<論 文>

セラミックス製品による水槽中の藻類等の発生防止

渡 邊 健 治*
山 崎 惟 義**柿 田 ゆかり*
正 本 博 士***
江 頭 敬 二****田 中 綾 子**
中 原 俊 輔***Prevention of The Growth of Algae and Protists
in Water Treated with A Calcinated SandKenji WATANABE*, Yukari KAKITA*, Ayako TANAKA**,
Koreyoshi YAMASAKI**, Hiroshi MASAMOTO***, Shunsuke NAKAHARA***
and Keiji EGASHIRA****

* Faculty of Pharmaceutical Sciences, Fukuoka University, Nanakuma 8-19-1, Jonan-ku, Fukuoka 814-80 Japan

** Department of Civil Engineering, Faculty of Technology, Fukuoka University, ditto

*** Department of Chemical Engineering, Faculty of Technology, Fukuoka University, ditto

**** Technical Laboratory, Kyudenko Corp., Nanokawa 1-23-35, Minami-ku, Fukuoka 815 Japan

Abstract

A commercial calcinated sand, Cleansand-205 (abbr. Kls-205: a silica sand coated by a special procedure with a mixture of the oxides of Si, Al, Ti, and Ag), was tested for its ability to inhibit the growth of algae in a laboratory (batch-system) experiment. The growth of algae in water taken from a domestic gold fish basin was inhibited almost completely by about 5 % (w/v) of Kls-205, under the conditions where fairly amounts of both nitrogen and phosphorus were present. However, Kls-205 (5 %) showed little inhibition on algae which had already abundantly grown, and did not suppress further growth. The abilities of Kls-205 to adsorb nitrogen, phosphorus and carbon dioxide required for the growth and photosynthesis of algae were weak. The amounts of beta- and gamma-radiation and harmful heavy metal ions were the same levels as those from non-treated natural water. The dissolution of any antialgal substances and the generation of active oxygens were not observed. The possible role of Ag and/or its oxide with oligodynamic in inhibiting the growth of algae by Kls-205 was discussed.

Key words: ceramics, algae, improvement of water quality, silver

1. 緒 言

最近、水を電磁場で処理するなど種々の方法により処理する事によって、普通の水に新しい機能を発現させる試みが広く行われてきている^{1)~3)}。これらのうち、

セラミックス処理水の抗菌活性が注目されているが、澤井ら^{4),5)}は、セラミックス粉末(MgO および CaO 粉末スラリー)に黄色ブドウ球菌に対する抗菌活性のある事を電気伝導度測定法により認めている。また、ある種のセラミックス製品は、貯水槽などの水に浸漬す

* 福岡大学薬学部 〒814-80 福岡市城南区七隈 8-19-1

** 福岡大学工学部土木工学科 同上

*** 福岡大学工学部化学工学科 同上

**** (株)九電工技術開発第二課 〒815 福岡市南区那の川 1-23-35

ると、抗菌活性を示し、水のクラスターの大きさが小さくなり、“水を活性化することにより、水が腐らなくなり、また、土壌に加えると、植物の成長が促進されるなどとして市販されている。しかし、これらセラミックス製品の抗菌活性などに関する研究は極めて少なく、その評価法も確立されていない。

本研究では、セラミックス製品のこのような効果を確認するための一環として、セラミックス製品の一つであるクリーンサンド-205の“藻類”発生の防止効果を、家庭で金魚を飼育中の水槽の水を用いて、回分式の室内実験で検討した。

2. 実験方法

2.1 供試セラミックス製品

用いたセラミックス製品（商品名クリーンサンド-205：以下、Kls-205と略す、平均粒径（50%中位径）2.03mm、標準偏差1.21）は、微粒状の珪砂（40kg）を特殊な方法でSiO₂、Al₂O₃、TiO₂、Agなどを含むセラミック液剤（1 kg）でコーティング処理をして焼成（180～200℃、2時間以上）したものである。

