

1. はじめに

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、とくに、本論文では懸濁性物質が変異原物質の輸送に果たす役割を中心に解明した。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、導水路は、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）。和田川では東別所中村地内で採水を行なった。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、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¹⁾。降水は和田川ダムからおおよそ7.5 km 北東に離れた富山県立大学内で採取した。降水の採取には直

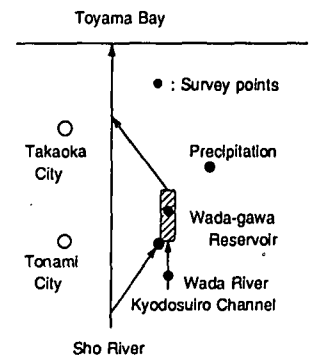


Fig.1 Survey points.

径 39 cm のステンレス製ボールを使用し、雪の場合には実験室で約40℃の湯を用いて溶解した。

本論文で解析したデータは、1993年9月から1994年9月までの1年間の和田川、共同水路、ダム表層の通年調査のデータと1993年12月から1994年12月までの

1年間の降水の通年調査のデータである。調査頻度は和田川、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。降水の通年調査はこの1年間で5回実施した。

調査・分析項目は水温、pH、電気伝導率（EC）、SS、紫外吸光度（50mmセル、260 nm； E_{260} ）、総COD_c（TCOD_c）、溶存態COD_c（SCOD_c）、変異原性（Ames test）等である。Ames test ならびにサンプル前処理の詳細については文献²⁾を参照されたい。変異原性試験の評価基準は Table 1 のとおりとした。

3. 調査結果および考察

3.1 降水

Table 2 に降水の変異原性試験の結果を示す。(1)溶存態のサンプルの場合、S9mix無添加では、TA98株で擬陽性1サンプルを除いて陽性であった。また、TA100株ではすべて陽性であった。S9mixを添加し、代謝活性化をした場合は変異原性が弱まる傾向にあった。(2)懸濁態のサンプルの場合、S9mix無添加では溶存態よりも変異原性が認められることが少なかった。S9mixを添加した場合も同様であるが、94年12月20

Table 1 Evaluation criteria of mutagenicity.

$MR = \text{Revertant colonies of a sample} / \text{Revertant colonies of negative control}$

Symbol	Definition
++	positive, $2.0 \leq MR$
+	quasi-positive, $1.5 \leq MR < 2.0$
-	negative, $0.7 \leq MR < 1.5$
(+)	quasi-positive if the sample volume is 4 L
+†	toxicity after the number of colonies increases ($1.3 \leq MR < 1.5$)
†	toxicity, through a microscope or $MR < 0.7$

日のサンプルでは代謝活性化により変異原性が強まった。懸濁態のサンプルで変異原性が認められるのは懸濁物量が多いときであった³⁾。(3)変異原性を発現す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。

3.2 河川水、導水路水

Table 3 に和田川の変異原性試験の結果を示す。(1)溶存態のサンプルの場合、いずれの菌株でも、また、S9mix 添加、無添加いずれの条件でもほとんど陰性であったが、5月から8月にかけて、陽性、擬陽性、または、Dose-Response 曲線でコロニー数が増加したのち生育阻害が見られる場合が認められた。この時期は農耕活動が盛んで農薬の使用量が多くなる時期であり、興味深い。この流域で用量の多い農薬は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り、CNP、クロメトキシニル、さらには上記以外の使用農薬のうち数種類のものは変異原性が報告されている(不明のものも多い)。(2)懸濁態のサンプルでは変異原性や生育阻害が認められることが多かった。すなわち、S9mix 無添加では、TA98株で多くの場合生育阻害となった。TA100株でも生育阻害やコロニー数が増加したのち生育阻害が見られる場合があった。S9mixを添加した場合は、いずれの菌株でも、擬陽性またはコロニー数が増加したのち生育阻害が見られる場合が少なからず認められた。これらのサンプルはいずれの時期にも認められることが特徴であり、少なくとも農薬以外の物質が関与していることを示している。

一方、Table 4 には共同水路の変異原性試験の結果を示す。溶存態のサンプル、懸濁態のサンプルいずれの場合でも、また、いずれの菌株でも、さらに、S9mix 添加、無添加いずれの条件でもほとんど陰性であった。これは共同水路の水が、岐阜県、富山県の山間部を流下する庄川から平野部に出る手前で取水さ

Table 2 Mutagenicity of precipitation.
Sol.: soluble, Part.: particulate.

