

# 自來水原水水質特性與加氯處理對致突變性關係之研究

## The Effect of Disinfection with Chlorine on Facilitating Mutagenic Activity of the Tap Water

周婉貞<sup>1</sup>

曾迪華<sup>2</sup>

李俊福<sup>3</sup>

### 摘 要

自來水原水的品質，除影響其處理程序及加氯量外，水中污染物質的種類、濃度，都將對人體的健康構成影響。本研究探討人工原水水質特性、加氯、混凝處理程序、加氯量、加氯反應時間等，與水樣之致突變性之間的關係。

以 Ames test 作為水樣致突變性之測試方法，並選用 TA98 及 TA100 兩株菌種作為受試菌體。結果顯示，在原水水質方面：水樣中只含有高濃度的鐵、錳時，不會造成受試菌種之致突變性，若水樣添加腐植酸，則當腐植酸的濃度高達 7.6ppm 時，對受試菌種 TA98 有致突變性。把原水進行加氯處理後，水樣的致突變性將大大地增加；水樣中腐植酸的濃度為 4.33ppm，加入 20ppm 氯，水樣即產生致突變性。在混凝處理方面：原水進行加氯處理的同時，加入 40ppm 硫酸鋁 ( $\text{Al}_2(\text{SO}_4)_3 \cdot 18\text{H}_2\text{O}$ ) 進行混凝，發現在低腐植酸濃度時，混凝可使水樣的致突變性較只經過加氯處理者為低，同時也減少水樣的耗氯量，使水中的餘氯量增加，而有利於水樣的加氯消毒。另外，在相同水質的水樣中，加氯量越多，水樣的致突變活性越大。此外，加氯反應的接觸時間，也會對水樣的致突變性造成影響。在整個實驗中，顯示菌種 TA98 較 TA100 靈敏，對某些水樣而言，添加 S-9 混合液可增加水樣的致突變性。

---

1:高雄工學院土木工程學系助教

2:國立中央大學環境工程研究所教授

3:國立中央大學環境工程研究所副教授

## 一.前言

水是人們日常生活中不可或缺的物質，過去由於人類的錯誤觀念，認為水是取之不盡，用之不竭的天然資源，因而造成了水資源的浪費及對水土保持工作的疏忽，更嚴重者，有部份水源已經受到不同程度的污染<sup>(1,2)</sup>。其中在地下水方面，鐵、錳的濃度有偏高的傾向，地面水（如湖泊、水庫等）中氨氮、總有機物濃度有增加的趨勢。使得飲用水水質及安全性受到質疑。

這些含有各種污染物之飲用水原水，經過淨水廠加氯處理後，會消耗氯量及形成各種各樣的加氯副產物，在這些副產物中，有部份已被確認為致突變或致癌物質，另外還有未知結構及組成成份的化合物，加上其在水中的含量極微，不易以儀器加以定量及定性分析，又由於其對人體健康可能造成影響，因而值得進一步的研究。

本研究擬以配製人工原水之方式，模擬淨水廠的加氯處理情況，對人工原水進行加氯、混凝、沉澱、過濾等處理程序。針對人工原水、加氯處理水及清水進行化學分析及致突變測試，以探索原水水質狀況、加氯處理條件對致突變性的影響，作為改良原水加氯處理程序的參考，並找出重要的影響因子。期能達到協助淨水廠在進行原水加氯處理時，避免大量致突變副產物的產生。研究內容包括：

- 一.探討不同水質的人工原水，加氯處理之耗氯量。
- 二.比較人工配製的原水、加氯處理水及清水（經加氯、混凝、沉澱、過濾等程序）對致突變性的影響。
- 三.以人工配製不同腐植酸濃度之原水，在相同的加氯量、接觸時間及反應條件下，對致突變性的影響。
- 四.在相同水質狀況及反應條件下，加氯量對致突變性之影響。
- 五.在相同水質狀況下，反應時間與致突變性之關係。

## 二. Ames Test 原理及應用

測試毒性物質對環境的影響（尤指對人體健康而言）有很多方法，傳統的方法為使用嚙齒類動物作生物實驗，以口服、皮下注射及吸入等方法，觀察及分析化學物質對受試動物的影響。但由於耗資巨大且測試時間長，故發展出以微生物作為受試對象的試驗方法，作為生物測試的篩選試驗就頗受歡迎。

### (一). Ames Test 原理

沙門菌回復突變測試法<sup>(3)</sup>(*Salmonella*/microsome reversion assay)<sup>(4,5)</sup>是 Ames 氏所發展出來的。1960 年代中期，Ames 氏等人收集幾百種在組氨酸操縱子(histidine operon)上具有不同突變基因特性的沙門菌(*Salmonella typhimurium*)菌系，多年來又不斷地發展出一些更具效率而又敏感的細菌篩檢系統，以測試不同之致突變物質。1971 年 Ames 首先發表了二組以鹽基置換(base-pair substitution)及框構位移突變(frame-shift mutation)為作用機制之菌系與測試方法，由菌系表現型之巨大缺失(large deletion)或正向突變(forward mutation)來測試化合物之致變性。於 1973 年所發展出的菌系，則又增加了  $\Delta$ uvrB 及 rfa 兩種特性，具  $\Delta$ uvrB 之沙門菌，其 DNA 切除修護系統上(excision-repair)具有缺陷使得 DNA 受害之現象易於表現出來；而具 rfa 之細菌，其細菌壁上之脂多醣層(lipopolysaccharide barrier)有部份缺失，增加大分子化學物質對細菌之滲透性，因此顯著提高了測試化合物致變性之敏感度。同年，又發表了以老鼠肝臟 9000xg 懸浮液模擬生物體內代謝活化作用之反應方法，使得在早期未被偵測到的一些原致癌劑(procarcinogens)經此肝臟微粒體之酵素(liver microsome fraction)以及一些輔助因子(cofactors)之作用後，轉變為具致變性之代謝產物而得以在生體外(in vitro)直接被偵測出來。

1975 年，為提高該簡易偵測法之敏感性，更在鹽基置換與框

構位移突變菌系內，導入 pkM101 質體(plasmid)，此段基因使得菌種表現出修護錯誤傾向，致使受損之 DNA 不易被修補好，因而更具敏感性。

## (二). Ames Test 應用

細菌細胞之致突變原理理論上對人體亦有潛在之致癌性。早在 70 年代 Ames 氏等人曾對約 300 種已知致癌物質進行致突變測試，發現其中有 90% 的致癌物為致突變物質，顯示致癌物與細菌的致突變性有相當密切的關係<sup>(6,7)</sup>。因而被推廣至用來測定環境及生物系統中物質之致突變性，其應用對象包括頭髮染料、食品添加物、食品、活體組織、人類糞便和尿、化妝品成分、飲料、食用油、空氣樣品、水和廢水樣品及其他環境樣品。

