

懸濁性物質が水環境中の変異原物質輸送に果たす役割

奥川 光治 , 楠井 隆史

(1995年 9 月19日受付, 1995年12月 1 日受理)

Role of particulate matters in transportation of mutagens in aquatic environments

Koji OKUGAWA and Takashi KUSUI

研究論文

懸濁性物質が水環境中の変異原物質輸送に果たす役割

奥川 光治*, 楠井 隆史*

(1995年9月19日受付, 1995年12月1日受理)

Role of particulate matters in transportation of mutagens
in aquatic environments

Koji OKUGAWA* and Takashi KUSUI*

The purpose of this study is to evaluate the role of particulate matters in transportation of mutagens in aquatic environments by measuring mutagenicity of soluble and particulate samples. Mutagenicity (by the Ames test) of precipitation, river water and reservoir water was investigated through a year-round survey and storm event survey. The following results were obtained: (1) Mutagenicity of soluble samples with and without S9 mixture was mostly positive for precipitation all year round, sometimes positive for river water from May to August but mostly negative for reservoir water all year round. (2) Mutagenicity of particulate samples was mostly negative for precipitation but sometimes quasi-positive with S9 mixture for river and reservoir water. (3) These results suggest that soluble mutagens in precipitation were decomposed or adsorbed onto soil in the runoff process, and the adsorbed mutagens flowed out and down with eroded soil. (4) Mutagenicity during storm runoff and snow-melting runoff varied in a short period and this could be attributed to various factors such as sources and components of particulate matters.

Key Words: mutagenicity, precipitation, river, reservoir, particulate matters

1. はじめに

人工化学物質の使用や非意図的な化学物質の生成が、技術革新の進展とともに増加したことにより、微量化学物質による水環境の汚染が問題になっている。とくに、農林業、ゴルフ場、市街地や道路、鉄道などで使用される農薬、あるいは、多環芳香族炭化水素など大気汚染物質の水道水源への流入による健康影響や生態系への影響が懸念されている。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り、数多くの調査研究がなされてきた。

しかし、個々の化学物質を同定することは困難なため、変異原性や DNA 損傷性という総括的な指標に着目した研究も種々行なわれてきている¹⁻⁷⁾。これらの研究の特徴は、おもに河川水中に溶存する疎水性有機化合物、あるいは、対象を絞り多環芳香族炭化水素を、XAD 樹脂やブルーコットンにより吸着・濃縮し、変異原性や DNA 損傷性を解明していることであり、懸濁性物質への吸着は考慮されていない。疎水性有機化

合物が懸濁性物質に吸着していることが考えられることから、それを解明することができれば、環境中での動態をより正確に評価でき、より精度の高いリスクアセスメントや合理的な環境モニタリングの実施のための基礎資料を提供することができる。最近になって、非定量的ではあるが、懸濁性物質への吸着に注目した研究も見られるようになってきた⁸⁾。

本研究は、水環境中における変異原物質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、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

* 富山県立大学短期大学部環境工学科 (Department of Environmental Technology, College of Technology, Toyama Prefectural University)

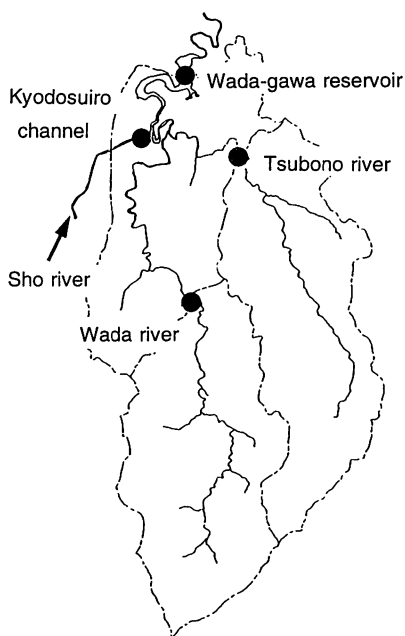


Fig. 1. Survey points.