2.2 藻類発生防止実験

金魚を市販の餌で飼育中の水槽の水を、1週間以上放置して塩素分を除去した水道水を用いて希釈し、その吸光度（OD）を0.05以下にしたものを供試水とした。供試水1 lを三角フラスコにとり、これに各種の量（5～200g）のKls-205を加えた後、小型のエアポンプ（KUHARA SE-5000型（4 W））を用いて昼間のみ約10時間エアレーションを行った。実験期間中、任意の間隔で照度、水温、吸光度（OD）、pH、全窒素（T-N）、全リン（T-P）、クロロフィル-a、および浮遊物質（SS）を測定した。また、SS中の“藻類”を位相差顕微鏡で観察した。なお、実験期間中（春～秋）、雨天日はほとんどなく、供試三角フラスコは室内の窓際に置かれたので、その照度は日中ほぼ5,000 lxないしはそれ以上であった。ただし、雨天～曇天日は2,000 lx以下であり、また、秋期になると、晴天日も5,000 lxをきる日が多くなった。

2.3 分析方法

2.3.1 濁度、浮遊物質、照度および平均粒径

供試水の濁度は、島津 UV-140-02型分光光度計を用い、波長600nm、セル（光路）長1 cmまたは5 cmでの吸光度（OD）を測定した。浮遊物質（SS）は、JIS-KO102（工場排水試験法）に従って、供試水を傾瀉してKls-205を除いた上澄液を、さらにメンブランフィルター（1.0 μm）で濾過して濾液（試料の水相）と残渣に分け、その残渣を105℃で2時間乾燥した後、秤量した。なお、実験後、Kls-205を水でかるく洗浄して得

た残渣をKls-205吸着画分とした。照度は、TOPCON IM-1型照度計を用いて測定し、ルクス（lx）で表した。Kls-205の平均粒径は500個の粒子について、ニコン V-2型万能投影機を用いてフェレー径を測定し、積算ふるい上より50%中位径を求めた。

2.3.2 化学物質

全窒素（T-N）は、JIS-KO102-45.2の紫外線吸光光度法、全リン（T-P）は、JIS-KO102-46.3.1のペルオキソ二硫酸カリウム分解法、全有機炭素（TOC）は、島津 TOC-500型全有機炭素計を用い、JIS-KO102-22の燃焼・赤外線分析法に準拠して測定した。クロロフィルは、供試水の遠心沈殿物を乳鉢にとり、90%アセトンを加え、乳棒で擦り潰した後、3時間冷蔵庫に放置して抽出した。その遠心上澄液の吸光度を光路長1 cmのセルを用い、波長750、665、645および630nmで測定し、次式に従い、クロロフィル-a（Chl-a）量として求めた。すなわち、

$$\text{Chl-a} (\mu\text{g} \cdot \text{l}^{-1})$$

$$= (11.6E_{665} - 1.31E_{645} - 0.14E_{630}) \cdot v \cdot (V \cdot L)^{-1}$$

式中、各Eは750nmにおける吸光度を差し引いた値、vは抽出アセトン量（ml）、Vは供試水の量（l）、Lはセルの長さ（1 cm）である。

活性酸素は、測定法が簡便で連鎖反応が起こらず、かつ還元型チトクローム-Cの自動酸化が非常に遅いため、最も広く用いられているMcCordらの方法⁶⁾に従って測定した。重金属は、セイコー電子工業 SAS-7500型原子吸光光度計を用い、フレーム法により測定した。試料を分析に供する前に、分析妨害物質である有機物を除去するため、濃硝酸（20ml）-30%過酸化水素（10ml）による酸分解（150℃、6時間）を行い、最終段階で10分の1に濃縮した。分析は有害金属として、Cd、Pb、CrおよびCu、その他として、Fe、Mn、Zn、AgおよびCaについて行った。

