

富山県立大学短期大学部 ○ 奥川 光治
富山県立大学短期大学部 楠井 隆史

1. はじめに

技術革新の進展とともに人工化学物質の使用が増加したことなどにより、微量化学物質による水環境の汚染が問題になっている。これら化学物質を適切に管理するためには環境中での動態を評価することが重要である。本研究は微量化学物質の総括的指標としての変異原性に着目し、その水環境中での動態を解明することを目的としており、今回は変異原性の季節変化特性に焦点を絞り解析した。調査対象は水道水源の貯水池とその流入河川・導水路、ならびに、貯水池とその流域への化学物質の流入経路として重要な降水とした。

2. 調査・分析方法

調査対象の貯水池、河川は、富山県西部の水道水源となっている和田川ダム貯水池、その流入河川である坪野川と和田川および庄川からの導水路である和田川共同水路である。調査地点は Fig.1 に示すとおりである。和田川ダム貯水池では中央部の増山大橋の橋上から表層水の採水を行なった（以後、ダム表層と略記する）。坪野川は正権寺橋付近で、和田川は東別所中村地内で採水を行なったが、本報では和田川のデータのみを使用した。和田川共同水路は庄東第1発電所内で採水を行なった（共同水路と略記する）。和田川ダムの有効貯水量は190万 m^3 であり、滞留日数は1日程度である。貯水池への流入水量は通常約95%が共同水路によるが、降雨時には河川からの流入割合が増大する。流域の土地利用は Table 1 に示すように、森林が66.7%、水田が24.1%などとなっており、流域人口は約2500人である。降水は和田川ダムからおよそ 7.5 km 離れた富山県立大学内で採取した。降水の採取には直径 39 cm のステンレス製ボール 4 個を使用し、雪の場合には実験室で約40℃の湯を用いて溶解した。

調査は予備調査を含めて1993年7月より実施しているが、今回解析したデータは1993年9月から1994年9月までの1年間のデータである。調査頻度は流入2河川、共同水路、ダム表層については週1回を原則としたが、変異原性試験は週1回から月1回程度の間隔でデータが得られるように実施した。降水に関する調査はこの1年間で4回実施した。

調査・分析項目は水温、pH、電気伝導率（EC）、SS、紫外部吸光度（50mmセル、260 nm; E_{260} ）、総COD_{Cr}（TCOD_{Cr}）、溶存態COD_{Cr}（SCOD_{Cr}）、変異原性（Ames test）等である。Ames test はS9mix添加、無添加の両条件で、TA98およびTA100株を用いたブレインキュベーション法により行なった（日本薬学会、1990）。また、Ames test には浦野ら（1994）の手順で濃縮した試料を供した。すなわち、(1)孔径 0.5 μm のグラスファイバーフィルタ

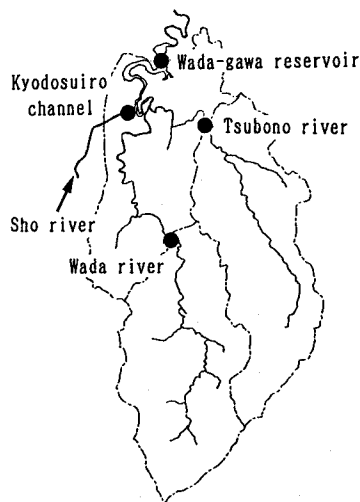


Fig.1 Survey points

Table 1 Land use

	ha	%
Watershed area	2943.4	100.0
Residence & road	128.0	4.3
Paddy field	709.1	24.1
Farm	54.4	1.8
Orchard	0.4	0.0
Wild grass	51.6	1.8
Surface of water	37.3	1.3
Forest	1982.5	66.7

ーで試料を濾過、(2)濾過試料を原則として 4 L 採り、H₂SO₄ (1+100) で pH 2.0 に調整、(3)Waters製の固相抽出カートリッジ Sep-Pak Plus CSP800 に 10 mL・min⁻¹ で試料を通水、(4)DMSO (ジメチルスルホキシド) を 0.15 mL・min⁻¹ で通液し 2 mL に脱離、したがって、濃縮倍率は2000倍である。

