〈論 文〉

河川水中変異原活性の季節・流域変動 —— 青綿法による検討および従来の水質汚濁指標との比較 ——

内 海 英 雄* 濱 田 昭* 早 津 彦 哉**
橋 本 徳 蔵*** 相 沢 靖****

Seasonal and Basinal Variations of Mutagenicity of River Water

Hideo UTSUMI, Akira HAMADA, Hikoya HAYATSU,
Tokuzo HASHIMOTO and Yasushi AIZAWA

* School of Pharmaceutical Sciences, Showa University, Hatanodai, Shinagawa-ku, Tokyo

** Faculty of Pharmaceutical Sciences, Okayama University, Tsushima, Okayama-shi

*** Kawasaki Municipal Water Works Bureau, Mita, Tama-ku, Kawasaki-shi

**** Water Quality Laboratory, Yokohama Water Works, Kosuzume, Totsuka-ku, Yokohama-shi

Abstract

Seasonal and basinal variations of mutagenicity of Sagami River water were investigated for one and half year with blue cotton, which is a selective adsorbent for *Salmonella typhimurium* TA98 sensitive mutagens, and the variations were compared with those of known water pollution indicators.

Adsorbates on blue cotton from Sagami River water showed mutagenicity toward TA98 strain in the presence of S9 mix, suggesting the occurrence of indirect mutagens in water tested. The mutagenicity depended on season and basin of sampling. Adsorbates in the upper stream showed relatively high mutagenicity in winter but not in summer, while those in the lower stream showed less mutagenicity in all season.

No significant correlation was found between variations of mutagenicity and those of water pollution indicators, such as coliform group, potassium permanganate consumed, BOD, electric conductivity and anionic surfactant. These facts suggest that mutagenicity of river water cannot be predicted with known water pollution indicators. New type of pollution indicator with bio-system such as mutagenicity test may need to monitor the safety of water.

Key words : mutagenicity, Ames-test, water pollution, blue cotton, river water

1. 緒 言

近年、水道原水中に多くの有害微量有機物質が存在することが報告され、これらの物質が水道の処理工程で除去されずに水道水に残存する可能性が憂慮されて

いる。また、塩素殺菌やオゾン処理などの浄水操作により有害性物質を生成する場合もあり^{2),3),4)}、飲料水の安全性を確保する上で、環境水や水道水中の有害微量汚染物質に対する対策が今後重要となるものと考えられる。この対策として、多くの水中微量汚染物質につ

* 昭和大学薬学部 〒142 東京都品川区旗の台

** 岡山大学薬学部 〒700 岡山県岡山市津島

*** 川崎市水道局 〒214 川崎市多摩区三田

**** 横浜市水道局水質試験所 〒245 横浜市戸塚区小雀町

いて変異原性試験のような生物学的試験を総合指標として用いる方法が検討されつつある⁵⁾。しかし、変異原活性を総合指標として確立するためには、まず様々な状態で継続的に変異原性を測定し、従来の総合指標と比較検討することが重要である。

我々はこれまで、多摩川⁶⁾や相模川⁷⁾の河川水について、その変異原性やプロモーター活性、細胞毒性を検討してきた。その結果、相模川河川水に突然変異原活性や細胞毒性が認められ、その強さは試料採取時期により大きく異なることが明らかとなった⁷⁾。このことは、変異原性物質や細胞毒性物質が相模川流域のいずれかで特定の時期に混入あるいは、新たに水中で生じている可能性を示唆している。相模川水系は神奈川県の水道事業体により上流から下流まで定期的に水質調査が行われており、生物評価による総合指標を従来の水質汚濁指標と比較するには大変適当な対象河川水系である⁸⁾。そこで、変異原活性の総合指標としての意義を検討するために、相模川水系の上野原から寒川に至る7地点での突然変異原活性を一年半にわたり測定し、その季節・流域変動を従来の水質汚濁指標と比較検討したので報告する。