在美國，Donald K. Noot<sup>(8)</sup>以 Ames Test 評估不同的飲用水處理程序之出流水中的致突變性。發現以氯胺(chloramines)，ClO<sub>2</sub> 及 O<sub>3</sub> 消毒的處理水致突變活性最小。顆粒活性碳(GAC)在處理程序中能發揮優先去除致突變物質的功能。

在南非，W.O.K. Grabow<sup>(9)</sup>以 TA98 及 TA100 二個菌種對飲用水原水水質進行 Ames Test 分析。由實驗結果得知所有的原水皆沒有致突變性。

在日本，學者<sup>(10)</sup>對河川水中的有機物質進行致突變分析，選擇以 Ames Test 測試其致突變性。結果發現作為飲用水水源之一的 Katsura River，在 TA1538 及 TA98 兩種菌種添加 S-9 混合液的 Ames Test 測試中，其河水中有強烈的致突變活性。又 Shoji Maruoka<sup>(11)</sup>在 Nishitakase River 之河水中，以 XAD 樹脂進行濃縮，並以菌種 TA1538 及 S-9 混合液進行 Ames Test，結果顯示有強烈的致突變活性，表示河川的原水遭受框構位移型致突變物質之污染。

Ames Test 在台灣學術界作為環境檢驗上的分析應用已行之

有年。曾對幾個自來水處理廠的原水水質及處理水水質進行了水質的致突變分析，結果偶有發現分析的飲用水有致突變性，其分析結果都能被接受<sup>(12)</sup>。可見 Ames Test 使用於飲用水水質分析的重要性，並且可以此分析方法作為自來水處理對人體健康影響程度之參考。

### 三. 實驗設備與研究方法

#### (一). 實驗設計

影響原水及加氯處理水之致突變性的因素甚多，本研究乃選擇原水水質變化，加氯量變化，加氯處理的反應時間等變數，作為加氯處理的影響因子。並模擬一般自來水公司的操作程序，對原水進行加氯、混凝、沉澱及過濾，以比較加氯處理水與經加氯、混凝、沉澱及過濾二種處理條件下，對致突變性的影響。

為了達到本研究的目的，在實驗的規劃設計上可分為五部分，茲分述如下：

#### (A)不同水質特性之原水的致突變性研究：

探討對象為不同水質特性之人工原水，在室溫、pH 值為 6.8-7.2 之間，經過濃縮後，水質與致突變性之關係。

#### (B)原水經加氯處理後其與致突變性之關係：

在此部份將探討不同水質特性的原水，在室溫、pH 值為 6.8-7.2 之間、加氯量為 20ppm、接觸時間為 3 小時、攪拌轉速為 100rpm 下，經過反應後，其濃縮之水樣與致突變之間的關係。

#### (C)原水經過加氯、混凝、沉澱、過濾等處理程序後，其與致突變性之關係：

在此部份將探討不同水質特性的原水，在室溫、pH 值為 6.8-7.2 之間，同時加氯及加混凝劑反應 3 小時、沉澱 1 小時，水樣經過過濾後，其濃縮萃取液與致突變性之關

係。

(D)加氯量與致突變性之關係：

本部份的研究將選定一種水質特性，然後進行不同加氯量的反應，以探討在同一反應條件下，不同加氯量(0、2.5、5.0、7.5、10.0、12.5、15.0、25.0、35.0、50.0、100.0、200.0mg/L)對致突變性之影響。

(E)反應時間與致突變性之關係：

本部份的研究包括以同一水質特性之原水，在同一加氯量及反應條件下，探討不同反應時間(0、3、5、12、24、48、72、96、120、168小時)與致突變性之間的關係。

本研究之實驗流程如圖 1 所示。

## (二).實驗設備

本研究所使用的原水是以人工配製的方式，並在特製的反應設備中進行加氯、混凝、沉澱、過濾等處理程序。茲將本研究的實驗設備分述如下：

### 1.加氯反應裝置

採用容量為 20 公升之茶色窄口玻璃瓶，瓶上有刻度，瓶口安裝了一套攪拌漿及變速攪拌馬達，攪拌漿與玻璃瓶口間，設有一個水封裝置，使得在加氯攪拌時，整個反應裝置為密閉系統，減少實驗的誤差。加氯反應裝置如圖 2 所示。

### 2.水樣沉澱、過濾、濃縮裝置

在加氯反應完畢之後，把攪拌漿及馬達取下，於玻璃瓶口上架設玻璃製倒虹吸管、真空接頭(內附玻璃棉，模擬過濾池把水中顆粒物質去除)及裝有 15 克已淨化的 XAD-2 樹脂之管柱，其作用為將經過玻璃棉過濾的水樣進行濃縮。整個裝置如圖 3 所示。

### (三).實驗方法

在容量為 20 公升的玻璃瓶中，裝滿 20 公升事先配好水質成分的人工原水，並以 6N NaOH 及濃硫酸調整至所需之 pH 值。不加氯處理時，則直接以淨化之 XAD-2 樹脂進行水樣濃縮、萃取與分析。XAD-2 樹脂淨化步驟如圖 4。水樣濃縮步驟如圖 5。若需加氯處理，則依加氯量的需求以吸管吸取定量之次氯酸鈉貯備液入水中，並加以密封，在反應時間內以 100rpm 之轉速攪拌，然後進行水樣濃縮與分析。如水樣需加氯及混凝處理時，則同時加入次氯酸鈉及硫酸鋁(使用量由杯瓶試驗決定之)進行反應，然後靜置 1 小時，使膠羽沉澱，最後進行水樣濃縮與分析。在反應完成後，為防止氯化作用的繼續進行，馬上取水樣測試餘氯，再根據餘氯量加入足夠量之硫代硫酸鈉以去除餘氯。

本研究中人工原水的配製，為採用超純水，加入各種成份的污染物至所需的濃度。其方法如下：

#### (1)腐植酸的純化

腐植酸為日本 WAKO 公司所生產者，在使用之前，必須加以純化，把雜質及不溶解部份加以去除。5g 腐植酸溶於 0.1N NaOH 中靜置 24 小時以上，接著以 0.45 $\mu$ m 之濾紙過濾，過濾液以 TOC 分析儀 Model 700 測定其濃度，並密封保存之。使用時再加以稀釋及測定其濃度。

#### (2)水中的鐵、錳離子

以  $\text{FeCl}_2 \cdot n\text{H}_2\text{O}$ 、 $\text{MnCl}_2 \cdot 4\text{H}_2\text{O}$  配製，使其溶於濃  $\text{HNO}_3$  中，保持在 pH<2 下，則 Fe、Mn 為溶解狀。使用時加以稀釋並以 Spectr AA-400 測定其濃度。