Date	TA98 · -S9mix		TA98 · +S9mix		TA100 · -S9mix		TA100 · +S9mix	
	Sol.	Part.	Sol.	Part.	Sol.	Part.	Sol.	Part.
93/12/21	++		+		++		+	
94/02/21	++	-	+	-	++	-	+	-
94/05/11	++	(+)			++			-
94/09/06	(+)	-	-		++	-	(+)	-
94/12/20	++	+	++	++	++	+	+	++

Table 3 Mutagenicity of river water (Wada river).
Sol.: soluble, Part.: particulate.

Date	TA98 · -S9mix		TA98 · +S9mix		TA100 · -S9mix		TA100 · +S9mix	
	Sol.	Part.	Sol.	Part.	Sol.	Part.	Sol.	Part.
93/09/27	-		-		-		-	
93/11/01	-	-		+T	-	-	-	-
93/11/29	-	-	-	-	-	+T	-	-
93/12/27	-	-	-	(+)	-	-	-	-
94/01/10	-	T	-	+	-	-	-	-
94/02/21	-	T	-	-	-	-	-	(+)
94/03/07	-		-		-		-	
94/03/28	-	T	-	-	-	-	-	(+)
94/04/11	-	T	-	+T	-	-	-	-
94/05/02	-	-	+T		-	-	-	-
94/05/09	++	-			-	-	-	+T
94/05/23	-	T	-	-	+T	-	-	-
94/06/13	+	T	-	-	-	T	-	(+)
94/06/27	-	T	-	-	-	-	-	+
94/07/18	-	T	-	-	-	T	+T	+
94/08/29	-	T	+	-	-	-	-	+
94/09/19	-	T	-	T	-	-	-	+T

Table 4 Mutagenicity of conveyance channel water (Kyodosuiro channel).
Sol.: soluble, Part.: particulate.

Date	TA98 · -S9mix		TA98 · +S9mix		TA100 · -S9mix		TA100 · +S9mix	
	Sol.	Part.	Sol.	Part.	Sol.	Part.	Sol.	Part.
93/09/27	-		-		-		-	
93/11/01	-	-	-	-	-	-	-	-
93/11/29	-	-	-	-	-	-	-	-
93/12/27	-	-	+T		-	-	-	-
94/01/10	-	-	-	-	-	-	-	-
94/02/21	-	-	-	-	-	-	-	-
94/03/07	-	-	-	-	-	-	-	-
94/04/11	-	-	-	-	-	-	-	-
94/05/02	-	-	+T	-	-	-	-	-
94/05/09	-	-	-	-	-	-	-	-
94/05/23	-	-	-	-	-	-	-	-
94/06/13	-	-	-	-	-	-	-	-
94/06/27	-	-	-	-	-	-	-	-
94/07/18	-	-		+T	-	-	+T	-
94/08/15	-	-	-	-	-	-	-	-

れ、和田川ダムまで導水されているため、非常に清浄であることによると考えられる。

3.3 貯水池水

Table 5 にダム表層水の変異原性試験の結果を示す。

(1) 溶存態のサンプルの場合、1 サンプルでコロニー数が増加したのち生育阻害が見られる以外は、いずれの菌株でも、また、S9mix 添加、無添加いずれの条件でもすべて陰性であった。これは、前述したように、和田川ダムの流入水のおよそ95%が清浄な共同

