水道水と原水の採水を行った。浄水プロセスは一般的に多く行われている凝集沈殿+急速ろ過方式である。また、塩素注入位置は、A 地点が中塩素、B 地点が前塩素、C 地点は 6~10 月が中・後塩素 (中塩素中心)、11~5 月が前・中・後塩素 (前塩素中心) である。

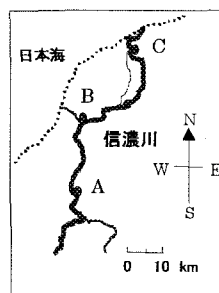


図1 採水地点

## 2.2 凝集沈殿処理方法

原水に対して 3 ヶ月に一度 (4, 7, 10, 1 月) 凝集操作にはジャーテスターを用い、凝集剤にはポリ塩化アルミニウム (PAC) を使用した。手順は、原水 2 L を定容し、PAC を原水に対し 15 mg/L となるように加え、その後直ちに急速攪拌 (160 rpm) を 1 分間、緩速攪拌を (60 rpm) 20 分間行った後、10 分間静置し、形成したフロックを沈降させ、その上澄液を保持孔径 1  $\mu$ m のガラス繊維ろ紙を用いて吸引ろ過を施し、ろ液を試料水とした。

## 2.3 水質の測定

水道水の変異原性、および原水 MFP との相関等を検討するため、いくつかの水質項目を測定した。主な測定項目は、DOC、E<sub>260</sub>、アンモニア性窒素 (NH<sub>4</sub><sup>+</sup>-N)、亜硝酸性窒素 (NO<sub>2</sub><sup>-</sup>-N)、硝酸性窒素 (NO<sub>3</sub><sup>-</sup>-N) である。

## 2.4 塩素処理方法

MFP 測定のための原水 (または凝集沈殿処理水) の塩素処理方法は、既報<sup>2)</sup>と同様に DOC、NH<sub>4</sub><sup>+</sup>-N 濃度に基づき NaClO を添加し、24 時間反応させた。

\*長岡技術科学大学大学院修士課程 環境システム工学専攻

\*\* 長岡技術科学大学 環境・建設系

## 2.5 変異原性物質の濃縮方法

濃縮には吸着脱離法を採用し、固相カラムの充填剤として Sep-Pak Plus PS-2 (Waters) を用いた。濃縮処理は、既報<sup>9)</sup> に準じて行い、ジメチルスルホキシド (DMSO) に 1000 倍濃縮し、Ames 変異原性試験用の試料とした。

## 2.6 Ames 変異原性試験

Ames 変異原性試験方法は旧労働省が発行したガイドブックに準じて行った。通常は代表的な変異株である *Salmonella typhimurium* TA100 株を用い、37℃、20 分間プレインキュベーション法により行い、代謝活性剤を加えない (−S9) 条件について検討した。変異原性の強度は正味の復帰コロニー数 (net rev./L) および MR 値 (陰性対照との比) で評価した。

## 3. 実験結果および考察

### 3.1 水道原水の MFP

信濃川の原水の MFP の試験結果を表 1 に示す。すべてのサンプルで検出限界未満 (N.D.) はなく、36 検体中 30 検体が陽性であった。その平均強度は 1,460 net rev./L であった。しかし、地点による差異は昨年度と同様に下流へ行くほど高い値を示した。また、昨年度認められた冬期に高いといった季節変動は今年度は見られなかった。

表1 信濃川原水 MFP結果 ( net rev./L )

| Point | 2003.3 | 4    | 5    | 6    | 7    | 8    | 9    | 10   | 11   | 12   | 2004.1 | 2    | mean |
|-------|--------|------|------|------|------|------|------|------|------|------|--------|------|------|
| A     | 940    | 1320 | 940  | 1150 | 1280 | 2040 | 2130 | 1400 | 1440 | 1440 | 820    | 1110 | 1340 |
| B     | 1210   | 1080 | 880  | 1590 | 1250 | 2250 | 1530 | 1330 | 1430 | 1560 | 1040   | 1110 | 1400 |
| C     | 1290   | 1240 | 1530 | 1820 | 2130 | 1770 | 1450 | 2010 | 1320 | 1860 | 1730   | 1220 | 1650 |

1.4 ≤ MR 値 < 2.0 : 擬陽性 2.0 ≤ MR 値 : 陽性

### 3.2 水質項目との相関性

測定した MFP と水質項目との相関性を図 2 に示す。昨年と同様、DOC および無機態窒素とはいずれも相関性が低かったが、 $E_{260}$  との間に相関性が認められた。すなわち、MFP は他の項目よりも原水中の不飽和結合を持つ有機物との関係が深いことが示唆された。