#### (3)水中的氮氮

水中的氮氮以  $\text{NH}_4\text{Cl}$  加以配製，將  $\text{NH}_4\text{Cl}$  於 100 °C 烘乾後，精稱 3.819 克之  $\text{NH}_4\text{Cl}$  加入超純水至 1000mL，則水中氮氮的濃度應為 1.0mg/mL，配製原水時，再將此溶液加以稀釋，並測定

其濃度。

水樣經過配製、反應、處理、濃縮、萃取後，進行致突變測試。由於沙門氏回復突變試驗所使用的菌系很多，如表 1 所示。其中 TA97、TA98、TA100 及 TA102 是 Ames 氏等推薦使用在一般致突變測試之沙門菌。本研究採用 TA98 及 TA100 二菌系作為致變性測試之沙門菌，其中 TA98 是以框構位移突變為作用機制之菌系，而 TA100 是以鹽基置換突變為作用機制之菌系。

為確保供試菌系之基因型不致因輸送、儲存過久或自然突變而失去特性，必須進行菌種的鑑定。包括：

(a). 組胺酸需求性特性：

將菌種劃在培養盤上，於 37 °C 培養 48 小時，TA98 與 TA100 均為組胺酸需求型菌系，故只能生長於含組胺酸之培養盤上。

(b). rfa 突變型測定：

由於所選用的菌系具 rfa 特性，結晶紫可滲透入細胞內而殺死細菌，出現明顯的生長抑制圈(直徑約 14mm)，野生型之菌種不具 rfa 特性而無此抑制圈出現。

(c). ΔuvrB 突變型測定：

菌種劃於 Nutrient agar plates(簡稱 NA plates)上，以鋁箔紙遮一半，放在 15 w 殺菌燈下距離 33 公分照射 8 秒鐘，經 24 小時，37 °C 培養後可觀察到 TA98 及 TA100 被 UV 照射的部份無法生長。

(d). R 質體測定

此特性很容易自細菌體內消失，需定期測試其對抗生素安比西林(ampicillin)之抗性。菌種若能在含抗生素的培養皿上生存者為具 R 質體。

(e). 自然回復突變率之測定

濃度為  $10^9$  個/mL 之菌液 0.1mL 在 Minimal glucose agar plates(簡稱 MA plates)上培養 48 小時後，TA98 之自然回復突變

菌落數約 30~40 個/plate(加 S-9 者為 50 個/plate)，TA100 則為 120~160 個/plate(加 S-9 者為 200 個/plate)，此自然回復突變之菌落數並非很固定，因此在進行致突變測定時，至少要 3 個自然突變對照組。

若所選用之菌種通過以上的鑑定，便可展開實驗。實驗時，菌液及 S-9 放在碎冰中，軟性瓊脂放在 45°C 中，把 MA plate 從 37°C 培養箱中拿出，將以 DMSO 定量之待測物 0.1mL 放入軟性瓊脂內，用旋轉混合器混合均勻，再加入 0.1mL 的菌液，再用旋轉混合器混合均勻，視需要而加入 0.5mL 的 S-9 混合液，混合均勻後，倒到 MA plate 上，並多向轉動培養皿，使軟性瓊脂均勻鋪在培養盤上且快速降溫。

實驗完成後，放在 37°C 培養箱中培養 48 小時後計算菌數，每次做實驗時都應以 DMSO(sol.control)做空白對照組及以已知的致突變物做正對照組(positive control)，若受測水樣的菌落數為空白對照組菌落數之 2 倍或以上時，則此水樣在統計上被認為有致突變性。

#### 四. 結果與討論

##### (一). 加氯量與餘氯量之關係

探討人工原水中，不同腐植酸濃度對加氯處理之耗氯量變化。人工原水中 Fe 1.5ppm，Mn 0.2ppm，NH<sub>3</sub>-N 2.0ppm 而腐植酸的濃度則由 1.3、4.3、7.6、20.9 到 34.0ppm 不等，如圖 6 curve 1 所示，隨著腐植酸濃度的增加，加氯量不變，餘氯量反而有微量的增加，其原因是由於水樣中有氨氮的存在，當氨氮濃度為 2.0ppm 時，其折點加氯量約為 20ppm，如圖 7。但本組實驗的水樣加入了其他的耗氯物質(如鐵、錳、腐植酸等)，使得圖 7 中的加氯—餘氯曲線往後平移，因而在同樣的加氯量下，水中耗氯物質濃度增加時，餘氯量小幅上升。

## (二).含鐵、錳水樣之致突變性分析

本節所分析之二水樣中只含有以人工配製之鐵、錳，其濃度皆為 Fe 12.26mg/L、Mn 0.77mg/L，其中一水樣進行加氯處理另一則否，在加氯反應後，由於原水中的鐵、錳是二價的還原態，故消耗大量的氯而氧化成三價的鐵、錳。

由表 2 中可知二水樣的致突變測試結果，在 TA98 及 TA100 二種菌種及(+S-9)(-S-9)之致變突測試中，都沒有致突變之現象產生。因此水樣之致突變性與水樣中鐵、錳之濃度無關。

## (三).原水水樣中腐植酸濃度與致突變性之關係

水樣中腐植酸濃度變化為 1.3、4.3、7.6、20.9、34.0ppm(以 TOC 表示)，鐵及錳的濃度約為 1.3ppm 及 0.2ppm，氨氮濃度則為 2.0ppm。水樣經濃縮、萃取後進行致突變測試，結果如圖 8 至 11 所示。

在圖 8 中，TA98(-S-9)的回復突變菌落數與腐植酸濃度成線性之關係，並在腐植酸濃度為 7.6ppm 時，菌種 TA98 的回復突變菌落數為 116，與腐植酸濃度為 4.3ppm 時的菌落數 47 有明顯的差別，並具有致突變性，且隨著濃度的增加而增加，表示水中的腐植酸含有致突變官能基，隨著此類官能基濃度的增加而增加水樣的致突變性。在圖 9 中，TA98(+S-9)的回復突變菌落數與腐植酸濃度成線性之關係，在腐植酸濃度為 7.6ppm 時，回復突變菌落數為 103，除具明顯的致突變性外，從迴歸直線上可看出，在同一腐植酸濃度下，TA98(+S-9)的回復突變菌落數較 TA98(-S-9)者稍高。並隨著腐植酸濃度的增加而增加。表示水中的致突變物質在 S-9 的代謝過程中並沒有去毒性。在圖 10 中，TA100(-S-9)的回復突變菌落數與腐植酸濃度呈線性關係，並且隨著腐植酸濃度的增加而緩慢的增加，但其致突變性並不明顯，當腐植酸濃度為 34.0ppm 時，TA100(-S-9)的回復突變菌落數仍未達到 2 倍之空

