

道路排水の土壌カラム通水試験による変異原性生成能の除去能評価

廃棄物・有害物管理工学研究室 金山麻里香

指導教員 小松俊哉 姫野修司

1 はじめに

現在、日本の水道水源の約 7 割は地表水に依存している。そのため、生活排水、工業排水などによる水環境の悪化、今後予想される都市域の水道需要増加に対して地表水だけでは補えなくなるなどの問題を抱えている。そこで、安定した持続可能な水資源の確保、健全な水循環や水域生態系保全の観点から雨水・地下水利用や排水再利用、涵養地下水を利用した都市域自己水源活用が注目されている¹⁾。

水利用を想定した時点でその水質が問題となるが、現在は多くの化学物質が混入しているため、それらの種類および濃度について個別に把握することは非常に困難である。そこで、本研究ではバイオアッセイのひとつである Ames 試験を用いて複合的な毒性を示す物質群の総括的評価を行い、毒性の中でも人体に対し発ガン性や催奇性と相関が高い変異原性の観点から水質を把握する²⁾こととした。

具体的には、都市域自己水源として道路排水に着目し、道路排水を土壌へ浸透させた涵養地下水のリスクレベルを表流水等との比較によって明確にすることを目的としている。そこで、涵養地下水を再現するため、実際の道路排水を採取し、土壌カラムに通水させる試験を行なうこととした。また、土壌による道路排水の浄化能を高くし、さらに長期間持続させる目的で、土壌に活性炭を混合したカラムについても同時に試験を行った。

2 実験方法

2.1 試料水中の変異原性物質の濃縮と回収

試料水中に含まれる変異原性物質は微量であるため、濃縮・回収して試験に供する必要がある。その方法は既報³⁾に従った。本研究は、吸着剤として高性能吸着樹脂である Sep-Pak Plus CSP-800 (日本ウォーターズ製) を使用した。濃縮操作には定流量ポンプ (Waters 製) を使用して、通水速度 30 ml / min 条件で濃縮した。尚、濃縮倍率については、溶存有機性炭素 (DOC) 濃度に応じて決定した⁴⁾。その後、カートリッジ内に吸着された物質の回収にはメタロールポンプ (日興エンジニアリング製) を使用し、ジメチルスルホキシド (DMSO) を流速 0.15 ml / min で通水し、脱離液 2 ml をねじ口ピンに採集して、濃縮された試料の回収を完了させた。

2.2 Ames 試験

Ames 試験方法は旧労働省のガイドブック⁵⁾に準じて行った。代表的な変異株である *Salmonella typhimurium* TA100 株を用い、代謝活性物質 S9mix 無添加系 (-S9) で、37℃、20 分間のプレインキュベーション法で行った。1 検体につき DMSO により溶解した試料の濃度は 50, 100 μL / plate の 2 段階 (2 プレートずつ) に分注した。菌体の活性を確認するために、検体の添加量と同量の DMSO のみを添加した 4 枚のプレ

ートを用いた陰性対照試験と、4-ニトロキノリン-1-オキシド(4NQO)による2枚のプレートを用いた陽性対照試験を毎回行った。各実験での復帰コロニー数を計数した結果から、試料水換算の検液添加量と復帰コロニー数との用量-作用関係を描き、回帰直線の勾配を最小二乗法で求め、濃縮前の試料1Lに換算した正味の復帰コロニー数[net rev./L]として変異原性の強度を表示した。さらにMR(Mutation Ratio)値、すなわち試料の復帰コロニー数の自然復帰コロニー数に対する比で表し、MR値<1.4で陰性、1.4 MR値<2.0で擬陽性、2.0 MR値で陽性と判断した。

2.3 変異原性生成能(MFP)

本研究では、涵養地下水の循環的利用用途として、最も高水質が求められる、水道原水を目指している。また、水質評価を行なう場合は、より安全側での評価が求められる。そこで、高梨によって提案された変異原性生成能(MFP、Mutagen Formation Potential)を評価項目として用いることとした⁴⁾。これは、浄水処理の塩素処理で変異原性物質に変化する物質群を変異原前駆物質と定義し、その強度を評価する新しい水質指標である。

3 各種水試料の測定

土壌カラムに使用する試料の実態把握のため、長岡市の道路排水(4地点、2回ずつ)、地下水、降水の測定を行った。表1に道路排水の変異原性生成能とその他水質測定結果を示す。MFPの平均値は8600 net rev./Lであり、全国河川水42サンプルの中間値2520 net rev./L⁶⁾の約3.5倍であった。DOCあたりのMFP(TA100-S9条件)は平均1290であった。これは平成16年度、17年度の全国河川水調査時の平均880の約1.5倍であり、河川水に比べ、道路排水中の有機物には塩素を添加することにより変異原性物質となる変異原前駆物質が高い割合で含まれることを示す。