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。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2,500人である。降水は和田川ダムからおよそ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°C の湯を用いて溶解した。

調査は降水、河川、貯水池の通年調査と河川の降水時調査を実施した。河川、貯水池の通年調査は予備調査を含めて1993年7月より実施している。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。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年間の和田川とダム表層のデータである。降水の通年調査は1993年12月から1994年12月までの1年間で5回実施した。河川の降水時調査は和田川において1994年12月20日から21日にかけて実施した。採水は基本的水質の分析用にオートサンプラーを用いて1時間ごとに行なうとともに、変異原性試験用にマニュアルにて5 L ガラス瓶による採水も行なった。

調査・分析項目は水温、pH、電気伝導率 (EC)、SS、紫外外部吸光度 (50 mm 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 は溶存態ならびに懸濁態のサンプルそれぞれについて、S9mix 添加 (+S9mix)、無添加 (-S9mix) の両条件で、*Salmonella typhimurium* TA98 および TA100 株を用いたブレインキューベーション法 (Fig. 2) により行なった⁹⁾。溶存態のサンプルは、Fig. 3 に示すとおり、原則として4Lを固相抽出カートリッジ Sep-Pak Plus CSP800 (Waters 製) で吸着したあと、DMSO 2 mL に抽出・濃縮し、試験に供した¹⁰⁾。懸濁態のサンプルは、Fig. 4 に示すとおり、原則として濾過水量 4L のグラスファイバーフィルター (ADVANTEC 製, GB140) をジ

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	1962.5	66.7

- (1) Prepare DMSO solution of sample
- (2) Prepare a series of diluted samples, 0.1 mL
- (3) Add 0.5 mL of buffer solution of sodium phosphate or S9 mix
- (4) Add 0.1 mL of suspension of *Salmonella* strains
- (5) Preincubate at 37°C for 20 min
- (6) Add 2 mL of top agar and pour on a minimal glucose plate
- (7) Incubate at 37°C for 48 hrs
- (8) Count the number of revertant colonies
- (9) Check the background lawn through a microscope

Fig. 2. Protocol of Ames test (the Japan Society of Pharmacy, 1990).

- (1) Filtrate sample
4 L as a rule
with a glass fiber filter(ADVANTEC GB140)
- (2) Adjust pH to 2.0
4 L of filtrated sample
with H_2SO_4 (1+100)
- (3) Solid phase extraction
with Sep-Pak Plus CSP800 (made in Waters)
feed sample at $10\text{--}50\text{ mL}\cdot\text{min}^{-1}$
- (4) Desorb
feed DMSO at $0.15\text{ mL}\cdot\text{min}^{-1}$
collect 2 mL of eluent

Fig. 3. Preparation method of soluble samples for Ames test (Urano et al., 1994).

- (1) Filtrate sample
4 L as a rule
with a glass fiber filter(ADVANTEC GB140)
- (2) Freeze-dry a glass fiber filter
- (3) Extract the filter by the Soxhlet method
with 150 mL of dichloromethane
at 45°C , for 24 hrs
- (4) Dehydrate the solvent extract
with anhydrous sodium sulfate
- (5) Concentrate the solvent extract
at 45°C , with a Kuderna-Danish apparatus
- (6) Exchange solvent to 2 mL of DMSO
at 40°C , under a stream of nitrogen

Fig. 4. Preparation method of particulate samples for Ames test (USEPA, 1985).

クロロメタン 150 mL でソックスレー抽出したのち、クデルナーダニッシュ濃縮および窒素ガス吹き付け (40°C) により DMSO 2 mL に溶媒置換し、試験に供した¹¹⁾。溶存態のサンプルも懸濁態のサンプルも検水量を原則として 4L としたのは変異原物質輸送に果たす役割を比較するためである。また、非極性のポリスチレン樹脂である CSP800 による固相抽出でも、ジクロロメタンによる抽出でも、濃縮の対象物質は疎水性有機化合物である。疎水性有機化合物を対象とするのは生体への長期的な影響において重要な生物濃縮をこれらの物質が受けやすいと考えるからである⁸⁾。