白對照組的回復突變菌落數，故水樣之水質對 TA100(-S-9)沒有致突變性。在圖 11 中，TA100(+S-9)的回復突變菌落數與腐植酸濃度成正比線性關係。並隨著腐植酸濃度的增加而緩慢的增加，在腐植酸濃度高達 34.0ppm 時，仍未有明顯的致突變性，但其回復突變之菌落數較 TA100(-S-9)為多，表示水中的物質經 S-9 代謝後，產生毒性稍強之代謝副產物。

#### (四).含腐植酸原水加氯處理後水樣之致突變性

五種不同腐植酸濃度(1.3、4.3、7.6、20.9、34.0ppm 以 TOC 表示)之人工原水，分別在加氯量為 20ppm、轉速為 100rpm 之密閉反應器中反應 3 小時，水樣經過濃縮、萃取後進行致突變分析。其結果如圖 12 至圖 15 所示。

由圖 12 中可看出 TA98(-S-9)的致突變性與腐植酸的濃度成正比的關係。在水樣加氯反應後，腐植酸濃度為 4.3ppm 時，受試菌種 TA98 的回復突變菌落數為 204，具有明顯的致突變性。而在未加氯的水樣中，腐植酸的濃度高達 7.6ppm 時，回復突變菌落數才僅為 116，雖亦有致突變性，但其腐植酸濃度較高且回復突變菌落數目少了一半之多。這是由於加氯處理產生致突變性氯化副產物的關係，使得水樣在較低的腐植酸濃度下，即呈現強致突變性。圖 13 為經加氯處理的水樣，以 TA98(+S-9)進行致突變測試，其致突變性與腐植酸濃度呈對數的關係。在腐植酸濃度為 4.3ppm 時，受試菌種 TA98 的回復突變菌落數為 132，水樣呈現致突變性。相較於未加氯的水樣中，腐植酸的濃度高達 7.6ppm 時，回復突變的菌落數為 103，雖有致突變性，但其回復突變菌落數目較少，再次說明加氯反應會產生致突變性較強之氯化副產物，使得水樣在較低的腐植酸濃度下，即呈現強致突變性。但當水樣中腐植酸的濃度再增加時，其致突變性增加率反而減少，這可能是由於當腐植酸濃度增加時，加氯量並沒有增加，造成水中

加氯量與腐植酸之比值下降，沒有足夠的氯與腐植酸反應之故。圖 14 為經加氯處理的水樣，以 TA100(-S-9)進行致突變測試，結果顯示其致突變性並不明顯，在腐植酸濃度高達為 34.0ppm 時，仍沒有致突變性。圖 15 為經加氯處理的水樣，以 TA100(+S-9)進行致突變測試，結果顯示水樣在腐植酸濃度高達 34.0ppm 時，受試菌種 TA100 的回復突變菌落數為 295，有較明顯的致突變性。

#### (五).含腐植酸原水加氯、加混凝劑處理之水樣的致突變性

水樣中腐植酸濃度變化為 1.3、4.3、7.6、20.9、34.0ppm(以 TOC 表示)，鐵及錳的濃度約為 1.5ppm 及 0.2ppm，氨氮濃度則為 2.0ppm。需經加氯、混凝、沉澱、過濾處理。加氯量為 20ppm，混凝劑  $\text{Al}_2(\text{SO}_4)_3 \cdot 18\text{H}_2\text{O}$  加藥量 40ppm，加氯及混凝同時進行並持續 3 小時，水樣中餘氯量與水樣中腐植酸濃度的關係如圖 6 中的 curve 2 所示。與 curve 1 比較，由於混凝劑的使用，水樣在相同的腐植酸濃度下，餘氯量較沒有使用混凝劑時的餘氯量為高，但在較高的腐植酸濃度下，由於混凝效果不佳，水中腐植酸的去除率減低，因而提高了腐植酸的耗氯量，使得餘氯量減少。

在混凝效果方面，如圖 16 所示，當水中的有機物質濃度很低時(濃度為 1.3ppm)，混凝效果不佳，而當腐植酸濃度繼續增加至 4.33ppm 時，混凝處理對 TOC 之去除率達到 90%左右，但當腐植酸濃度持續上升時，由於水中的濁度並沒有明顯的增加，而水中的雜質又全是溶解性物質，因而使得混凝、沉澱的效果不佳，腐植酸的去除率只有 50~30%左右，符合文獻<sup>(13)</sup>指出混凝處理對水中腐植酸之去除效率不佳。對於鐵、錳及氨氮的混凝處理去除效率，由於錳的濃度低，去除效率從 10~99%不等，鐵的去除效率在 90%以上，而混凝劑對氨氮並沒有發揮去除效用。

圖 17 為經過加氯、混凝、沉澱、過濾之水樣對 TA98(-S-9) 之致突變性測試結果，水樣中腐植酸的含量由原來的 1.3、4.3、7.6、20.9、34.0ppm，經過混凝、沉澱、過濾等處理程序後，降為 1.19、0.37、3.60、9.04、24.11ppm，因而其致突變性亦相對地降低，水樣腐植酸濃度為 9.04ppm 時，始有較明顯的致突變性，其回復突變菌落數為 114。表示水質經過混凝、沉澱、過濾等處理過程後獲得了改善。圖 18 為水樣以 TA98 菌種為受試菌系，並加入 S-9 酵素對加氯副產物進行代謝，產生了產物降階及去毒作用，使得水樣的致突變活性減弱，水樣腐植酸濃度為 9.04ppm 時，始有致突變性，其回復突變菌落數為 109。表示混凝可以減少水樣中的致突變物質。圖 19 及圖 20 為水樣以 TA100 為測試菌種進行致突變測試之分析結果，與圖 17 及圖 18 有相同的趨勢。水樣對 TA100(+S-9) 沒有致突變性，而在 TA100(-S-9) 的試驗中，水樣呈現微弱的致突變性，回復突變菌落數為 263。進一步對圖 12 至圖 15 及圖 17 至圖 20 作一比較後發現，在某一腐植酸濃度範圍下可經由混凝處理減少其濃度，並抑制其致突變性。亦即在低腐植酸濃度時受試菌種的致突變性因混凝處理而明顯減少。但在高腐植酸濃度的水樣，由於混凝處理的效果有限，因此其對致突變測試的回復突變菌落數並沒有減少，由此可以推測，高腐植酸的水樣經過混凝處理後，並不能去除引起受試菌種致突變的物質，也就是說混凝不一定能去除致突變物質。

#### (六).加氯量對致突變性之影響

本節以不同的加氯量對含有 5.84ppm 的腐植酸原水，進行加氯反應 3 小時，以瞭解其對致突變性的變化。圖 21 至圖 24 為本節中水樣之致突變分析結果，圖 21 及圖 22 中顯示，原水在不加氯的情況下，沒有致突變性，但只要加入小量的氯( $\text{Cl}_2=2.5\text{ppm}$ ) 時，就會使水樣對 TA98 菌系產生致突變活性，而加入的氯亦在