2.3.3 放射線量およびpH

β線は、Aloka TGS-121型ガイガー・ミュラー計数管を、γ線は、Aloka TCS-161型シンチレーションサーベイメーターを用い、各測定機のプロブを直接試料に近付けて測定した。また、γ線のエネルギースペクトルは、試料を試験管に取り、Packard COBRA-II型オートガンマーカウンターを用いて測定した。pHは、ガラス電極の堀場 U-10型 pHメーターを用いて測定した。

3. 実験結果

3.1 供試液のOD変化および沈渣の位相差顕微鏡像

Kls-205を浸漬した水中で藻類の発生が抑えられる

か否かを金魚を飼育中の水を用いた回分処理実験により調べた。すなわち、各種の量 (5~200g) の Kls-205 を三角フラスコにとり、供試水 (OD=0.006, pH7.03) を加えて 1 l とし、昼間のみ約 10 時間エアレーションした。実験期間中、任意の間隔で、OD, pH, T-N, T-P, SS および水温を測定した。Fig. 1 に OD 値の経時変化の一例を示す。Kls-205 を添加しない対照区において、OD 値は経時的に増加し、約 10 日後にはほぼ一定値 (OD=0.15) に達した。そして、これに伴い、水の色は次第に緑色を呈し、10 日後になると、緑色の

Fig. 1 Diurnal change of OD in the test water

Fig. 2 Phase-contrast micrographs of SS in the test water. Bar markers represent 50 μm . (A) *Chlorella* sp.-like algae, (B) filamentous algae, (C) Wamushi (*Rotaria* or *Philodina*), (D) amoebae

SS がガラスの壁面に若干付着するのが肉眼で認められる程になった。これらの SS を位相差顕微鏡で観察すると、Fig. 2 に示すように、*Chlorella* 属様の緑色で球状のものと、結節を持つ糸状の藻類が最も多く観察された。この他に、運動性のワムシ (*Rotaria* あるいは *Philodina*) と思われる袋形動物、アメーバなどの原生動物、および細菌の小さな塊のようなもの^{7),8)}も若干観察された。一方、Kls-205 添加区では、添加した Kls-205 の量が多い程 OD の増加や水の色が抑えられた。そして、5 % 量以上の Kls-205 を添加した場合、OD および水の色の変化、すなわち、これらの微小生物群の増殖はほとんど認められなかった。このように、清澄な水 (OD<0.01, T-N<60mg $\cdot$ l $^{-1}$, T-P<1mg $\cdot$ l $^{-1}$) の場合は栄養源が若干含まれていても、5 % (w/v) 以上の Kls-205 を添加すると藻類の増殖が抑制される事は、クロロフィル-a を藻類増殖の指標とした実験でも確かめられた。

供試液の pH は、最初、中性であったが、Kls-205 を添加しない対照区では時間の経過と共に上昇し、2 週間後には pH8.9 付近にまで達した。これは、King⁹⁾も述べているように、増殖した藻類によって水中の炭酸イオンが消費されるためと考えられる。一方、Kls-205 を添加した場合、その量が多い程 pH の上昇は抑えられ、5 % (w/v) 以上の場合、pH7.5 以下に保たれた (Table 1)。

3.2 反応後の供試液の性状

2 週間後に、供試水を水相、SS および Kls-205 吸着画分に分別し、SS, T-N および T-P の量を測定した。その結果、Table 1 に示すように、SS は Kls-205 を添加しない対照区では、1 l 中約 110mg であった。この

Table 1 Characteristics of the test water aerated for 2 weeks

Kls-205 (%)	0.0	0.5	1.0	2.0	5.0	10.0	15.0
pH	8.20	7.93	8.04	7.97	7.46	7.43	7.37
SS (mg)	107.1	66.0	55.2	40.2	12.8	13.8	15.8
T-N Sup (mg/l)	27.22	16.85	20.74	20.74	27.22	22.47	23.76
SS (mg)	7.50	4.62	3.86	2.81	0.90	1.00	1.11
Kls-205(mg/g)	0.00	0.03	0.02	0.00	0.00	0.00	0.00
T-P Sup (mg/l)	0.11	0.39	0.33	0.52	0.81	0.66	0.56
SS (mg)	1.07	0.66	0.55	0.40	0.13	0.14	0.16
Kls-205(mg/g)	0.000	0.004	0.005	0.003	0.002	0.003	0.002