ところで、水中の変異原性物質は極めて微量であるため、吸着回収法や溶媒抽出法、逆浸透法等により、水中有機物を濃縮し、その濃縮物を用いて変異原性の評価が行われている^{2)~7),9)~11)}。生物評価法にどの方法が最適かは検討を要するが、これらの方法は広範囲を同時に測定する上で種々の煩雑さがあり適当でない。それに対し、早津らにより開発された青綿¹²⁾は、Fig. 1に示す構造を有する銅フタロシアニンを共有結合させたもので(以下青綿と略す)、平面多環系有機物であるTA98陽性変異原性物質を選択的に吸着するという性質を有する。この方法は、厳密な意味での定量性には欠ける可能性があるものの、青綿を河川水に直接、懸垂放置するという簡便な方法で、広範囲での環境水の変異原性を予試験的に測定するには有用である。そこで、本論文では、この青綿および未処理脱脂綿を用いて、エームス法と組み合わせフレームシフト型の突然変異原活性を測定した。

Fig. 1 Structure of blue cotton

2. 実験の部

2.1 調査地点の概要

調査地点をFig. 2に示す。調査した相模川水系は上流域の山梨県下を桂川と称し、富士吉田市から河口近くの寒川堰の間は水質環境基準の河川類型Aに指定されており、相模川水系水道事業者水質連絡協議会により、総合調査が行われている⁸⁾。桂川流域には小規模な繊維工場が多く、そのほかに、精密機械や電気部品製造工場が存在する。また、この地域は下水道が未整備でし尿のほとんどはし尿処理場で処理され、桂川に放流されている。さらに、住宅地として開発されつつあり、これらの生活雑排水や工場排水により汚濁が進みつつある。

Fig. 2に示したA地点は上野原の桂川橋で、相模湖に近く、湖への流入水質をよく反映しているものと考えられる。B地点は相模湖のダム近くのアバで、湖の最深部に位置するため、今回測定した表層部は流入水の影響が少なく、その水質は湖水を代表していると言える。また、季節変動が著しく、停滞期の5~9月はプランクトンの増殖の影響を受け、循環期の11~3月と対照的な水質となっている。神奈川県いくつかの浄水場はこの湖水を沼本調整池経由で導水している。相模湖からの放流水は一部が沼本ダムで取水され、津久井ずい道を経て津久井分水池に至り、ここで相模川への放流と水道取水が行われる。また、津久井湖に流入した相模湖水は、し尿処理場放流水が混入する道志川を合わせ城山ダムを経て相模川に放出される。C地点はこれらの放出水を主とし、流域の家庭雑排水や2, 3の工場の排水が混入したものである。D地点はC地点に近く、さらに若干の神奈川県相模原市の内陸工業団地の排水が汚濁源として存在するものの、C地点と同様の汚濁度と推定される。E地点は相模原市の家庭排水や工業排水により著しく汚濁されている鳩川の放水路の影響を受けた水域である。F地点は鳩川、中津川、小鮎川の3支川が相模川本川に合流したところから約1 km下流に位置している。鳩川、小鮎川は汚濁が著しく、さらに、内陸工業団地からの工場排水も混入しており、これら汚濁水の水量を考慮すると本地点の水質はかなり悪いものと予想される。最下流のG地点は寒川堰の取水路近くであり、F地点との間には貫抜川と新玉川が流入しており、工業団地、し尿処理場、食肉工場からの排水や都市化による多数の家庭排水の影響が考えられる。

2.2 調査地点の水質

この相模川水系は神奈川県、横浜市、川崎市ならびに横須賀市の上水道の水源であるため、毎月1~2回

Fig. 2 Location of sampling points in Sagami River

各地点の水質調査が行われている。今回の測定地点でも C 地点以外はすべてこれらの事業体の測定対象である。そこで、C 地点以外の 6 地点の汚濁状況を公表データ^{13),14)}の中から、今回調査した 1982 年 4 月から 1984 年 3 月までの 2 年間分について整理し、その季節変動の概要を調べた。

2.3 青綿ならびに未処理脱脂綿による河川水中の変異原性物質の吸着

前報¹²⁾に従い銅フタロシアニンを脱脂綿に共有結合させることにより青綿を調製した。

青綿 1 g 当たり 40 ml のジメチルスルホキシド (DMSO)、2% アンモニア水含有メタノールおよびメタノールで逐次各 6 時間振盪洗浄後、デシケーター中で綿を減圧乾燥した。この綿 1 g をナイロンネットに包み、1982 年から 1984 年にかけて、ネットごと Fig. 2 に示した 7 か所の地点で最も流れの速いところを選び、24 時間流水中につるした。綿を回収後、一旦、脱イオン蒸留水で洗浄した後、0.5% アンモニア含有メタノール 50 ml で 2 回吸着物質を浸出した。2 回の浸出液は合し、ロータリーエバポレーターおよび窒素ガス気流下溶媒留去した。回収物の重量を秤量後、殺菌のためにクロロホルムを一滴下し、窒素ガスで蒸発留去させたのち、全量を 100 μ l の DMSO に溶かしエームス試験に供した。なお、対照として未処理脱脂綿を用