反應時間內被消耗完畢，如圖 25 所示。當加氯量繼續增加時，水樣的致突變性增強，但隨著加氯量的大幅增加，水中的氯化副產物量因受到了腐植酸濃度的限制而不再增加，故致突變活性呈較穩定的狀態。

圖 23 及圖 24 顯示加氯量與 TA100 菌系之致突變性的關係。在低加氯量時，水樣對受試菌系 TA100 沒有致突變性，當加氯量繼續增加時，不添加 S-9 混合液之培養盤中，受試菌系 TA100 首先出現了致突變活性，此時的加氯量約為 12.5ppm。隨後，致突變活性隨著加氯量的增加而增加，最後趨於平緩。反觀在添加 S-9 混合液之培養盤中，受試菌系 TA100 在加氯量為 35ppm 之水樣中，才有致突變活性的產生，顯示了 S-9 代謝酵素之去毒能力。並說明了水中的加氯量對致突變性造成的正面影響，加氯量越多，致突變性越大。而在此測試中，再度顯示 TA98 比 TA100 靈敏。

#### (七).反應時間與致突變性之關係

本節探討在低腐植酸濃度(TOC=2.14)時，加氯處理之反應時間對水樣的致突變性所造成的影響。圖 26 為水樣在相同的加氯量( $Cl_2=20ppm$ )下，餘氯量隨著時間的變化。反應時間由 3 小時到 7 天不等，餘氯量隨著反應時間的增加而緩慢的減少。表示水中的物質在整個加氯處理時間內，不斷有耗氯的反應發生，但最主要的氯化反應似乎發生在加氯處理後的 5 小時內，此時的耗氯量最大，而後便隨著時間的增加只消耗小量的氯，顯示水中的腐植酸與氯的反應非常迅速。

圖 27 至圖 30 為加氯處理之反應時間與致突變性之關係，由圖中可知，加氯處理之反應時間在 5 小時內，水樣之致突變活性變化最大，而隨著時間的增加，水樣的致突變活性並沒有明顯的改變，再次說明水中的腐植酸與氯的反應非常迅速。另外，在低

腐植酸濃度下，延長加氯處理的時間，有提高水樣中致突變活性的作用，但在反應時間超過 5 小時後，水樣中的致突變活性並沒有明顯的增加。不過，在反應時間為 5 小時時，水樣對 TA98 有致突變性，而對 TA100 並沒有致突變性，證明加氯反應時間對人體健康也會造成影響。而且這段時間(5 小時)，剛好和自來水加氯處理的反應時間相近，故若要控制水中致突變物質的生成，唯有依賴水資源的保護及水質先經過處理再行加氯消毒，以減少水中腐植酸的濃度。

## 五. 結論

1. 水中含有高濃度之鐵(12.26ppm)、錳(0.77ppm)時，不會造成受試菌種之致突變性。
2. 人工原水中含不同濃度之腐植酸時，水樣之致突變性隨水中腐植酸濃度之增加而增加。當水中腐植酸濃度高達 7.6ppm 時，造成受試菌種 TA98 具致突變性。
3. 人工原水中含不同濃度之腐植酸，加氯量 20ppm，使得水中腐植酸的濃度只有 4.3ppm 時，亦對受試菌種 TA98 產生致突變性，證實氯化有機物的致突變性比腐植酸為高。
4. 混凝劑之添加，能有效減少加氯處理之耗氯量。
5. 混凝劑可去除水中部份腐植酸、鐵、錳等物質，但對氨氮沒有去除效果。
6. 水樣經過加氯、混凝處理，發現在低腐植酸濃度時，其致突變性較只經過加氯處理者為低。而對高腐植酸濃度的水樣，混凝處理效果不彰，水樣的致突變性也未獲改善。
7. 原水中腐植酸的濃度為 5.84ppm，加入不同濃度的氯。當加氯量為 2.5ppm 時，水樣對 TA98(-S-9)有致突變性。加氯量為 12.5ppm 時，水樣對 TA100(-S-9)有致突變性，加氯量增至 35ppm 時，水樣對 TA100(+S-9)也有致突變性。

8.延長加氯處理的反應時間，能使水中的腐植酸與氯的反應更加完全。當水樣中腐植酸濃度為 2.14ppm，加氯量為 20ppm，加氯反應 5 小時後，使原本加氯反應 3 小時都沒有致突變性的水樣，對受試菌種 TA98 產生致突變性。

### 誌謝

本研究承蒙國立陽明大學張勝祺教授提供來自美國 Ames 實驗室之 TA98 及 TA100 二株菌種，及國立清華大學楊嘉玲教授、華亦熙小姐在研究期間之指導，僅此致由衷之謝忱。

### 參考文獻

- 1.樓基中、蔣本基，「飲用水中腐植酸氯化反應生成機制之研究」，中國環境工程學刊，第一卷，第二期，第 57-64 頁(1991)。
- 2.蔣本基、樓基中、孫昀，「自來水中含氯有機物之生成與控制研究(I)」，國立台灣大學環境工程學研究所環境工程研究報告，國科會編號 NSC-76-0410-E002-15，1987。
- 3.游碧堉，「化學物質遺傳毒性之簡易偵測法(1).沙門菌回復突變測試法」台灣省農業藥物毒物試驗所應用毒理系，應用毒理系技術專刊第一號(1987)。
- 4.Ames,B.N., J.McCann and E.Yamasaki, "Method for Detecting Carcinogens and Mutagens With the *Salmonella*/Mamalian-Microsome Mutagenicity test." Mutation Res., Vol.31, pp.347-364 (1975)。
- 5.Maron,D.M. and B.N.Ames, "Revised Method for the *Salmonella* Mutagenicity Test",Mutation Res., Vol.113, pp.173-215 (1983)。
- 6.Joyce McCann, Edmund Choi, Edith Yamasaki, And Bruce N. Ames, "Detection of Carcinogens as Mutagens in the *Salmonella* Microsome Test:Assay of 300 Chemicals", Proc. Nat. Acad. Sci.,