Total, l/l; Sup, Supernatant; Kls-205, Kls-205-adsorbing fraction

Fig. 3 Changes in OD and chlorophyll-a in Kls-205 treated water

SS は、測定時のフィルターへの付着物が鮮やかな黄緑色を呈していた事、および Fig. 2 の顕微鏡像から、藻類が主体と考えられる。この SS の量は、OD 値とほぼ比例関係にあり、Kls-205 の添加量の増加と共に減少した。これらの結果から、SS 中の T-N は、SS 量にほぼ比例し、SS の主成分は微小生物群である事が支持された。

全系 (水相+SS+Kls-205) 中の T-N の総量は、対照区を除き、ほぼ一定であったが、いずれの濃度の Kls-205 添加区の場合も T-N の 80% 以上が水相中に、残りのほぼ全量が SS 中に存在していた。この事と、Kls

-205 吸着画分の値より、Kls-205 の水中における T-N 吸着力はかなり弱いように思われた。

T-P の全系中の総量もほぼ一定であった。Kls-205 を添加しない対照区では、T-P のほとんどが SS 中に取り込まれた。Kls-205 の添加量の増加に伴い、その量は減少し、Kls-205 の量が 5% (w/v) 以上になると、15% の場合を除き、T-P の 80% 以上が水相中に存在した。したがって、T-N の場合と同様に、T-P の Kls-205 自身への吸着も弱い事が分かった。

3.3 Kls-205 の作用機構

まず、Kls-205 に、既に増殖した藻類を吸着する作用

があるか否かを検討した。すなわち、藻類が既に増殖し水相が緑色を呈した供試水 (OD=0.50, セル長 5 cm) に各種量 (%) の Kls-205 を加え、室温で時々振とうしながら放置し、経日的に OD およびクロロフィル-a を測定した。その結果、Fig. 3 に示すように、藻類の増殖を抑える 5% (w/v) 量の Kls-205 存在下の OD およびクロロフィル-a の量は、対照に比較すると低い値であったが、その差はごく僅かであった。そして、藻類の増殖を抑えるには 20% (w/v) 以上の浸漬量の Kls-205 が必要であった。したがって、Kls-205 は、既に多量に増殖した藻類の更なる増殖を抑える作用は弱い事が分かった。

次に、Kls-205 から藻類の増殖を抑える未知の抗菌性物質が溶出しているのか、あるいは Kls-205 固体表面でのみ働いているを見るため、反応の途中で Kls-205 を除去した場合の藻類の増殖に及ぼす影響を調べた。すなわち、供試水 (クロロフィル-a = $25 \mu\text{g} \cdot \text{l}^{-1}$, T-N = $66 \text{mg} \cdot \text{l}^{-1}$, 温度 30°C) に 10% (w/v) 量の Kls-205 を加え、常法通りエアレーションを行い、3 日後に反応液を傾瀉して Kls-205 を除いた。その結果、3 日目までは藻類の増殖は完全に抑えられていたが、Kls-205 を除くと、最初から Kls-205 を加えていない対照とほぼ同様の速度で増殖を開始した。したがって、Kls-205 は、粒子自体から何らかの安定な抗菌物質を溶出して作用しているのではなく、Kls-205 の固体表面が何らかの作用をしていると思われた。

次に、Kls-205 が藻類の光合成に必要な水中の CO_2 を吸着するか否かを調べた。すなわち、同上供試水に 10% (w/v) 量の Kls-205 を加えて 2 週間静置し、経日的に反応液を遠沈して得た上澄液中の CO_2 (炭酸塩)