い同様に前処理、吸着、回収実験を行った。

2.4 エームス試験による突然変異原活性の測定

突然変異原活性は前報^{7),12)}に従い *Salmonella typhimurium* の TA98 株を用いたエームス試験により測定した。試料 100 μ l を滅菌試験管中で S9 mix 存在下、菌体懸濁液とともに 37°C、20 分間ブレインキューベートした。この反応液にヒスチジン・ビオチンを含むソフトアガーを加え混合後直ちに寒天平板培地上にひろげ 37°C、48 時間培養した後のヒスチジン非要求性に復帰した集落数を計数した。陰性対照として DMSO を用いた。

変異原活性の評価は各試料における復帰コロニー数と空試験での復帰コロニー数との比で判定し、その比が 2 倍以上のときに変異原活性は陽性であると評価した。

3. 結果および考察

3.1 測定地点の水質の特徴

C 地点以外の 6 地点の水質の特徴をつかむために、今回調査した 1982 年 4 月から 1984 年 3 月までの 2 年間分の公表データ^{13),14)}より、濁度、過マンガン酸カリウム消費量、生物化学的酸素要求量 (BOD)、電気伝導度、陰イオン界面活性剤および大腸菌群の 6 項目について整理し、その季節変動の概要を Table 1 に示した。各数

Table 1 Reported data of water pollution indicator in Sagami River

Sampling Places	A	B	D	E	F	G
Spring (March, April, May)						
Turbidity	11.9 ±13.9	8.1 ±5.5	5.1 ±2.1	16.8 ±6.4	5.4 ±3.0	7.3 ±3.5
KMnO ₄ Consumed	4.6 ±2.2	5.9 ±2.1	3.4 ±0.6	23.5 ±2.6	4.3 ±1.2	5.3 ±1.6
BOD	1.0 ±0.2	2.6 ±1.7	1.7 ±0.4	12.5 ±3.1	1.9 ±0.7	2.3 ±0.9
Electric Conductivity	138 ±12	139 ±14	150 ±11	627 ±49	179 ±24	186 ±24
Anionic Surfactant	0.06 ±0.02	0.04 ±0.01	0.03 ±0.01	0.68 ±0.27	0.07 ±0.03	0.09 ±0.04
Coliform Group (×1000)	28.4 ±20.9	7.5 ±7.6	5.3 ±3.9	199.2 ±155.7	25.3 ±25.5	29.0 ±22.2
Summer (June, July, August)						
Turbidity	26.7 ±38.1	13.4 ±8.5	29.2 ±42.2	5.1 ±0.6	12.8 ±14.3	21.9 ±30.7
KMnO ₄ Consumed	5.2 ±4.4	13.7 ±13.8	3.8 ±1.0	16.3 ±2.8	4.0 ±0.6	5.3 ±1.0
BOD	1.3 ±0.5	4.5 ±1.8	0.7 ±0.3	8.5 ±2.9	1.1 ±0.3	1.5 ±0.4
Electric Conductivity	140 ±11	142 ±16	143 ±14	534 ±39	169 ±24	177 ±23
Anionic Surfactant	0.03 ±0.01	0.04 ±0.01	0.02 ±0.01	0.43 ±0.19	0.05 ±0.01	0.04 ±0.01
Coliform Group (×1000)	27.0 ±12.6	9.5 ±8.3	5.3 ±3.9	294.0 ±156.7	34.3 ±24.1	24.3 ±11.9
Autumn (September, October, November)						
Turbidity	12.9 ±16.3	13.5 ±16.2	11.5 ±11.0	8.6 ±2.3	9.4 ±9.8	14.8 ±16.3
KMnO ₄ Consumed	3.1 ±0.7	4.4 ±1.7	2.7 ±0.4	16.3 ±5.5	3.5 ±1.1	5.1 ±4.0
BOD	0.7 ±0.2	1.5 ±0.7	1.3 ±0.9	8.7 ±3.6	1.4 ±0.8	1.9 ±1.1
Electric Conductivity	132 ±3	129 ±6	134 ±6	430 ±44	159 ±17	159 ±19
Anionic Surfactant	0.02 ±0.01	0.02 ±0.01	0.02 ±0.01	0.39 ±0.18	0.04 ±0.01	0.04 ±0.02
Coliform Group (×1000)	23.1 ±17.1	13.8 ±18.2	8.0 ±4.0	232.7 ±152.5	53.5 ±83.6	21.7 ±13.6
Winter (December, January, February)						
Turbidity	3.0 ±0.9	3.2 ±0.9	9.7 ±14.1	28.0 ±19.1	3.9 ±0.9	6.7 ±3.3
KMnO ₄ Consumed	3.0 ±0.2	2.9 ±0.6	2.5 ±0.7	24.8 ±6.2	3.6 ±0.8	4.4 ±0.9
BOD	1.3 ±0.8	1.2 ±0.2	1.7 ±0.5	15.9 ±8.0	2.4 ±0.3	2.4 ±0.5
Electric Conductivity	143 ±3	144 ±6	152 ±2	565 ±113	199 ±9	210 ±17
Anionic Surfactant	0.05 ±0.01	0.03 ±0.01	0.02 ±0.01	1.13 ±0.76	0.12 ±0.04	0.14 ±0.05
Coliform Group (×1000)	17.8 ±9.6	3.2 ±2.5	8.2 ±9.4	486.2 ±566.8	30.0 ±19.8	60.2 ±53.5