- Vol.72, No.12, pp.5135-5139 (1975)。
7. Joyce McCann and Bruce N. Ames, "Detection of Carcinogens as Mutagens in the *Salmonella*/Microsome Test: Assay of 300 Chemicals: Discussion", Proc. Nat. Acad. Sci., Vol.73, pp.950-954 (1976)。
  8. Donald K. Noot, William B. Anderson, Susan A. Daignault, David T. Williams, and Peter M. Huck, "Evaluating Treatment Processes With the Ames Mutagenicity Assay", Journal AWWA, Vol.81, No.9, pp.87-102 (1989)。
  9. W. O. K. Grabow, P. G. Van Rossum, N. A. Grabow and R. Denkhaus, "Relationship of The Raw Water Quality to Mutagens Detectable by the Ames *Salmonella*/Microsome Assay in a Drinking-Water Supply", Water Res., Vol.15, pp.1037-1043 (1981)。
  10. Maruoka S. and Yamanaka S., "Mutagenicity in *Salmonella Typhimurium* Tester Strains of XAD-2-Ether Extract, Recovered from Katsura River Water in Kyoto City, and its Fractions", Mutation Res., Vol.102, pp.13-26 (1982)。
  11. Shoji Maruoka, Shinichi Yamanaka and Yukitaka Yamamoto, "Mutagenic Activity in Organic Concentrate from Nichitakase River Water in Kyoto City, and its Fractions Separated by Using Liquid-Liquid Fractionation and Thin Layer Chromatography", Water Res., Vol.19, No.2, pp.249-256 (1985)。
  12. 曾迪華、李俊福、楊嘉玲、張勝祺等，「飲用水水質檢測之比較及特殊項目之檢驗與數據分析(一)」，行政院環保署/國立中央大學環境工程研究所，EPA-82-02-09-05，中壢 (1993)。
  13. 曾四恭、劉澄鴻、朱威、廉卿愛，「改變混凝方法以增進水源中微量有機物之去除」，國立台灣大學環境工程學研究所環境工程研究報告，國科會編號 NSC75-0410-E002-01。

表 1. 沙門菌回復突變試驗所使用之菌系及其基因型

野生型突變基因型 (histidine mutation)				噬菌體屬	修補	R 質粒	
hisD3610 hisD312 =TA88	hisD3052	his G46	his G428 (pAQ1)	Lipo- poly- saccharide	Repair	pkM101	
TA 90	TA 1538	TA 1535	—	TA 1537	rfa	ΔuvrB	-R
TA 97	TA 98	TA 100	—	—	rfa	ΔuvrB	+R
—	TA 1978	TA 1975	—	—	rfa	+	-R
TA 110	TA 94	TA 92	—	—	+	+	+R
—	TA 1534	TA 1950	—	—	+	ΔuvrB	-R
—	—	TA 2410	—	—	+	ΔuvrB	+R
TA 89	TA 1964	TA 1530	—	—	Δgal	ΔuvrB	-R
—	TA 2641	TA 2631	—	—	Δgal	ΔuvrB	+R
—	—	—	TA 103	—	rfa	+	+R

註：破折符表示之 TA 編號為 Ames 氏等海軍使用在一般之致突試驗中之沙門菌。

表 2. 水樣之致突變分析結果

	TA98 — (S9)	TA98 + (S9)	TA100 — (S9)	TA100 + (S9)
DMSO	31±10	45±6	117±12	131±25
水樣一	31	42	104	106
水樣二	39	62	122	129