の量を TOC を測定する事により求めた。その結果、 CO_2 の経日的挙動は、Kls-205 を加えていない対照とほぼ同じであった。したがって、Kls-205 に藻類の光合成に必要な CO_2 吸着能があるとは考えられなかった。

3.4 重金属、放射能および活性酸素

Kls-205 を浸漬した水中で藻類の発生が抑えられる原因として、Kls-205 から有害金属が溶出する事が考えられた。したがって、この事を確認するため、精製水 1 l に Kls-205 50g (5%) を加えて室温で 1 日放置した液と、添加後直ちに 30 分間煮沸した液について溶出金属を定量した。その結果、Table 2 に示すように、熱処理の有無にかかわらず、Cu, Cr, Cd, Pb, Fe, Mn, Zn, Ag, Ca などの金属はほとんど僅かしか検出されなかった。しかし、以前、Wuhrmann ら^{12), 13)} は、0.01ppm 濃度の AgNO_3 が大腸菌に対して若干殺菌作用を示す事を報告している。したがって、Kls-205 に含まれ、水中で極く微量に溶出される Ag イオンが作用本体であるか否かを確認するため、各種濃度の AgNO_3 (pH6.0) の藻類の増殖に及ぼす影響をクロロフィル-a を指標として検討した。その結果、Fig. 4 に示すように、Ag イオンが 0.1ppm ($\text{mg} \cdot \text{l}^{-1}$) まで存在しても藻類の増殖は全く影響を受けなかった。しかし、その濃度が 1 ppm を越すと、増殖阻害が認められ始め、10ppm 以上になると、藻類は死滅した。この場合、硝酸イオンが藻類の栄養源となり、Ag イオン自身の効果を若干相殺する可能性も否定できないが、少なくとも Kls-205 から溶出される 0.01ppm 程度の濃度の Ag イオンでは藻類の増殖はほとんど影響されないと考えられた。次に、この硝酸イオンの影響を払拭するため、銀製(石福金属製、純度 99.99%)の 1 l ビーカー

Table 2 Metal ions dissolved from Kls-205 (5%) into the water

Metals	Boiling(+)	Boiling(-)*	Legal standard(tap water) ¹⁰⁾
Cu	0.05>	0.05>	1.0>
T-Cr	0.02>	0.02>	0.05>
Cd	0.005>	0.005>	0.01>
Pb	0.003	0.002	0.1>
T-Fe	0.044	0.048	0.3>
T-Mn	0.02	0.02>	0.3>
Zn	0.02>	0.02>	0.3>
Ag	0.01	0.005>	0.05>**
Ca	0.036	0.020	300>***

Unit, $\text{mg} \cdot \text{l}^{-1}$ (ppm); *, Immersed for one day without boiling; **, USPHS Drinking Water Standards¹¹⁾; ***, Ca, Mg etc (hardness)

Fig. 4 Effect of the concentration of Ag^+ growth of algae interms of the amounts of Chlorophyll-a. Sample solutions (Chlorophyll-a= $8.5\mu\text{g}\cdot\text{l}^{-1}$) were kept at $23.5\pm 2.4^\circ\text{C}$ for 4 weeks. Illuminances were over 2,500 lx except on the 3, 6, 10, 13 and 15th day (cloudy). Vertical bars show the standard deviation of the mean.