降水の採水は長岡技術科学大学の敷地内において、2005年の10月14、15、23、25日と11月5、6日に行った。MFPの平均値は2460 net rev./Lであった。この値は道路排水平均値より低い値であり、全国河川水の中間値と同程度であったため、降水自体の変異原性生成能はそれほど高くないと言える。このことから、道路排水中のMFP値は、路面上に堆積した変異原性物質や変異原前駆物質が流れ出すことで増加するものと考えられる。しかし、DOCあたりのMFPは全国河川水よりも高く、道路排水と同程度の1300であった。このことから、微量でも高い変異原性生成能を示す物質の存在が考えられる。

実際の地下水の変異原性レベルの実態を把握するため、長岡市柿地区の水道水源となっている地下水の水質を測定した。表2に地下水の変異原性生成能とその他水質測定結果を示す。柿地区の地下水は水道原水としては極めて水質が良好で、塩素処理のみで配水されている。本研究においても、柿地区地下水には人的影響由来、またフミン質等の変異原性前駆物質がほとんど含まれないことが確認できた。このことから、MFPの観点から極めて安全性が高い地下水であると考えられる。

表 1 道路排水の MFP とその他水質測定結果

採水地点	採水日	DOC (mg/L)	E ₂₆₀	NH ₄ ⁺ -N (mg/L)	MFP (net rev./L)	MFP/DOC
渋海橋	2005.5.23	5.6	0.079	0.35	4600	820
越路橋		6.5	0.181	0.90	6750	1040
長生橋		7.9	0.118	0.91	7500	950
道寿橋		13.7	0.213	1.05	11600	840
渋海橋	2005.6.27	8.1	0.409	0.13	11900	1470
越路橋		6.1	0.569	0.18	6500	1070
長生橋		7.2	0.516	0.41	13100	1830
道寿橋		3.0	0.204	0.20	6830	2270
平均		7.3	0.286	0.52	8600	1290

表 2 地下水の MFP とその他水質測定結果

	採水日	DOC[mg/L]	NH ₄ ⁺ -N[mg/L]	E ₂₆₀	MFP	MFP/DOC
柿地区地下水	2006.6.29	1.3	<0.01	<0.003	100*	75
	2006.7.31	1.6	<0.01	<0.003	175*	111

* 1.4 > MR値

4 土壌カラム通水試験

4.1 試験方法

土壌カラムは柿地区の地下水を通水したブランクと、道路排水を通水した RUN1～4 の 5 系列とした。図 1 に土壌カラムの概略を示す。アクリル管の底部にコックを付けたゴム栓をし、その上部にガラスウールを約 10 mm 敷き詰めたカラムに、ブランク、RUN1、4 には土壌（長岡市内の公園より採取）のみを 500 mm の高さとなるように充填にした。また RUN2 には土壌（45 mm）の上に活性炭（日本エンパイロケミカルズ〔株〕、球状白鷺 XS7100H）（50 mm）を、RUN 3 には RUN 2 と同量の土壌と活性炭を混合して充填した。表 3 に運転条件を示す。まず表 3 に示す条件で通水し、その後続けて条件で通水した。通水試料には、ブランクには地下水を、RUN1～4 には渋海橋（長岡市）より採取した道路排水を使用し、ローラーポンプを用いて通水した。通水試料の水質を表 4 に示す。また、試験は約 20 の室内で行った。

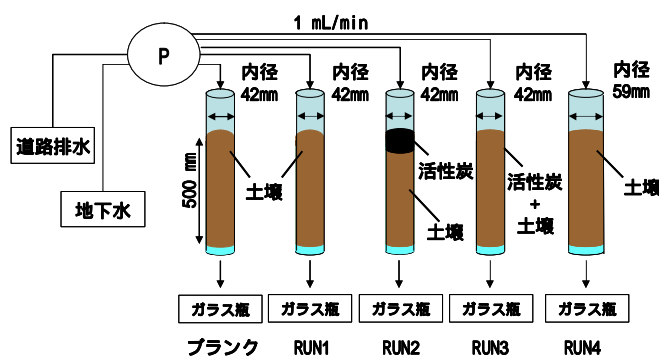


図 1 土壌カラムの概略図

表 3 土壌カラム試験の運転

	ブランク	RUN1	RUN2	RUN3	RUN4
カラム運転期間	2006年9月16日 ~ 2007年1月10日				
運転状況	条件	6時間通水、18時間停止			
	条件	9時間通水、63時間停止			
通水回数	条件	38			
	条件	21			
	計	59			
通水速度	1 ml/min				
降雨強度	39 mm/hr			19.8 mm/hr	
総通水量	22.2 L				
降水量換算	16100 mm			8140 mm	
長岡市の降水換算	7.0 年分			3.5 年分	
東京の降水換算	10.0 年分			5.1 年分	