The number indicate the means of 2 years (1987, April-1989, March) and the S. D., respectively.
Data used are cited from the literature 13) and 14).

Table 2 Total yield of adsorbates on blue cotton and untreated cotton from Sagami River water

Places	A	B	C	D	E	F	G
Blue Cotton							
1983 Jun. 23	-	1.0	1.3	1.1	-	-	1.4
Jul. 29	3.3	5.7	5.3	1.0	-	-	0.7
Sep. 04	14.2	12.3	12.1	15.4	-	-	14.4
Oct. 12	2.5	1.9	3.5	2.4	-	-	3.7
Dec. 07	8.1	10.4	9.4	7.5	11.9	8.9	6.7
Other River: (1983 Dec. 07); Futatabi River in Tama-River=6.9mg Oosakibashi in Meguro-River=8.6mg							
Untreated Cotton							
1983 Jun. 23	-	0.9	1.1	1.0	-	-	1.2
Jul. 29	0.9	0.4	2.4	0.6	-	-	3.5
Sep. 04	10.9	15.9	13.2	15.7	-	-	13.8
Oct. 12	2.2	3.1	2.0	3.0	-	-	2.1
Dec. 07	-	-	-	-	-	-	-

The number in the table demonstrates the average of weight of total adsorbates (mg) from 1g of cotton

値が示すように、季節によらず E 地点の汚染の程度が特に顕著で、過マンガン酸カリウム消費量、BOD、電気伝導度、陰イオン界面活性剤、大腸菌群ともに非常に大きな値であった。また、し尿処理場の排水口のすぐ下流である A 地点と、下流域で汚染水が集まっている F、G 地点では、大腸菌群が顕著に高かった。一方、季節変動に関してはそれほど大きな差異はないが比較的夏季の方が冬季よりも汚濁が高い傾向が見られた。

3.2 青綿による吸着回収

Table 2 に青綿および未処理脱脂綿各 1 g により吸着回収された物質量の 2 回平均値を示す。回収重量は測定時期により 1~15mg と大きく異なり、1983 年 9 月では、いずれの採取地点でも、10mg 以上の多量の吸着物が得られた。それに対し、1983 年 6 月においては吸着量は 0.9~1.4mg と 9 月での値の 1/10 以下であった。これらの測定時期での河川の状態は 1983 年 7 月および 9 月は大雨あるいは台風直後で増水期であり、河川流量は増水し、濁度が高かった。一方、12 月はいずれも増水期であったが、他の時期には特筆すべき点はなかった。一方、測定地点間に関しては、季節変動に較べるとその差は小さかった。A 地点から G 地点までは距離約 55km、標高差約 150m あるが、途中相模湖と津久井湖の 2 つの湖があり、正確な河川水の到達時間は予測できない。ナイロンネットの投入部はいずれも十分な流速のある地点を選んでいるが、各地点での流量および綿自身との接触水量は測定していない。したがって、厳密な議論はできないが、吸着量が、増水期、