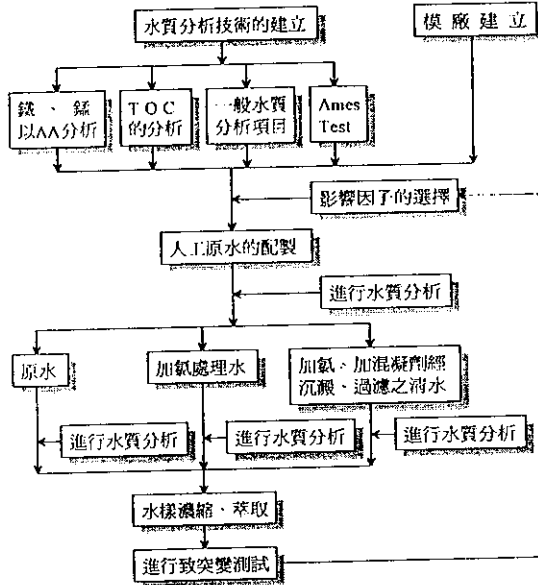


圖 1. 實驗流程圖

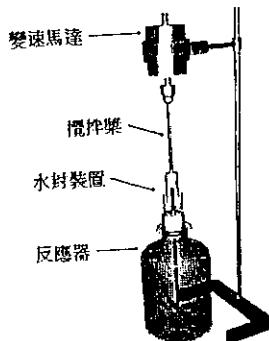


圖 2. 加氧反應裝置

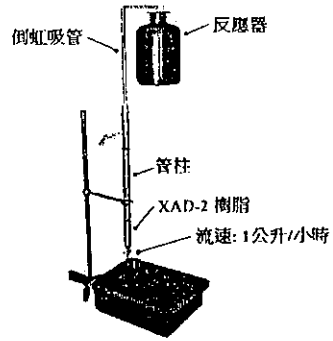


圖 3. 水樣濃縮裝置

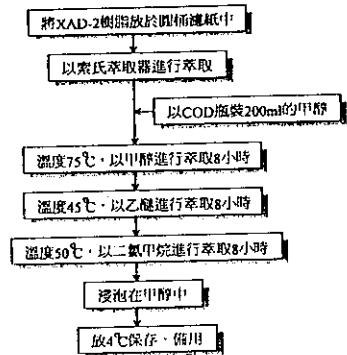


圖 4. XAD-2 樹脂淨化流程圖

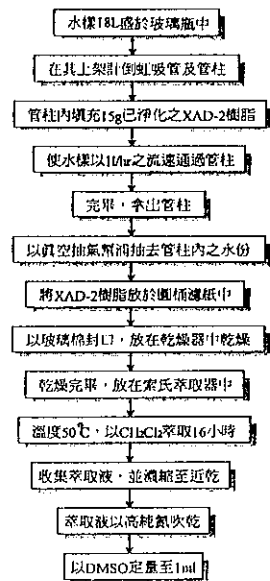


圖 5. 含腐植酸之水樣濃縮流程圖

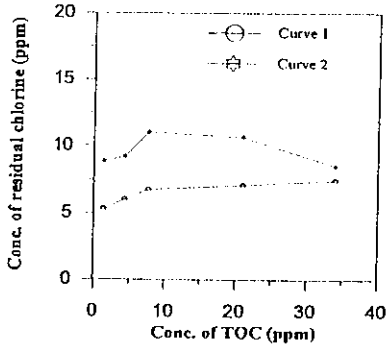


圖 6. 加氯-餘氯曲線圖

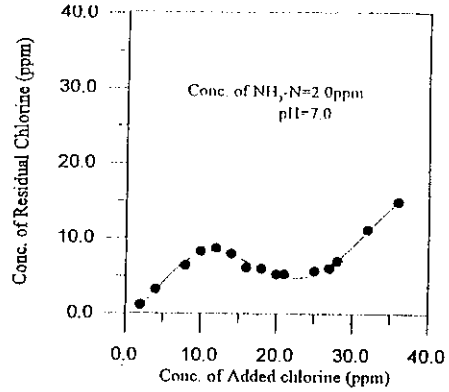


圖 7. 加氯-餘氯曲線圖

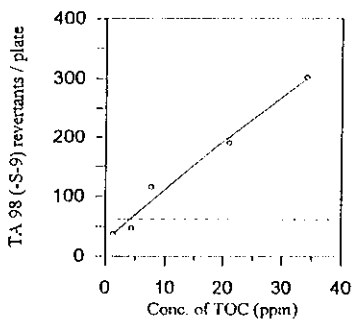


圖 8. 腐植酸濃度與致突變性之關係圖

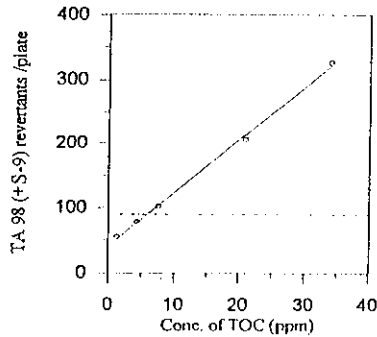


圖 9. 腐植酸濃度與致突變性之關係圖

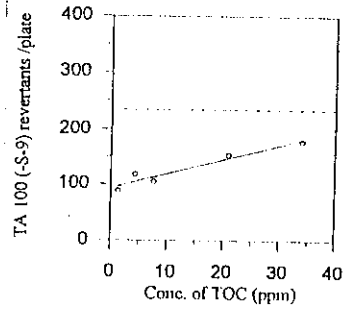


圖 10. 腐植酸濃度與致突變性之關係圖

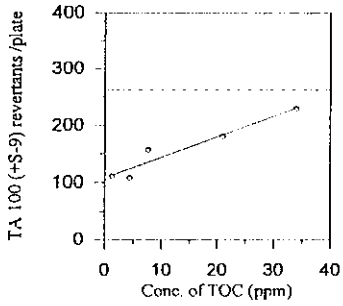


圖 11. 腐植酸濃度與致突變性之關係圖

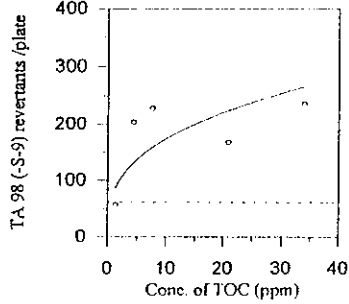


圖 12. 腐植酸濃度與致突變性之關係圖

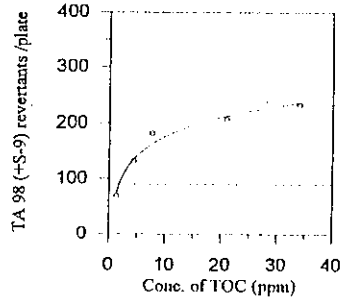


圖 13. 腐植酸濃度與致突變性之關係圖

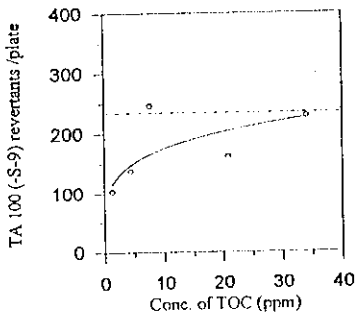


圖 14. 腐植酸濃度與致突變性之關係圖

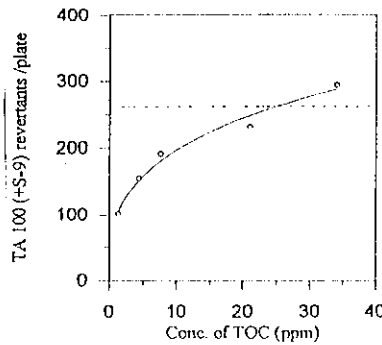


圖 15. 腐植酸濃度與致突變性之關係圖

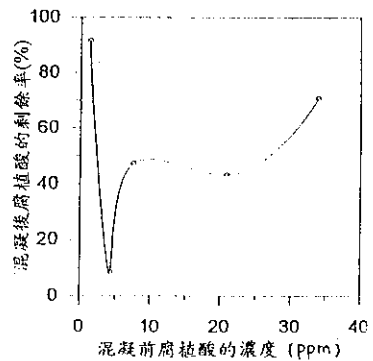