変異原性試験の評価基準は Table 2 のとおりとし、試験結果は以下の記号で表示した。すなわち、試料と陰性対照の復帰コロニー数の比を MR 値とし、MR 値 ≥ 2.0 の場合は陽性(++)、 $2.0 > \text{MR 値} \geq 1.5$ の場合は擬陽性(+)、 $1.5 > \text{MR 値} \geq 0.7$ の場合は陰性(-)と判定した。なお、溶存態も懸濁態も、 $1.5 > \text{MR 値}$ で試料量が 4L より少ない場合は 4L に換算して MR 値を求め、MR 値 ≥ 1.5 となる場合には(+)と表示した。また、生育阻害(T)は顕微鏡によ

る background lawn の確認によるか $0.7 > \text{MR 値}$ の場合とした。さらに、誌料の投与量の増加とともに一旦コロニー数が増加し $1.5 > \text{MR 値} \geq 1.3$ となったあと、生育阻害が見られる場合は +T と表示した。

3. 調査結果および考察

3.1 通年調査

(1) 降水

Table 3 に降水の変異原性試験の結果を示す。

Table 3 より以下のことがわかる。(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、1994年12月20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。Table 4 には溶存態サンプルの検水量ならびに懸濁態サンプルを得るための濾過水量とその中に含ま

Table 2 Evaluation criteria of mutagenicity.

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

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

Table 3 Mutagenicity of precipitation.

Date	TA98-S9mix		TA98+S9mix		TA100-S9mix		TA100+S9mix	
	Sol.	Part.	Sol.	Part.	Sol.	Part.	Sol.	Part.
93/12/21	++[2.06]		+[1.63]		++[2.00]		+[1.67]	
94/02/21	++[2.88]	-	+[1.97]	-	++[2.20]	-	+[1.53]	-
94/05/11	++[3.39]	(+)[1.63]			++[2.55]	-	-	-
94/09/06	(+)[1.50]	-	-		++[2.95]	-	(+)[1.51]	-
94/12/20	++[3.60]	+[1.57]	++[2.33]	++[3.20]	++[2.81]	+[1.53]	+[1.81]	++[2.30]

Sol.: soluble, Part.: particulate, []: MR value.

Table 4 Sample weight/volume.

Date	Soluble Particulate	
	mL	mg/mL
93/12/21	4000	
94/02/21	4000	10.5/4000
94/05/11	4000	29.1/3000
94/09/06	3195	8.8/2945
94/12/20	3145	28.9/3385

れる懸濁性物質質量を示した。懸濁態のサンプルで変異原性が認められるのは Table 4 に示すように懸濁物量が多いときであった。

以上のように降水では変異原性が認められたが、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。もっとも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。既往の研究で、降水の変異原性あるいはDNA損傷性を調査したものはあまりないが、たとえば Rec-assay による研究⁸⁾でも雨水(溶存態)にDNA損傷

Table 5 Results of the survey for precipitation.

Starting date	93/12/21	94/02/21	94/05/11	94/09/06	94/12/20
Starting time	15:55	08:50	08:50	12:15	22:00
Ending date	93/12/22	94/02/22	94/05/12	94/09/07	94/12/21
Ending time	13:20	08:40	09:00	08:40	17:30
Weather	rain-snow	rain-snow	rain	rain	rain
Precipitation(mm)	23.0	13.0	11.0	8.0	8.6
Sampling volume(L)	11.0	10.0	6.2	4.1	4.1
pH	4.7	4.2	4.3	3.5	4.1
EC($\mu\text{S}\cdot\text{cm}^{-1}$)	58.4	129	22.2	51.7	61.0
SS($\text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$)	1.8	2.6	8.6	2.9	8.7
E ₂₆₀	0.103	0.130	0.047	0.041	0.220
TCOD _{Cr} ($\text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$)	6.7	10.6	8.0	6.2	8.1
SCOD _{Cr} ($\text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$)	6.7	9.5	4.4	4.7	7.2
PCOD _{Cr} ($\text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$)	0.0	1.1	3.7	1.5	0.8
NH ₄ ⁺ ($\mu\text{gN}\cdot\text{L}^{-1}$)	168	452	262	316	543
NO ₂ ⁻ ($\mu\text{gN}\cdot\text{L}^{-1}$)	<5	<5	<5	<5	<5
NO ₃ ⁻ ($\mu\text{gN}\cdot\text{L}^{-1}$)	103	252	449	623	621
F ⁻ ($\mu\text{g}\cdot\text{L}^{-1}$)	36.4	106	24.2	29.9	55.7
Cl ⁻ ($\text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$)	13.2	28.7	0.477	0.692	6.90
Br ⁻ ($\mu\text{g}\cdot\text{L}^{-1}$)	40.1	83.0	<5	<5	21.6
SO ₄ ²⁻ ($\text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$)	3.73	5.79	1.83	3.62	4.66
Li ⁺ ($\mu\text{g}\cdot\text{L}^{-1}$)	<1	<1	<1	<1	<1
Na ⁺ ($\text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$)	6.69	14.1	0.297	0.182	4.02
K ⁺ ($\text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$)	0.354	0.625	0.203	0.0906	0.327