表 4 土壌カラム通水試料の水質

	pH	DOC (mg/L)	E ₂₆₀	NH ₄ ⁺ -N (mg/L)	NO ₂ ⁻ -N (mg/L)	NO ₃ ⁻ -N (mg/L)	MFP (net rev./L)	MFP/DOC
道路排水	7.23	10.7	0.28	0.60	0.014	1.1	8340	781
地下水	7.34	1.57	<0.003	<0.01	<0.001	<0.1	175*	111

* MR値 < 1.4

4.2 連続試験結果

表 5 に前半後半に分けた、土壌カラム流出水の MFP と DOC の平均値と除去率を示す。MFP の除去率は RUN1、4 が後半約 80% であり、道路排水を土壌に通水することで MFP が削減されることが明らかとなった。さらに、RUN2、3 は 90% 以上と高い除去率を示しており、活性炭への変異原前駆物質の吸着が考えられた。また、RUN2 より土壌と活性炭の接触が多い RUN3 が低い値であることから、土壌中に存在する活性炭に保持されやすい菌が変異原前駆物質の分解に関わっていると考えられる。

ブランクにおいても MFP が検出されたことと、RUN1 より RUN4 が高い値であったことから、土壌からの変異原前駆物質の溶出が示唆されたが、RUN2、3 の MFP はブランクより低い値であり、道路排水中の変異原前駆物質に加え、土壌自体に含まれる変異原前駆物質も活性炭に保持された菌により分解除去されたことが考えられる。

MFP/DOC においては、道路排水を通水した系で、活性炭を用いた RUN2、特に RUN3 が他のカラムと比べて低い値となっており、この理由を考察する。溶存性有機物の分解は生物的な分解がほとんどである。しかし、変異原前駆物質は多くが難分解性有機物と考えられ、易分解性有機物に比べ分解速度が極端に遅い。そのため、土壌のみを充填した RUN1、4 においては、易分解性の有機物の分解は進行したが、通水試料である道路排水中の難分解性の変異原前駆物質が十分に分解されたとは考えにくい。しかし、RUN3 においては、活性炭に吸着した物質が微生物により分解され、空いた細孔に難分解性物質が吸着したことで、他のカラムに比べて難分解性の変異原性物質や変異原前駆物質が除去されたため、MFP/DOC が低下したと考えられる。

RUN1 の DOC の除去率は長期間の道路排水の通水で、約 60% から約 70% まで上昇が見られた。RUN2、3 の除去率は通水開始から通水終了まで約 80% という高い値を保った。また、MFP と同様に、RUN1 より RUN4 が高い値を示しており、土壌からの DOC の溶出が示唆された。

表 5 土壌カラム流出水の MFP と DOC の平均値と除去率

	降水量	DOC (mg/L)				MFP (net rev./L)				MFP /DOC		
		0 ~ 8000mm		8000 ~ 16000mm		0 ~ 8000mm		8000 ~ 16000mm		0 ~ 8000mm	8000 ~ 16000mm	
通水試料	道路排水	10.68				8340				781		
	地下水	1.57				175				111		
土壌カラム流出水	除去率	平均値	SD	平均値	SD	平均値	SD	平均値	SD	平均値		
		ブランク	3.18	0.83	2.84	0.98	1406	338	756	400	525	262
		RUN1	4.06	0.92	3.24	0.90	2475	330	1439	552	648	414
		RUN2	1.76	0.59	1.85	0.61	953	114	735	177	580	277
		RUN3	1.92	0.63	1.72	0.68	485	79	509	170	301	186
	RUN4*	4.27	0.79	3.55	1.16	3159	577	1616	382	647	371	
	RUN1	62		70		70		83				
	RUN2	84		83		89		91				
	RUN3	82		84		94		94				
	RUN4*	60		67		62		81				

* RUN4の降水量は1/2に相当する

表 6 に前半後半に分けた、土壌カラム流出水の窒素類の平均値と除去率を示す。窒素類に関しては、RUN1、4 では硝化の進行が示唆されたものの、窒素そのものの除去には至らなかった。しかし、活性炭を投入した系では、NH₄⁺-N だけではなく NO_x⁻-N の値もかなり低くなっており、脱窒まで進行したことが考えられた。

さらに、土壌のみのブランク、RUN1、4 は浸透率が悪化する場合があったが、活性炭を投入したカラムは浸透率が悪化することはなかったため、高い涵養効果が期待できた。