圖 16. 混凝處理後水中腐植酸的剩餘率

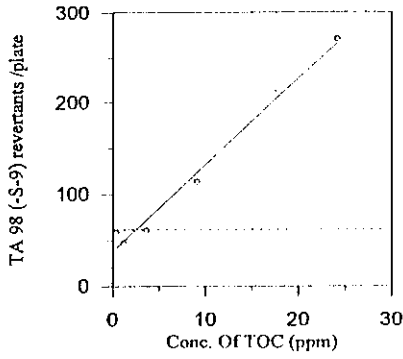


圖 17. 混凝處理後腐植酸濃度與致突變性之關係圖

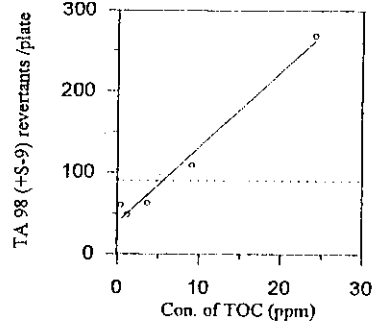


圖 18. 混凝處理後腐植酸濃度與致突變性之關係圖

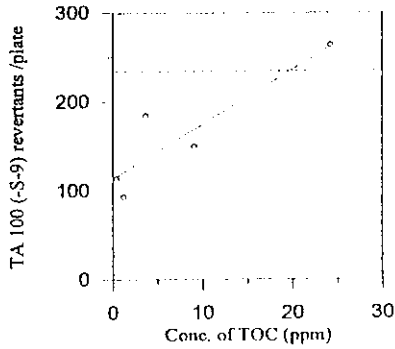


圖 19. 混凝處理後腐植酸濃度與致突變性之關係圖

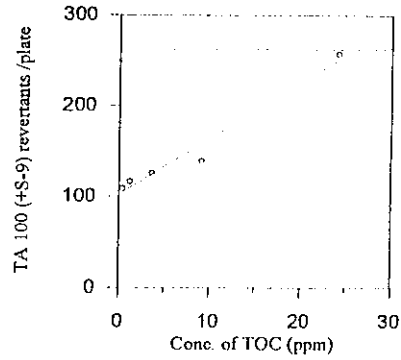


圖 20. 混凝處理後腐植酸濃度與致突變性之關係圖

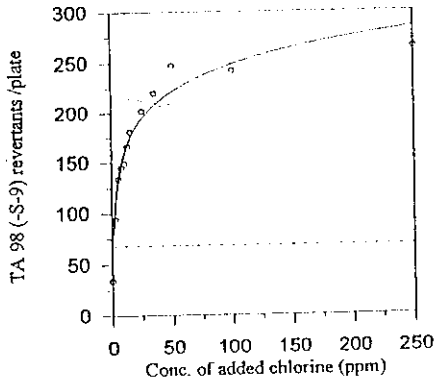


圖 21. 加氯量與致突變性之關係圖

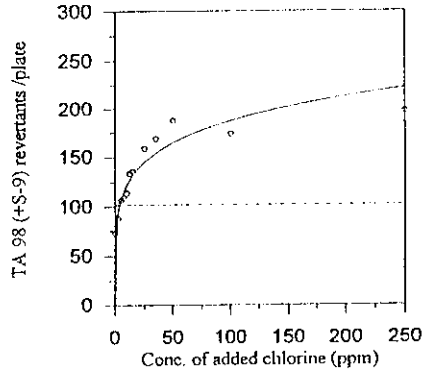


圖 22. 加氯量與致突變性之關係圖

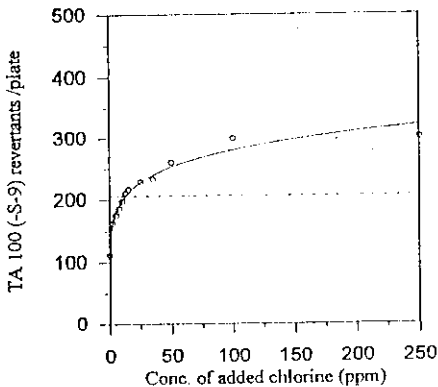


圖 23. 加氯量與致突變性之關係圖

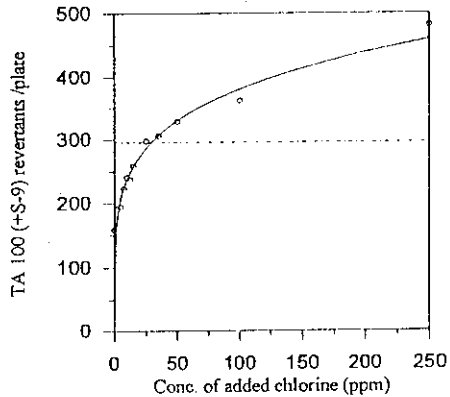


圖 24. 加氯量與致突變性之關係圖

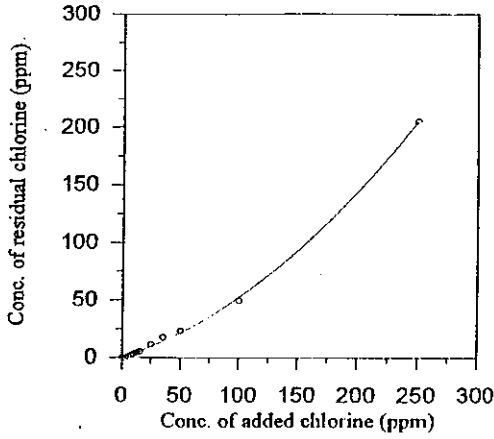


圖 25. 加氯-餘氯曲線圖

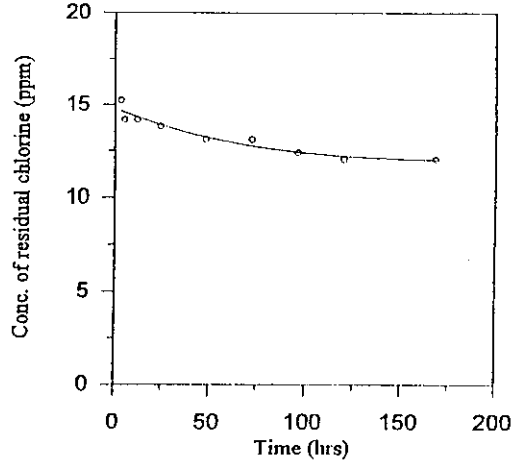


圖 26. 反應時間與餘氯量之關係圖

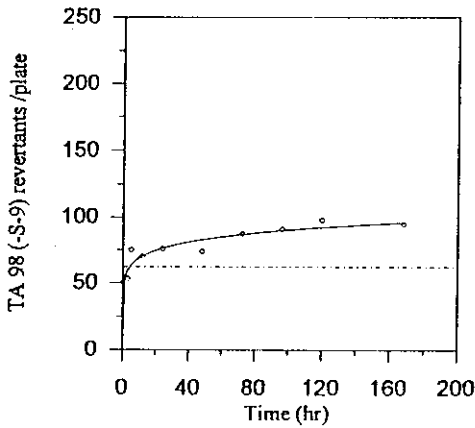


圖 27. 反應時間與致突變性之關係圖

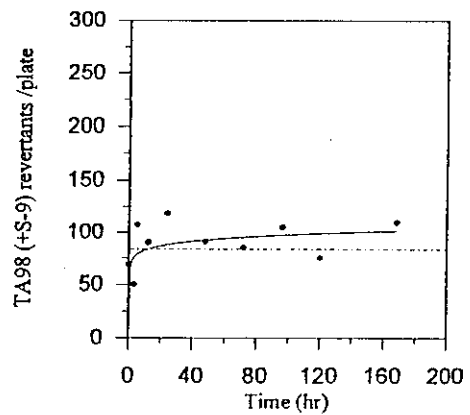


圖 28. 反應時間與致突變性之關係圖

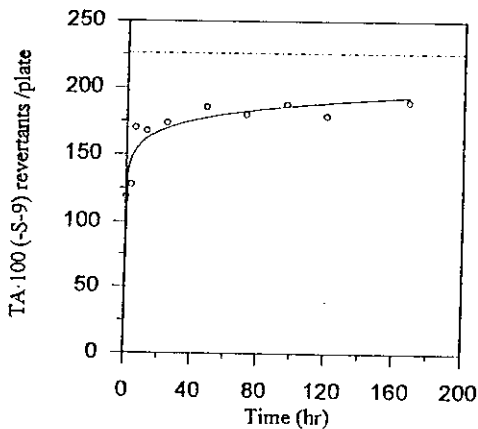


圖 29. 反應時間與致突變性之關係圖

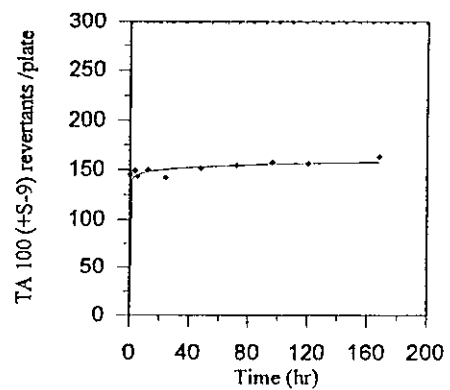


圖 30. 反應時間與致突變性之關係圖

註：以上各圖中之 [-----] 線表示水樣之菌落數若超過此線，則水樣有致突變性。