性が認められている。懸濁態の調査例は今まで皆無である。なお、ガスクロマトグラフ質量分析計等による原因物質の同定を今後実施して行く予定である。

Table 5 に降水の通年調査の概要と降水の水質を示す。特徴的なことを列挙すると、(1) pH は 3.5~4.7 であった。(2) EC, F⁻, Cl⁻, Br⁻, SO₄²⁻, Na⁺, K⁺ は冬季に高い値を示した。これは季節風の影響で海塩粒子が多く含まれることを示している。(3) 溶存態で変異原性の弱かった1994年5月11日、9月6日の E₂₆₀ と SCOD_{Cr} は冬季と比較してやや低い値であった。(4) COD_{Cr} は懸濁態よりも溶存態の方が多かった。これは変異原性試験の傾向と一致する。(5) 既往の研究^{3),5)} では、河川水についてではあるが、従来の水質指標と変異原性、DNA 損傷性との間に相関がないことが指摘されている。本研究で一定の傾向を把握できたのは、同一地点の降水について溶存態、懸濁態というように詳細に変異原性と従来の水質指標を検討したからと思われる。

(2) 河川水

Table 6 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認められる場合があった。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り、CNP, クロメトキシニル, さらに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。これらの結果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。また、試験に供した懸濁性物質と変異原性との関係について見ると、前述したように降水では認められたが、河川水では認められなかった。これは河川水の場合、懸濁性物質の供給源や組成が調査日ごとに変化しているためと思われる。

Table 6 Mutagenicity of river water (Wada river).

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	-	-	-	(+)[1.86]	-	-	-	-
94/01/10	-	T	-	+ [1.74]	-	-	-	-
94/02/21	-	T	-	-	-	-	-	(+)[1.53]
94/03/28	-	T	-	-	-	-	-	(+)[1.56]
94/04/11	-	T	-	+T	-	-	-	-
94/05/02	-	-	+T		-	-	-	-
94/05/09	++[2.96]	-			-	-	-	+T
94/05/23	-	T	-	-	+T	-	-	-
94/06/13	+ [1.56]	T	-	-	-	T	-	(+)[1.58]
94/06/27	-	T	-	-	-	-	-	+ [1.64]
94/07/18	-	T	-	-	-	T	+T	+ [1.84]
94/08/29	-	T	+ [1.59]	-	-	-	-	+ [1.50]
94/09/19	-	T	-	T	-	-	-	+T

Sol.: soluble, Part.: particulate, []: MR value.

Table 7 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	-	-	-	-	-	(+)[1.57]
93/11/29	-	-	-	-	-	-	-	-
93/12/27	-	-	-	-	-	-	-	-
94/01/10	-	-	-	+ [1.51]	-	-	-	-
94/03/28	-	T	-	-	-	T	-	-
94/04/11	-	-	-	+T	-	T	-	-
94/04/25	-	-	-	+T	-	-	-	(+)[1.64]
94/05/02	-	T	-	-	-	+T	-	+ [1.72]
94/05/09	-	T	-	-	-	(+)[1.55]	-	++[2.09]
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	-	-

Sol.: soluble, Part.: particulate, []: MR value.