3. 調査結果および考察

Table 2 に降水調査の概要と水質値を、Table 3 に降水の変異原性試験の結果を示す。ここに、陽性、擬陽性、陰性の判定はMR値（試料と陰性対照の復帰コロニー数の比）により行なった。すなわち、MR値が2.0以上の場合は陽性、1.5以上2.0未満の場合は擬陽性、1.5未満の場合は陰性と判定した。また、試験日ごとの条件のばらつきを補正するため、復帰コロニー数ではなく陽性物質換算量を表示した。ただし、陽性物質換算量は濃縮試料の最大投与量（100 μL）に対する復帰コロニー数から求めた。S9mix無添加の場合、TA100株では4サンプルとも陽性であり、TA98株では3サンプルで陽性であった。陽性物質換算量でみると、TA100株で最も換算量の大きい94/09/06のサンプルがTA98株では陰性であるなど、両者の傾向は一致しない。これは変異原性を発現する原因物質が調査日ごとに異なっているか、複数の原因物質の含有割合が異なっていることを示している。S9 mix添加の場合、TA100株では2サンプルが擬陽性、TA98株でも2サンプルが擬陽性（1サンプルは欠測）であり、いずれも代

謝活性化をすると変異原性が弱まった。なお、94/09/06のサンプルは通水量が 3.195 L と少ない（濃縮倍率1600倍である）ためTA100・-S9mix以外陰性と判定されているが、濃縮倍率が他と同様2000倍であればTA98・-S9mix、TA100・+S9mixでは擬陽性と判定されると思われる。原因物質と

しては排ガス由来の多環芳香族炭化水素や農薬などが考えられるが、少なくとも12月と2月は使用量からみて農薬が原因とは考えられない。

Fig.2 には和田川、共同水路、ダム表層の変異原性の季節変化を示した。なお、図中の

Table 2 Results of the survey for precipitation

Starting date	93/12/21	94/02/21	94/05/11	94/09/06	
Starting time	15:55	08:50	08:50	12:15	
Ending date	93/12/22	93/02/22	93/05/12	93/09/07	
Ending time	13:20	08:40	09:00	08:40	
Weather	rain-snow	rain-snow	rain	rain	
Precipitation	mm	23.0	13.0	11.0	8.0
Sampling volume	L	11.0	10.0	6.2	4.1
pH		4.7	4.2	4.3	3.5
BC	$\mu\text{S}\cdot\text{cm}^{-1}$	58.4	129	22.2	51.7
Cl ⁻	$\text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$	13.2	28.7	0.477	0.692
SS	$\text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$	1.8	2.6	8.6	2.9
B ₅₀₀		0.103	0.130	0.047	0.041
TCOD _{Cr}	$\text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$	6.73	10.60	8.03	6.20
SCOD _{Cr}	$\text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$	6.73	9.52	4.37	4.74
PCOD _{Cr}	$\text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$	0.00	1.08	3.66	1.46

Table 3 Results of Ames test for precipitation
++ : positive, + : quasi-positive, - : negative

Date	93/12/21	94/02/21	94/05/11	94/09/06
TA98・-S9mix as 4NQO(μg・L ⁻¹)	0.346	0.287	0.735	0.126
	++	++	++	-
TA98・+S9mix as 2AA(μg・L ⁻¹)	0.287	0.407		0.247
	+	+		-
TA100・-S9mix as 4NQO(μg・L ⁻¹)	0.050	0.106	0.110	0.256
	++	++	++	++
TA100・+S9mix as 2AA(μg・L ⁻¹)	0.413	0.805	0.298	0.584
	+	+	-	-