に供試水を採り、室温 ($18\sim 21^\circ\text{C}$) で一カ月間放置し、水中に溶出した Ag の量と藻類の増殖度 (クロロフィル-a の量) を測定した。その結果、銀製のピーカーより Ag はわずか 0.005ppm しか溶出されなかったが、藻類の増殖は対照 (アルミホイルで周りを包んだガラスビーカー) の約 3 分の 1 に抑えられた。

次に、抗菌活性があると云われている活性酸素の発生の有無を調べた。すなわち、Kls-205 の粒子 10g をそのまま、あるいは乳鉢で細かく粉碎した後、 50mM リン酸カリウム緩衝液 ($\text{pH}7.8$) 100ml に懸濁し、10 分間激しく振とうした後、その上澄液について活性酸素の量を測定した。その結果、いずれの場合も活性酸素 (スーパーオキシドラジカル) はわずか ($\Delta\text{OD}_{550\text{nm}}\cdot\text{min}^{-1}=0.00011$) しか検出されず、この値は、スーパーオキシドラジカルを不均化するスーパーオキシドディムターゼ ($10\mu\text{g}\cdot\text{ml}^{-1}$) の添加の影響を受けなかった。したがって、この程度のわずかの活性酸素では藻類等の生育は影響されないと考えられるので、この場合、Kls-205 からの活性酸素の生成の影響は無視できると思われた。

また、天然の鉱物には放射能を持つものがあり、その程度によっては藻類の生育への影響が考えられるので、Kls-205 からの放射能を測定した。その結果、 β 線は $0.4\mu\text{SV}\cdot\text{h}^{-1}$ 、 γ 線は $0.07\mu\text{SV}\cdot\text{h}^{-1}$ (0.000cpm) であり、自然放射線量と同じレベルであった。

3.5 ヒメダカの生育に及ぼす Kls-205 の影響

Kls-205 を 0 (対照) および 10% (w/v) 量含む供試

水 ($\text{OD}=0.015$, クロロフィル-a= $0.0\text{mg}\cdot\text{l}^{-1}$) 各 1 l に、市販のヒメダカをそれぞれ 25 匹ずつ加え、室温でエアレーションを行った。毎日、約 20mg の粉末餌を与え、その生育状況を観察した。その結果、1 回の実験であるが、対照では前項 (3.1) と同様に、日毎に藻類などの増殖により水相が緑色を呈してきたが、ヒメダカの生存数は最初の 1~2 日で 11 匹に急減した後、その後も次第に減少し、8 日後 (クロロフィル-a= $1.97\text{mg}\cdot\text{l}^{-1}$) には、生存数は 0 になった。最初の急減は、よくある新しい水への不適合と過密のためと思われるが、その後の減少は、一般の成書に述べられているように、増殖した藻類などによりえらが塞がり、呼吸が阻害されたためかも知れない。一方、Kls-205 浸漬水の場合、その数は、最初、13 匹まで急減したが、以後の減少は少なく、8 日後 (クロロフィル-a= $0.32\text{mg}\cdot\text{l}^{-1}$) の生存数は 11 匹であった。以上の結果、Kls-205 浸漬水は、藻類等の増殖は阻害するが、ヒメダカの生育への影響は少なく、むしろ未浸漬水よりも適している事が分かった。

4. 考 察

本実験 (室内の回分式実験) において、セラミックス製品の 1 つ (クリーンサンド-205 : Kls-205) に水中の藻類等の増殖を抑制する効果のある事が確かめられた。ただし、肉眼でその増殖がわずかに観察できる程度に藻類が増殖しており栄養源を含むが、清澄な水の場合には 5% (w/v) 量の Kls-205 の添加で効果があったが、既に藻類が多量に増殖し、液相が濃い緑色を呈している状態ではその効果は非常に弱かった。したがって、Kls-205 は、このように水がきれいな場合には、金魚等の飼育水の藻類発生防止に有用であると思われる。さらに、元々微生物等の汚染のほとんどない飲料水や食品製造プロセスの水の加熱や汙過によらない浄化、すなわち、保存中の飲料水中における微生物の増殖抑制にも、操作が簡単で有用と思われる。なお、その安全性については、本研究ではヒメダカの生育についてのみであるが、確かめる事ができた。