(3) 貯水池水

Table 7 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、1994年7月18日のTA100⁺-S9mix 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、河川水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。

(4) 流出・流下過程における変異原性の変化

以上のように溶存態の場合、降水では間接変異原性(S9mix 添加の条件で変異原性を示すこと)、直接変異原性(S9mix 無添加の条件で変異原性を示すこと)いずれにおいても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認められる場合があった。また、貯水池水では1サンプルを除いてすべて陰性であった。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、貯水池水では間接変異原性

が認められることが少なからずあった。これらの結果は、降水中に溶存態で存在する直接変異原性の物質は流出過程において分解していること、また、間接変異原性の物質は土壤に吸着していることを示唆しており、吸着した変異原物質は土壤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。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. 5 のとおりである。このように懸濁性物質が変異原物質輸送において大きな役割を

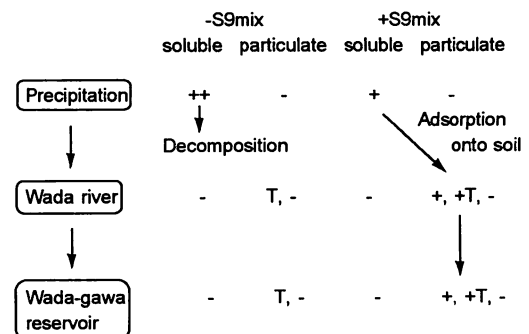


Fig. 5. A typical case of transportation and changes of mutagens in aquatic environments.

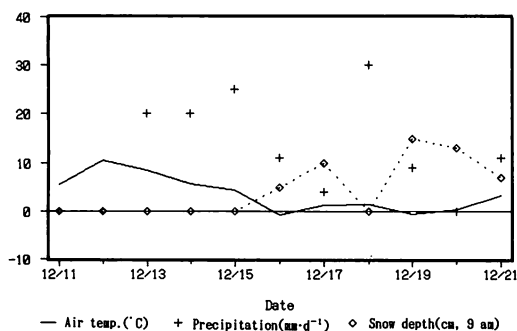


Fig. 6. Weather condition (Tonami, 1994/12).

果たしていると考えられる。変異原物質が懸濁性物質に吸着されるのであれば、河川や貯水池において沈降したり、浄水過程で凝集沈殿により除去されるので、短期的には問題にならないであろう。しかし、土壌・底質中の変異原物質が微生物の作用により変異原性のより強い形態となって水中に放出される可能性¹⁾や魚介類等の水生生物への蓄積を考慮すると、今後さらに検討をしていく必要があろう。

3.2 河川における降水時調査

前節では、降水時の溶存態変異原物質が土壌に吸着し、土壌の流出とともに懸濁態として流出・流下していることが示唆された。さらに、土壌間隙水中に溶存態変異原物質が存在すれば、降水時に河川に流出し、変異原性が時間的に変化することが考えられる。降水時河川水の変異原性、DNA 損傷性を調査した例としては松井らによる調査¹²⁾があるのみであるが、ここでは汚濁負荷流出のピーク時付近で採水を行なっているだけで時間変化までは解明していない。また、溶存

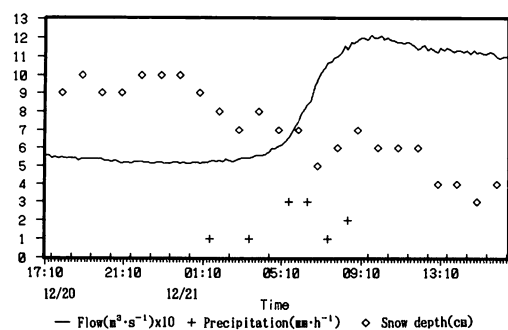


Fig. 7. Flow, precipitation and snow depth during storm runoff in Wada river, 1994/12/20-21. Precipitation and snow depth were measured in Tonami.

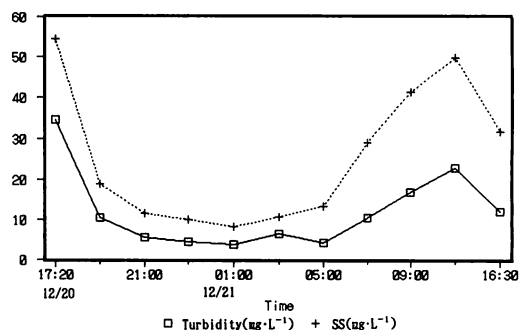


Fig. 8. SS and turbidity during storm runoff in Wada river, 1994/12/20-21.