水路によるためであると考えられる。(2) 懸濁態のサンプルでは、和田川と同じ傾向が認められ、変異原性や生育阻害が認められた。これは和田川水中の懸濁物質が貯水池流入後も沈殿せず懸濁していたり、あるいは、いったん沈殿・堆積後巻き上げられ懸濁しているためと思われる。

4. まとめ

以上のように溶存態の場合、降水ではS9mix添加、無添加にかかわらず年間を通してほぼ変異原性が認められたのに対し、河川水では5月から8月にかけて、陽性、擬陽性、または、コロニー数が増加したのち生育阻害が見られる場合が認められた。また、導水路水、貯水池水ではほとんど陰性であった。一方、懸濁態の場合、降水では変異原性が認められることは少なかったのに対し、河川水、貯水池水ではS9mix添加の条件で変異原性が認められることが少なからずあった。また、導水路水ではほとんど陰性であった。これらは、降水中の変異原物質が流出過程において分解したり(-S9mix)、土壌に吸着されたり(+S9mix)していることを示唆しており、吸着された変異原物質は土壌の流出とともに懸濁態として流出、流下していると思われる。その間、溶存態の河川水で変異原性が認められることがあるのはおもに農業など流域の人為的活動の影響と考えられる。さらに、山間部の清浄な河川水を原水とする導水路水の場合、溶存態も懸濁態もほとんど変異原性が認められないことから、山間部の降水には変異原性が認められないと思われる。降水の変異原性の地域分布の解明は今後の課題である。流出・流下過程における変異原性の、典型的な変化の様子をまとめると、Fig.2 のとおりである。

- [参考文献] 1) 奥川・楠井(1994) 第31回環境工学研究フォーラム講演集, 85-87.
2) 奥川・楠井(1995) 環境衛生工学研究, Vol.9, No.3, 162-167.
3) 奥川・楠井(1995) 土木学会第50回年次学術講演会講演概要集ⅡB, 1322-1323.

Table 5 Mutagenicity of reservoir water (Wada-gawa reservoir).

Date	TA98 - S9mix		TA98 + S9mix		TA100 - S9mix		TA100 + S9mix	
	Sol.	Part.	Sol.	Part.	Sol.	Part.	Sol.	Part.
93/09/27	-	-	-	-	-	-	-	-
93/11/01	-	T	-	-	-	-	-	(+)
93/11/29	-	-	-	-	-	-	-	-
93/12/27	-	-	-	-	-	-	-	-
94/01/10	-	-	-	+	-	-	-	-
94/03/07	-	-	-	-	-	-	-	-
94/03/28	-	T	-	-	-	T	-	-
94/04/11	-	-	-	+T	-	T	-	-
94/04/25	-	-	-	+T	-	-	-	(+)
94/05/02	-	T	-	-	-	+T	-	+
94/05/09	-	T	-	-	-	(+)	-	++
94/05/23	-	T	-	-	-	T	-	+T
94/06/13	-	-	-	-	-	T	-	-
94/06/27	-	T	-	-	-	T	-	-
94/07/18	-	-	-	-	-	-	+T	+T
94/08/15	-	-	-	-	-	-	-	-
94/08/29	-	T	-	-	-	T	-	-
94/09/19	-	-	-	-	-	T	-	-

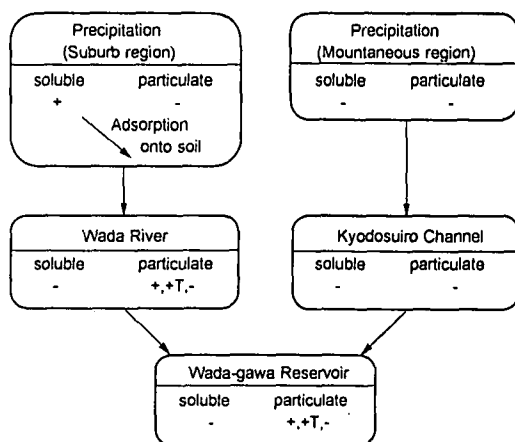


Fig.2 A typical case of transportation and changes of mutagens in aquatic environments (+S9mix).