表 6 土壌カラム流出水の窒素類の平均値と除去率

降水量	NH ₄ ⁺ -N (mg/L)				NO ₂ ⁻ -N + NO ₃ ⁻ -N (mg/L)				無機態窒素 合計 (mg/L)				
	0 ~ 8000mm		8000 ~ 16000mm		0 ~ 8000mm		8000 ~ 16000mm		0 ~ 8000mm		8000 ~ 16000mm		
	平均値	SD	平均値	SD	平均値	SD	平均値	SD	平均値	SD	平均値	SD	
土壌カラム流出水	ブランク	0.80	0.29	0.72	0.35	1.27	0.82	1.08	0.45	2.07	1.08	1.80	0.77
	RUN1	0.65	0.45	0.41	0.12	2.00	0.68	1.62	0.37	2.65	1.12	2.03	0.35
	RUN2	0.30	0.07	0.26	0.12	1.07	0.45	0.75	0.28	1.37	0.46	1.02	0.32
	RUN3	0.23	0.03	0.08	0.07	0.47	0.06	0.14	0.09	0.69	0.08	0.23	0.15
	RUN4*	1.19	0.49	0.38	0.17	2.79	1.01	1.60	0.43	3.98	1.49	1.98	0.54
除去率	RUN1	-8		32		-82		-47		-56		-20	
	RUN2	51		56		3		31		20		40	
	RUN3	62		86		58		87		59		87	
	RUN4*	-98		37		-154		-45		-134		-16	

* RUN4の降水量は1/2に相当する

4.3 全国河川水との比較

平成 16、17 年度の全国河川水 (37 河川水 42 試料) MFP の累積百分率⁶⁾との比較を行った。土壌カラムに通水した道路排水の MFP 約 8300 net rev./L は、全国河川水の累積百分率のおよそ 90%であった。また、DOC は 98%、NH₄⁺-N は 95%、NO₃⁻-N + NO₂⁻-N は 70%であった。

RUN1 の MFP (通水前期約 2500 net rev./L、後期約 1400 net rev./L) は全国河川水の累積百分率のおよそ 50% (前期)、25% (後期) であった。また、後期の DOC は 55%、 $\text{NH}_4^+\text{-N}$ は 93%、 $\text{NO}_3^-\text{-N} + \text{NO}_2^-\text{-N}$ は 78% であった。RUN4 の MFP (通水前期約 3500 net rev./L、後期約 1600 net rev./L) は全国河川水の累積百分率のおよそ 80% (前期)、30% (後期) であった。また、後期の DOC は 62%、 $\text{NH}_4^+\text{-N}$ は 93%、 $\text{NO}_3^-\text{-N} + \text{NO}_2^-\text{-N}$ は 78% であった。

活性炭を上部に敷き詰めた RUN2 (通水前期約 950net rev./L、後期約 740 net rev./L) は全国河川水の累積百分率のおよそ 15% (前期)、10% (後期) であった。また、後期の DOC は 15%、 $\text{NH}_4^+\text{-N}$ は 88%、 $\text{NO}_3^-\text{-N} + \text{NO}_2^-\text{-N}$ は 48% であった。

活性炭を土壌と混合した RUN3 (通水前期から後期まで 500 net rev./L 前後を推移) は全国河川水の累積百分率のおよそ 5% と低い値であった。また、後期の DOC は 7%、 $\text{NH}_4^+\text{-N}$ は 71%、 $\text{NO}_3^-\text{-N} + \text{NO}_2^-\text{-N}$ は 5% であり、MFP 以外の項目も他のカラムと比較してかなり低い値であった。

このことから、河川水と比較する限り、涵養地下水を水道水源として用いることに関して、MFP の観点からは問題がないと考えられる。また、活性炭を用いることで、他項目に関してもかなりのリスクレベルの低下が見込まれる。さらに、活性炭と土壌との接触面積が大きいほど効果が大きいことが示唆された。

5 まとめ

道路排水を土壌カラムに通水させることにより MFP レベルは、全国河川水の累積百分率のおよそ 25% になり、道路排水の土壌への浸透は MFP の削減に効果的であることが分かった。

土壌と活性炭を混合した系での MFP は全国河川水の分布の 5% と低い値を維持しており、さらに窒素等の除去にも効果的であったことから、活性炭添加の有効性が示された。

参考文献

- 1) 古米弘明：第 7 回日本水環境学会シンポジウム講演集，137-138，2004
- 2) 小松他：環境化学 第 14 巻 第 1 号，49-56，2004
- 3) 浦野鉦平ら：水道水の Ames 変異原性に関する研究 第 2 報 高性能吸着剤を用いた変異原性物質の濃縮・回収方法，水環境学会誌 Vol.17，461-469，1994
- 4) 高梨啓和：変異原性による水道水の安全性管理手法に関する研究，東京大学大学院博士論文，1999
- 5) 中央労働災害防止協会：安衛法における変異原性試験，1991
- 6) 真部良章：変異原性試験を用いた都市水循環系の水質評価 - 道路排水の再生利用に向けて - ，長岡技術科学大学大学院修士論文，2006