態の DNA 損傷性物質について調査しているのみである。本研究では降水時河川水の変異原性を、溶存態と懸濁態とに分画して評価し、その時間変化を解明した。

1994年12月20日から21日の和田川における降水時調査に先立つ約10日間の気象の概況を Fig. 6 に示す。降雨、降雪の状況は次のとおりである。すなわち、12月13日から15日にかけて降雨、16日から17日にかけて降雪、18日には降雨により一旦積雪はなくなったが、再び雪に変わり、19日には降雪、調査期間中の21日の未明に降雨が見られた。採水は20日の17時10分から21日の16時30分まで行なったが、その間の流量変化を Fig. 7 に示す。21日3時までは初期の融雪出水、その後9時30分の流量ピークを中心に降雨流出が多くなり、再び徐々に融雪出水が増加したと考えられる。SS (Fig. 8) は調査開始時に最も多く、その後減少していくが、降雨流出により再び上昇した。Fig. 9 は COD_{Cr} と E₂₆₀ の時間変化を示したものである。懸濁態 COD_{Cr} (PCOD_{Cr}) は SS と似た変化であったが、流

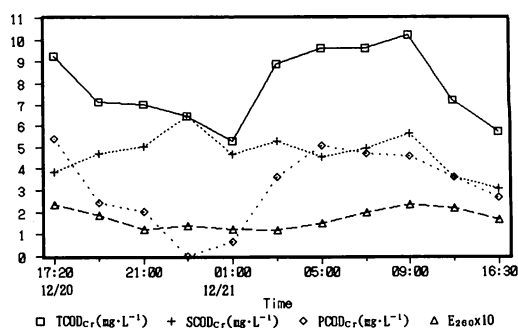
Fig. 9. COD_{Cr} and E₂₆₀ during storm runoff in Wada river, 1994/12/20-21.

Table 8 Mutagenicity of storm runoff water (Wada river, 1994/12/20-21).

Date Time	TA98--S9mix		TA98.+S9mix		TA100--S9mix		TA100.+S9mix	
	Sol.	Part.	Sol.	Part.	Sol.	Part.	Sol.	Part.
12/20 17:10	-	+T	-	-	-	+ [1.63]	-	+ [1.66]
12/21 07:40	-	T	-	-	-	+ [1.86]	-	+ [1.86]
12/21 11:30	-	T	-	-	-	-	-	-
12/21 16:30	-	T	-	-	-	-	-	-

Sol.: soluble, Part.: particulate, []: MR value.

量ピークよりも先に上昇し始める first flush 現象を示した。つまり、降雨流出初期では有機性の懸濁性物質の割合が多いことを示している。TCOD_{Cr} の変化は、SCOD_{Cr} の変化が小さかったため、PCOD_{Cr} と同様であった。E₂₆₀ は溶存態有機物量の指標であるが、SS の変化傾向と類似しており、調査開始時と流量のピーク付近で大きくなった。

Table 8 に示したように変異原性試験は4つのサンプルについて実施した。その結果、溶存態ではいずれの菌株でも、S9mix 添加、無添加にかかわらずすべて陰性であった。懸濁態の場合、TA98 株では S9mix 無添加では生育阻害、S9mix 添加で陰性であった。TA100 株では S9mix 添加、無添加にかかわらず20日17時10分と21日7時40分のサンプルで擬陽性であった。前者は融雪出水初期の SS が多く、しかも有機性の SS の割合が多い時期であり、後者は降雨流出初期の有機性の SS の割合の多い時期である。いずれも疎水性の変異原物質の吸着量が多く、変異原性が擬陽性になったと考えられる。また、この調査時の降水の変異原性は Table 3 に示したとおり、溶存態も懸濁態もすべての条件で陽性または擬陽性であった。それにもかかわらず溶存態の河川水で変異原性が認められないのは、降水中的変異原物質が速やかに土壤に吸着したり、変質したりしているためと思われる。このように降雨流出あるいは融雪出水時の流出・流下過程における変異原性の変化は、前節の通年調査で得られた結果を支持するものであるが、短期間に変動しており、懸濁性物質の供給源や組成など種々の要因が複雑に関与しているものと考えられる。