増水期と無関係であることから、吸着量には接触水量の他に様々な要因が関係しているものと思われる。

青綿と未処理脱脂綿を比較すると、1983 年 7 月を除くと他の 3 回とも全く差がなかった。青綿に比べ未処理脱脂綿の方が吸着回収量が多いものも多数みられ、回収量から見る限り青綿の方がこの河川の変異原を吸着する能率が良かったわけではなかった。銅フタロシアニンは平面多環系化合物と親和性が高いことは知られているが¹²⁾、Table 2 での結果は吸着物が必ずしも銅フタロシアニンと親和性の高いものだけとは限らず、綿そのものへの吸着が大きく寄与しているものと考えられる。

3.3 青綿吸着物の変異原活性

青綿は TA98 に陽性を示すフレームシフト型の変異原性物質を選択的に吸着し、TA100 陽性である塩基対交換型の変異原性物質はあまり吸着しない性質を有する。そこで、青綿および未処理脱脂綿 1 g からの回収物を DMSO に溶かし、そのフレームシフト型の突然変異原活性を TA98 で検討した。Table 3 にヒスチジン非要求性に突然復帰した復帰コロニー数の 2 回平均値を表した。また、DMSO のみによる空試験での結果および比較のため多摩川の二子玉川橋、鶴見川の新羽橋、目黒川の大崎橋での結果も併せて表示した。なお、変異原活性の用量依存性に関して変異原性物質が多すぎる場合、キリングにより復帰コロニー数が減少することが知られている。今回の復帰コロニー数は先の相模川水系の変異原性結果や青綿での岡山市旭川の結果に

Table 3 Mutagenicity of adsorbates on blue cotton and untreated cotton from Sagami River water

Places	A	B	C	D	E	F	G	(-)
Blue Cotton								
1982 Dec. 10	-	152	139	129	-	-	134	55
1983 Jun. 23	-	114	62	69	-	-	80	28
Jul. 29	52	43	56	43	-	-	66	25
Sep. 04	41	42	32	38	-	-	78	25
Oct. 12	86	62	43	63	-	-	80	27
Dec. 07	106	181	142	54	111	64	82	35
1984 Mar. 07	144	184	107	40	73	66	62	26
Other River: (1983 Dec. 07): Futagotamagawa in Tama-River=82 (1983 Dec. 07): Oosakibashi in Meguro-River=82 (1984 Mar. 07): Nippabashi in Tsurumi-River=72								
Untreated Cotton								
1982 Dec. 10	-	110	145	102	-	-	121	
1983 Jun. 23	-	49	30	42	-	-	41	
Jul. 29	30	48	39	35	-	-	44	
Sep. 04	62	38	41	27	-	-	35	
Oct. 12	46	45	60	46	-	-	49	
Dec. 07	-	-	-	-	-	-	-	
1984 Mar. 07	-	-	-	-	-	-	-	

The number in the table indicates the average number of revertants in the plates which were treated with total adsorbates on 1g of cotton. The number in the column (-) is that of negative control which was treated with DMSO only.

Fig. 3 Variation of mutagenicity of adsorbates on blue cotton from Sagami River

Capital letters in the horizontal axis indicate the sampling points shown in Fig. 2. Relative mutagenicity in the vertical axis is the ratio of number of revertant obtained by the treatment with samples to that of negative control (treated with DMSO).

Sampling date: = 1982, December 9,
 = 1983, June 22,
 = 1983, July 28,
 = 1983, September 3,
 = 1983, October 11,
 = 1983, December 6,
 = 1984, March 6.