Kls-205 の藻類増殖抑制の作用機構は、本実験では解明されなかったが、この原因は Kls-205 による窒素やリンなどの栄養塩類や藻類の光合成に必要な CO_2 の吸着、水中への有害金属イオンや未知の藻類増殖抑制性物質の溶出、スーパーオキシドラジカルのような活性酸素の発生、あるいは、Kls-205 からのベータ線やガンマ線の放射などによるものとは考えられ難かった。しかし、対照実験の 1 つとして、銀製のピーカー中で藻類を増殖させた場合、Ag イオンの水中への溶出量はわずか 0.005ppm (純粋の Ag の 25°C にお

ける溶解度は $0.00028\text{ppm}^{14)}$ に過ぎないにもかかわらず、藻類の増殖は対照の約3分の1に抑えられた。したがって、この場合、Agイオンではなく、Ag個体表面が何らかのoligodynamic action¹⁵⁾を示しているのかも知れない。そして、KIs-205の場合も類似の機構でAgを含む金属酸化物自身に藻類の増殖を抑える作用があるのかも知れない。現在、これらの点について、その細菌やウイルスに対する増殖抑制作用や殺滅作用と共に、検討中である。

謝 辞

クリーンサンド-205は、(株)山喜エンタープライスより提供を受けた。そのご協力に感謝いたします。また、藻類等の同定に関して有益な御助言を賜ったクロレラ工業(株)奥田正男研究統括部長、活性酸素を定量し、種々の御教示をいただいた福岡大学薬学部鹿志毛信広博士、水の構造と動的性質に関して貴重な御助言をいただいた福岡大学理学部山口敏男博士、および試料粒子の平均粒径を測定して下さった福岡大学工学部石蔵利文博士に深謝します。

(原稿受付 1994年7月18日)

(原稿受理 1995年4月24日)

参考文献

- 1) 綿枝邦彦, 久保田昌治 (1992) 新しい水の科学と利用技術 (第3編), pp.167-311, サイエンスフォーラム.
- 2) 鈴木基之, 市川和洋, 酒井康行 (1993) 機能水の細胞培養に与える影響, 造水技術, 20, 36-38.
- 3) 仲山治之, 木内武美, 栗若良臣, 大西克成 (1994) 電気分解酸性水の殺菌効果について, 日本細菌学雑誌, 49, 116.
- 4) 澤井淳, 清水賢 (1994) セラミックスの生物化学的機能としての細菌増殖抑制効果, Petrotech, 17, 402-405.
- 5) 澤井淳, 橋本篤, 清水賢, 五十嵐英夫 (1994) セラミックス粉末の抗菌活性, 日本細菌学雑誌, 49, 115.
- 6) McCord, J. M. and Fridovich, I. (1969) Superoxide dismutase. An enzymatic function for erythrocyte (Hemocuprein), *J. Biol. Chem.*, 244, 6049-6055.
- 7) 日本下水道協会 (1984) 下水試験法: 生物学的試験, pp.383-574, 日本下水道協会.
- 8) Pickett-Heaps, J. D. (1975) Green Algae, Sinauer Associates Inc. Pub.
- 9) King, D. L. (1970) The role of carbon in eutrophication, *J. Water Poll. Control Fed.*, 42, 2035-2051.
- 10) 厚生省 (1992) 水道法に基づく水質基準に関する省令, 平成4年厚生省令第69号.
- 11) US Public Health Service (1962) Drinking Water Standards, USPHS Pub. No. 956.
- 12) Wuhrmann, K. and Zobrist, F. (1958) Investigations of the bactericidal effect of silver in water, *Schweizerische Z. Hydrol.*, 20, 218.
- 13) Woodward, R. L. (1963) Review of the bactericidal effectiveness of silver, *J. Amer. Water Works Assn.*, 55, 881-886.
- 14) 日本化学会 (1984) 化学便覧 (改訂3版), 基礎編II, p. II-177, 丸善.
- 15) 荒木峻, 沼田眞, 和田攻 (1985) 環境科学辞典, p.190, 東京化学同人.