4. おわりに

化学物質の総括的指標としての変異原性を、溶存態と懸濁態とに分画して評価し、水環境中において懸濁

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。降水、河川、貯水池の通年調査と河川の降水時調査により、得られた知見を要約すると、(1) 溶存態の場合、降水では間接変異原性、直接変異原性いずれにおいても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認められる場合があった。また、貯水池水では1サンプルを除いてすべて陰性であった。(2) 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、貯水池水では間接変異原性が認められることが少なからずあった。(3) これらの結果は、降水中に溶存態で存在する直接変異原性の物質は流出過程において分解していること、また、間接変異原性の物質は土壤に吸着していることを示唆しており、吸着した変異原物質は土壤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。(4) 降雨流出あるいは融雪出水時の変異原性は短期間に変動しており、懸濁性物質の供給源や組成など種々の要因が複雑に関与しているものと考えられる。

本研究は平成5～6年度文部省科学研究費補助金(一般研究(C))を得て実施されたものである。記して謝意を表したい。また、研究の遂行にあたり、1993～1995年のゼミ学生、アルバイトの方々の協力を得た。あわせて感謝の意を表する次第である。

参考文献

- 1) 山内あい子, 松本典文, 中川博之, 大塚孝子, 山崎裕康, 垣内靖男, “ブルーコットン吸着法による河川水中の多環芳香族炭化水素の分析”, 衛生化学 35(4), 283-290 (1989)
- 2) H. Sakamoto and H. Hayatsu, “A simple method for monitoring mutagenicity of river water. Mu-

- tagens in Yodo river system, Kyoto-Osaka", Bull. Environ. Contam. Toxicol. 44, 521-528 (1990)
- 3) 内海英雄, 濱田 昭, 早津彦哉, 橋本徳蔵, 相沢 靖, "河川水中変異原活性の季節・流域変動", 水質汚濁研究 13(4), 227-234 (1990)
 - 4) K. Nakamuro, H. Ueno and Y. Sayato, "Evaluation of mutagenicity of municipal river water concentrated using XAD resin column method", Proc. of the first IAWPRC Intl. Sympo. on Hazard Assessment and Control of Environmental Contaminants in Water, 418-425 (1991)
 - 5) S. Matsui, N. Semba, T. Matsuda and H. Yamada, "A new index Rec-volume for the evaluation of DNA toxic pollution in the water environment", Proc. of the first IAWPRC Intl. Sympo. on Hazard Assessment and Control of Environmental Contaminants in Water, 426-433 (1991)
 - 6) S. Galassi, L. Guzzella, M. Mingazzini, L. Viganò, S. Capri and S. Sora, "Toxicological and chemical characterization of organic micropollutants in River Po waters (Italy)", Wat. Res. 26(1), 19-27 (1992)
 - 7) G.U. Valent, M.I.Z. Sato, M. Cristina, L.S. Coelho, C.A. Coimbra and P.S. Sanchez, "Monitoring São Paulo state rivers in Brazil for mutagenic activity using the Ames test", Environ. Toxicol. Wat. Qual.: An Intl. Jour. 8, 371-381 (1993)
 - 8) 仙波範明, 紺野貴史, 滝上英孝, 松井三郎, "環境水の DNA 損傷性評価と試料濃縮方法についての検討", 環境工学研究論文集 30, 235-242 (1993)
 - 9) 日本薬学会, "衛生試験法・注解", 235-245 (1990)
 - 10) 浦野紘平, 高梨啓和, 金澤伸浩, 藤江幸一, "水道水の Ames 変異原性に関する研究 第1報", 水環境学会誌 17(7), 451-460 (1994)
 - 11) USEPA, "Guidelines for preparing environmental and waste samples for mutagenicity (Ames) testing: Interim procedures and panel meeting proceedings", EPA/600/4-85/058, 175-187 (1985)
 - 12) 松井三郎, 山田春美, 仙波範明, 紺野貴史, 滝上英孝, "疎水性微量汚染物質の DNA 毒性総合評価 (Rec-assay)", 環境技術 23(2), 13-17 (1994)