比べて少なかったが、キリングを示す兆候は各プレートには見いだされなかった。従って、変異原物質が過剰に存在したためにキリングにより復帰コロニー数が少なくなったのではないと判断される。

各測定間での変異原活性を相対評価するために、各試料における復帰コロニー数とその際の空試験での復帰コロニー数との比を求め Fig. 3 に表示した。Fig. 3 から明らかなように、1983年12月と1984年3月のB地点で高い変異原活性が認められた。TA98はフレームシフト型の変異原に対し感受性を示すことから、フレームシフト型の変異原性物質が存在することが示唆される。1984年3月には、さらに上流のA地点でも高い変異原活性がみられた。このように、比較的汚染の度合いが少ないものと考えられた上流域で高い変異原活性が認められたことは、変異原性を示す物質が工業団地からのものではなく、別の汚染源を考える必要がある。続いて、1983年6月でも比較的高い変異原活性が認められたが、7月から9月ではA地点、B地点共にほとんど変異原活性を示さなかった。さらに、我々は相模湖からの水道原水中の変異原性が冬季に高く夏季に低いことを報告した⁷⁾。今回得られた傾向は前報の結果とも比較的良好に合っている。従って、変異原性物質が湖水中で渇水期に濃縮増加したか、あるいは生成された可能性も考えられる。

近郊都市からの生活排水ならび工場排水の排水路で

Fig. 4 Comparison between total yield and mutagenicity of adsorbates on blue cotton and untreated cotton from Sagami River

The values of total yield and mutagenicity are demonstrated in Table 2 and 3, respectively. Symbols indicate the sampling date: $\blacklozenge$ = 1983, June; $\diamond$ = 1983, July; $\circ$ = 1983, September; $\bullet$ = 1983, October; $\square$ = 1983, December.

あるE地点では、その汚濁の程度に比べると予想以上に変異原活性は低かった。変異原活性が低かった理由として、何らかの妨害物質の存在も否定できない。早津らの報告¹⁵⁾によるとエームス法での復帰コロニーの形成は界面活性のある不飽和脂肪酸の存在により阻害される。事実、E地点での試料中には他より陰イオン界面活性剤が多く含まれており (Table 1)、それ以外の妨害物質が存在することも予想される。今回の測定ではプレート上を観察する限り、細胞致死性は認められなかったが、定量的判定のためには、誘発突然変異頻度試験などを加える必要がある。

一方、今回の調査での最下流点であるGは季節に関係することなく、常に陽性を示したが、その程度は空試験での復帰コロニー数の2倍を若干上回る程度であった。恐らく、流入河川水による希釈効果によるものであろう。

未処理脱脂綿からの回収物にもTA98に対する変異原活性が認められた (Table 3)。特に、1982年12月では、青綿に匹敵する変異原活性が見られた。一方、青綿での変異原活性が低い7月、9月には、未処理脱脂綿でも同様に低かった。青綿の方が明らかに高い活性を示したものは1983年6月の試料で、未処理脱脂綿に比べB地点でほぼ3倍程度、CおよびG地点で2倍程度であった。青綿での変異原活性が高かった1983年12月および1984年3月に、未処理脱脂綿の結果がないためはっきりしたことはいえないが、今回の測定結果からみる限り、未処理脱脂綿にもかなりの吸着能があり、Table 3 に示した結果は、必ずしも青綿に特徴的な結

Fig. 5 Relationship between mutagenicity of adsorbates on blue cotton and water pollution

The columns, , , and , demonstrate relative mutagenicity, KMnO_4 consumed, BOD and coliform group, respectively.

Relative mutagenicity is the ratio of number of revertant obtained by the treatment with samples to that of negative control (treated with DMSO). The values of water pollution are demonstrated in Table 1.

果とは断定できないであろう。最近、阪本と早津¹⁶⁾の青綿を改良した青レーヨン法による調査では、岡山市旭川で青レーヨン 1 g 相当の抽出物で1420の復帰コロニーを得ている。この時の未処理レーヨン（白）では 1 g 当り 50 コロニーであることから、岡山県旭川の場合は明らかに、青色色素の能力が発揮されたといえよう。

Fig. 4 に Table 3 の変異原活性と Table 2 の回収試料量との関係を示す。青綿、未処理脱脂綿共に変異原活性と回収試料量の間には比例関係は認められなかった。従って、未処理脱脂綿のみならず、青綿にもかなりの非変異原性物質が吸着しているものと考えられる。

3.4 従来の水質汚濁指標との比較

今回得られた吸着回収量や変異原活性の結果について Table 1 に示す従来の水質汚濁指標との関連性を調べた。吸着回収量に関しては濁度、過マンガン酸カリウム消費量、BOD との間で検討したが、何ら関連性は