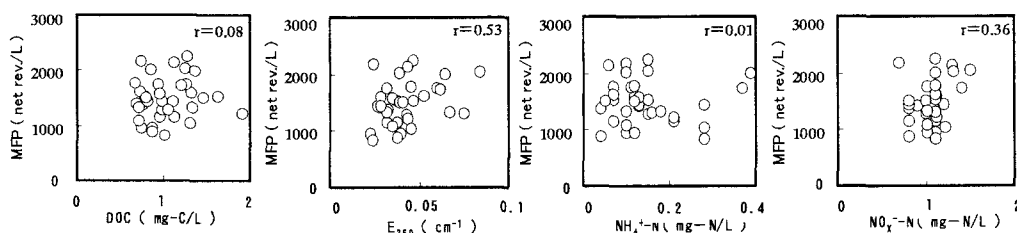


図2 信濃川流域における原水水質項目とMFPとの相関性

### 3.3 凝集沈澱処理の効果

原水に凝集沈澱処理を施した処理水の MFP の試験結果を図 3 に示す。両者には相関性が認められ、また凝集後の MFP 除去率の平均値は 40% となり、MFP の低減化に凝集沈澱処理の効果が高いことが分かった。以上から信濃川流域では凝集によって除去される変異原性物質が多く存在すると考えられる。従って、信濃川流域では前塩素処理ではなく、凝集を行った後に塩素を添加する中・後塩素処理にすることによって、水道水の変異原性を大きく低減化できる可能性が示唆された。

### 3.4 水道水の変異原性

一般に塩素処理を施した試料水では TA100-S9 条件、すなわち塩基対置換型の直接変異原物質が多く生成

することが分かっている。

本研究でも従来の試験条件が適しているかどうかを TA98±S9, TA100±S9 の 4 条件において検討した結果、従来の TA100-S9 条件がもっとも感度が高いことが確認された。

また、信濃川の水道水の変異原性の結果を表 2 に示す。水道水における変異原性強度は全サンプルにおいて N.D. ではなく 36 検体中 25 検体が陽性だった。さらに、水道水の変異原性強度と DOC の間には MFP と同様、有意な相関は認められなかった。

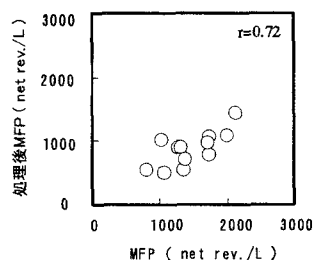


図3 原水MFPと凝集沈殿処理のMFPの関係

表2 信濃川流域の水道水の変異原性 ( net rev./L )

| Point | 2003.3 | 4    | 5    | 6    | 7    | 8    | 9    | 10   | 11   | 12   | 2004.1 | 2    | Mean |
|-------|--------|------|------|------|------|------|------|------|------|------|--------|------|------|
| A     | 1070   | 650  | 750  | 1050 | 880  | 1550 | 1150 | 980  | 970  | 700  | 1010   | 790  | 970  |
| B     | 1010   | 1240 | 1060 | 1390 | 1150 | 1660 | 1200 | 1090 | 1110 | 980  | 1390   | 1230 | 1210 |
| C     | 1100   | 1200 | 1430 | 870  | 1210 | 1230 | 1080 | 920  | 1570 | 1520 | 1620   | 1060 | 1240 |

### 3.5 MFP と水道水変異原性との相関性

変異原性を生成させる要因である塩素注入位置の違いによる原水 MFP と水道水の変異原性強度の関係を整理して図 4 に示す。前塩素処理を行っている場合では、原水 MFP と水道水の変異原性強度の差が小さく (MFP 低減率: 平均 13%), 一方行っていない場合 (中塩素処理) は原水 MFP と比べて十分低減化されている (MFP 低減率: 平均 34%) ことが分かった。これは中塩素処理を想定した凝集沈殿処理の結果とも一致し、前塩素処理を行わないことが水道水の変異原性の低減化に効果的であると考えられる。

1.4 ≤ MR 値 < 2.0 : 擬陽性 2.0 ≤ MR 値 : 陽性

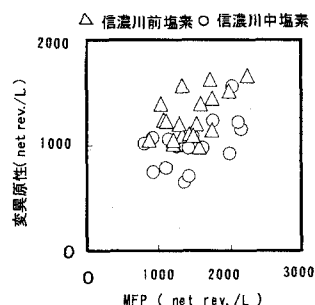


図4 信濃川流域におけるMFPと水道水変異原性との相関性

## 4. 結論

- 1) 水道原水の MFP 平均値は、1,460 (net rev./L) であった。
- 2) E<sub>260</sub> と原水 MFP との間に相関関係が認められた。
- 3) 原水に対する凝集沈殿処理は効果があり、MFP の平均低減率は 40% であった。
- 4) 水道水の変異原性は前塩素処理を行っている場合では原水 MFP との差が小さかったが (低減率平均 13%), 行っていない場合は十分低減されていた (低減率: 平均 34%)
- 5) 通常の凝集沈殿+急速ろ過のプロセスでは、前塩素処理を行わないことが変異原性を低減化する上で効果的と考えられ、これは凝集沈殿処理の結果とも一致した。

## 参考文献

- 1) Takanashi, H., Urano, K., Hirata, M., Hano, T. and Ohgaki, S.: Method for measuring mutagen foemation potencial(MFP) on chlorination as a new water quality index, .: WaterResearch, 35, 1627-1634(2001)
- 2) 小松俊哉, 三田美紀, 姫野修司, 藤田昌一: Ames 変異原性試験による信濃川下流域の水道原水および水道水の安全性評価, 環境化学, 14, 49-56 (2004)
- 3) 浦野紘平, 高梨啓和, 五十嵐勲: 水試料の Ames 変異原性試験マニュアル (I), 用水と廃水, 39, 342-349 (1997)