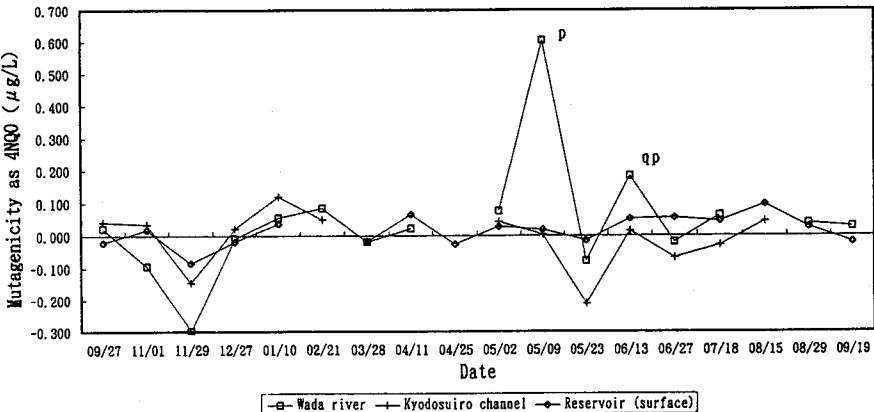


Fig.2 Changes in mutagenicity TA98・-S9mix
p : positive, qp : quasi-positive

プロットに p が付してあるのは陽性であることを, qp が付してあるのは擬陽性であることを示す。変異原性が認められたのは和田川だけであり, TA98・-S9mixの94/05/09で陽性, 94/06/13で擬陽性, TA98・+S9mixの94/08/29で擬陽性と判定された。和田川の上記以外ならびに共同水路とダム表層では陰性であった。和田川のみで変異原性が認められたのは、和田川が小河川で流域の人為的活動の影響をより受けやすいためであると考えられる。これに対し、共同水路は山間部の大流域を源とする清浄な庄川から導水しているため、また、貯水池は大部分が共同水路からの供給水であるため、変異原性が認められなかったものと思われる。Table 4~6 に和田川, 共同水路, ダム表層の水質の年間平均値等を示した。和

Table 4 Water quality of the Wada river (93/9/27-94/9/19)

	SS mg·L ⁻¹	E ₂₆₀	TCOD _{Cr} mg·L ⁻¹	SCOD _{Cr} mg·L ⁻¹	PCOD _{Cr} mg·L ⁻¹
Mean	9.6	0.230	7.26	6.28	1.34
Maximum	42.8	0.452	15.20	10.70	7.19
Minimum	0.8	0.086	2.38	1.94	0.00
Number of data	36	36	34	30	28

Table 5 Water quality of the Kyodosuiro channel (93/9/27-94/9/19)

	SS mg·L ⁻¹	E ₂₆₀	TCOD _{Cr} mg·L ⁻¹	SCOD _{Cr} mg·L ⁻¹	PCOD _{Cr} mg·L ⁻¹
Mean	6.0	0.081	3.10	2.31	0.80
Maximum	15.1	0.145	5.01	4.19	2.49
Minimum	2.1	0.049	1.50	0.49	0.00
Number of data	34	34	33	32	31

Table 6 Water quality of the Wada-gawa reservoir (surface, 93/9/27-94/9/19)

	SS mg·L ⁻¹	E ₂₆₀	TCOD _{Cr} mg·L ⁻¹	SCOD _{Cr} mg·L ⁻¹	PCOD _{Cr} mg·L ⁻¹
Mean	6.0	0.100	3.72	2.82	0.88
Maximum	17.0	0.157	6.85	5.82	2.49
Minimum	1.3	0.066	1.35	0.50	0.00
Number of data	36	36	34	36	34

田川の有機物汚染のレベルが高いことがわかる。Table 2 の降水の水質と比較すると、COD_{Cr}では降水と和田川が同程度であるが、E₂₆₀では降水、共同水路、ダム表層が同程度で和田川より低くなっている。したがって、今回のデータではCOD_{Cr}が高いところで変異原性が認められることがあったといえるが、E₂₆₀では明確なことはいえない。和田川で変異原性が陽性と判定された5月上旬は最も農耕活動が盛んで農薬の使用量が多くなる時期と一致しており、興味深い。この流域で使用量の多い農薬はCNP, クロメトキシニル, プロベナゾール, メフェナセツト, EDDP, チオベンカルブなどであるが、変異原性が報告されているのはクロメトキシニルのみである(不明のものが多)。クロメトキシニルは除草剤エックスゴーニ粒剤の主成分であるが、水には難溶である。

以上のように降水では変異原性が認められることが多いのに対し、河川水、貯水池水ではほとんど変異原性が認められないのは降水中の変異原物質が流出過程において土壤に吸着されたり、分解したりしているためと思われる。

4. まとめ

降水、河川水、貯水池水の変異原性(Ames test)の季節変化特性を1年間の調査により解明して、次の知見が得られた。

- (1) 降水では、S9mix無添加の場合、TA100株で年間を通じて、また、TA98株で1サンプルを除いて陽性であった。S9mixを添加した場合はともに変異原性が弱まった。
- (2) 河川、貯水池では流域の人為的活動の影響をより受けやすい小河川で、5月から8月にかけて変異原性が認められることがあった。

[参考文献]

- 日本薬学会(1990) 衛生試験法・注解。
浦野ら(1994) 水環境学会誌, 第17巻, 第7号, 451-460。