示唆されなかった。この傾向は未処理脱脂綿でも同様であった。従って、綿への吸着量にはこれらの汚濁指標では予測できない別の要素が関与しているものと考えられる。

変異原活性に関して、Table 1 に示したもののうち汚濁の総合指標である大腸菌群、過マンガン酸カリウム消費量および BOD の季節変動と共に採水地点毎に Fig. 5 に整理した。しかし、これらの汚濁指標と変異原活性との間にも全く関連性は認められなかった。逆に、従来の指標が低いところで高い変異原活性が認められる場合もあった。従って、これまでの水質汚濁指標で変異原活性を予測することは全く不可能であり、これら毒性物質の存在が見過ごされる危険性が憂慮される。トリハロメタン生成能や全有機ハロゲン化合物量など別の汚濁総合指標と水中変異原活性を比較検討すべきであるが、今回の結果は突然変異原活性などの生物評価を水質の総合指標の一つとして取り入れていく必要性を強く示唆している。

4. 結 論

水道水源となっている相模川水系についてその変異原性の流域・季節変動を青綿および未処理脱脂綿を用いた吸着回収法とエームス法の併用により調べ、次の結果を得た。

- (1) 相模川水系にエームス法で S9 mix 存在下 TA98 に対し陽性の突然変異原活性が認められ、フレームシフト型の間接変異原性物質の存在が示唆された。この変異原活性には顕著な流域・季節変動が認められ、下流域よりもむしろ上流域で高い活性がみられた。
- (2) 突然変異原活性と従来使われている水質汚濁の総合指標との間に全く相関性が認められず、逆に従来の汚濁指標では清浄とされるところで高い変異原活性が見られた。従って、変異原活性は従来の指標からは演繹できない全く性質を異にする総合指標であることが強く示唆された。
- (3) 青綿と未処理脱脂綿との比較で見限り、この河川中には青綿で特異的に吸着される多環性変異原はごく少量しか存在しないことが示唆された。しかし、今回の測定試料中に変異原活性抑制物質が存在する可能性も考慮する必要がある。

今回測定された変異原活性はいずれもその値は小さく、直ちに我々人間に健康影響を及ぼすことは考えにくい。しかし、近年微量汚染物質による水環境の汚染が社会問題になっていることを勘案すると、さらに詳細かつ広範な検討を行い、それらの結果をもとに変異原性試験を含めた生物評価系による新しい水質汚濁指標の採用も考慮される必要が出てこよう。

謝辞：本研究を進めるに当たり，試料採取で多大のご協力を頂いた昭和大学薬学部本間隆志氏，三樹一彦氏に感謝します。本研究の一部は文部省重点領域研究(N13-01)の援助によるものである。

(原稿受理 1990年1月12日)

引用文献

- 1) 中室克彦(1984)水質汚濁物質の変異原性，水質汚濁研究，7, 424-427.
- 2) Glatz, B.A., Chriswell, C.D., Arguello, M.D., Svec, H.J., Fritz, J.S., Grimm, S.D. and Thompson, M.A. (1978) Examination of drinking water for mutagenic activity, *J. Am. Water Works Assoc.*, 70, 465-468.
- 3) 亀井翼，丹保憲仁，田村聡志(1985)塩素及びオゾン処理によって水中のフミン酸類から生成する成分の環境変異原性，水道協会雑誌，54(614)，25-33.
- 4) Sayato, Y., Nakamuro, K. and Ueno, H. (1987) Studies on preconcentration methods for detecting the mutagenicity of organics in drinking water, *Eisei Kagaku*, 33, 328-336.
- 5) 内海英雄，濱田昭(1987)安全性評価を指向した新しい水質指標，水質汚濁研究，10, 86-90.
- 6) 富田基郎，真鍋仁，濱田昭(1980)河川水およびその塩素処理水の変異原物質について，水質汚濁研究，3, 187-192.
- 7) 内海英雄，味蓼史麻，鈴木澄子，中澤裕之，藤田昌彦，濱田昭(1989)水中微量汚染物質のマスとしての生物評価法の確立—細胞毒性，変異原性，発がんプロモーター活性—，衛生化学，35, 273-282.
- 8) 相模川水系水道事業者水質関連協議会(1979)相模川水系総合調査報告書.
- 9) Muraoka, S. and Yamanaka, S. (1982) Mutagenicity in *Salmonella typhimurium* tester strains of XAD-2 ether extract, recovered from Katsura River water in Kyoto City, and its fraction, *Mutation Res.*, 102, 13-26.
- 10) 浦野紘平，芳賀伸之，江本ふで子(1988)水道水等の変異原性試験方法，水道協会雑誌，57(642)，36-49.
- 11) Matsui, S., Yamamoto, R. and Yamada, H. (1989) *Water Sci. Tech.*, 21, 875-887.
- 12) Hayatsu, H., Oka, T., Wakata, T., Ohara, Y., Hayatsu, T., Kobayashi, H., and Arimoto, S. (1983) Adsorption of mutagens to cotton bearing covalently bound trisulfocopper-phthalocyanine, *Mutation Res.*, 119, 233-238.
- 13) 川崎市水道局(1982, 1983, 1984)水質試験年報，昭和57, 58, 59年版.
- 14) 横浜市水道局浄水部水質試験所(1982, 1983)水質試験成績並びに調査報告 第33集，第34集.
- 15) Hayatsu, H., Arimoto, S., Togawa, K., and Makita, M. (1981) Inhibitory effect of the ether extract of human feces on activities of mutagens: inhibition by oleic acid and linoleic acids, *Mutation Res.*, 81, 287-293.
- 16) Sakamoto, H. and Hayatsu, H. (1990) A simple method for monitoring mutagenicity of river water. Mutagens in Yodo River System, Kyoto-Osaka, *Bull. Environ. Contam. Toxicol.*, in press.

論文要旨

河川水中変異原活性の季節・流域変動

—— 青綿法による検討および従来の水質汚濁指標との比較 ——

内海 英雄* 濱田 昭* 早津 彦哉** 橋本 徳蔵*** 相沢 靖****

* 昭和大学薬学部 ** 岡山大学薬学部 *** 川崎市水道局 **** 横浜市水道局水質試験所
 〈水質汚濁研究 Vol. 13 No. 4 (1990) pp.227~234〉

相模川水系についてその変異原活性の季節・流域変動を青綿法とエームス法を併用して調べ、従来の水質汚濁指標との関連性を検討した。青綿による吸着回収物に S9 mix 存在下 TA98 に対する変異原性が認められた。特に冬季の上流域にその活性は強く、夏季では陰性であった。一方、下流域では季節に関係なく弱い変異原性を示した。従来の水質汚濁指標のうち、大腸菌群、過マンガン酸カリウム消費量、BOD、電気伝導率、陰イオン界面活性剤について変異原活性との関連性を比較検討したが、従来の指標では全く関連づけられなかった。著しく汚濁の進んでいる水域の方が逆に変異原活性が低い場合も認められた。これらの事実から、従来の水質汚濁指標では突然変異原性物質の存在が予測し得ないことが明らかとなった。

固定床リアクターによる高温嫌気性分解の総括反応速度解析

笠倉 忠夫* 川瀬 三雄*

* 日本ガイシ株式会社エンジニアリング事業本部開発部

〈水質汚濁研究 Vol. 13 No. 4 (1990) pp.235~244〉

著者らは多孔性セラミックスを担体とした嫌気性固定床型リアクターを開発し、大豆煮汁の高温(54°C)分解反応に適用する研究を行い、実験データを用いて、総括的な速度解析を試みた。

担体に付着生成した生物膜は、定常状態で表面積当たり $0.220 \text{ kgVSS} \cdot \text{m}^{-2}$ (反応器内液中濃度換算 $32.1 \text{ kgVSS} \cdot \text{m}^{-3}$) と高濃度である。溶解性 COD を速度制限基質として速度解析を行うと、本反応の総括反応速度は Moser 式で表され、非線形回帰によって各速度定数を推定した。これらの結果から、反応速度は HRT の減少と共に増加し、反応率 90% 以上を与える最小 HRT は 1.61 d、また、この時の最大反応速度は $36.2 \text{ kg COD} \cdot \text{m}^{-3} \cdot \text{d}^{-1}$ であることがわかった。これらの値は、本リアクターを用いた高温反応によって大豆煮汁が効率よく処理されることを示すものである。