

第8回助成研究ワークショップ

水圏における有害環境物質－有害環境物質の評価と制御Part II－

開催日時：1993/11/25(木)9:50～17:30

会 場：日本生命中之島研究所2階第2教室

主 催：財団法人 日本生命財団

プログラム

9:50	開会挨拶	日本生命財団 理事長 高橋 壽常
	コーディネーター	東京大学環境安全研究センター 教授 中西 準子
9:55	報告 「湿地の水質浄化機能に関する研究～特に窒素と農薬の挙動を中心として～」 '90・'91 助成	筑政夫学・地球科学系 教授 古藤田一雄
10:40	「五大湖における鳥類の形態異常と環境汚染物質の蓄積に関する生態毒性学的研究」 '90・'91 助成	愛媛大学・農学部 助教授 田辺 信介
11:25	「ライフスタイルからみた汚濁源特性とその水環境インパクトに関する研究」 '92 助成	立命館大学・理工学部 教授 山田 淳
12:10	昼食休憩	
13:00	「新しい環境汚染指標 Rec-Volume を利用したDNA損傷性物質の環境動態評価」 '90 助成	京都大学・工学部 教授 松井 三郎
13:45	「有機スズ化合物による海産生物への影響に関する研究 ～特にトリブチルスズ(TBT)汚染による海産巻貝類の imposex の誘起と回復について～」 '91 助成	東京大学・農学部 教授 清水 誠 国立環境研究所 研究員 堀口 敏宏
14:30	「農薬・肥料による地下水汚染の実態調査とその防止法」 '90 助成	岐阜大学・農学部 教授 園田 洋次
15:15	休憩 (15分)	
15:30	総合討論	コーディネーター 東京大学環境安全研究センター 教授 中西 準子 コメンテーター 岡山大学・資源生物科学研究所 教授 青山 勲
17:30	閉会	

<コーディネーター>

中西 準子 (なかにしじゅんこ) 東京大学環境安全研究センター・教授

(略歴) 横浜国立大学工学部化学工業学科卒業、東京大学大学院修了

東京大学工学部助手、ミシガン州立大学客員教授、東京大学工学部助教授を経て、1993年より現職。

(専攻) 環境工学

(著書) 「都市の再生と下水道」(日本評論社)、「下水道－水再生の哲学」(朝日新聞社)、

「いのちの水」(読売科学選書)、「東海道水の旅」(岩波ジュニア新書) 他

湿地の水質浄化機能に関する研究～特に窒素と農薬の挙動を中心として～

古藤田 一雄 (ことうだ かずお) 筑波大学・地球科学系 教授

(略歴) 1933年生まれ。東京教育大学理学部地学科卒業

東京教育大学理学部助手、京都教育大学教育学部助教授、

筑波大学地球科学系助教授を経て、1987年より現職

(専攻) 水文学

(著書)「自然環境 (分担)」(中教出版)

湿地は開発のため急速に消滅する方向にあるが、その環境浄化機能には大きいものがあると言われていいる。本研究では、湿地およびその周辺地域における表流水および地下水中の窒素と農薬の挙動を明らかにすることにより、湿地の持っている浄化機能を評価することを目的とした。

対象地域として長野県の菅平盆地(流域面積は9.96km²)を取り上げた。菅平は冬・夏季の行楽地、高原野菜(主にレタス)の産地として有名であり、現在は農業系の負荷が盆地中央の河川や湿地に集まり流出する。対象物質としては、硝酸性窒素、土壌殺菌剤のPCNB(ペンタクロロニトロペンゼン)を取り上げ、これらの物質の発生から湿地を通過するまでを土壌や大気との関係を検討しながら水の動きと共に追跡した。

河川水、地下水、湧水、降水について、水位、水温、pH、硝酸性窒素、PCNBとその代謝物(PCA、PCTA、PCB)、全有機ハロゲン量(TOX)、一般水質、懸濁物、安定同位対比などを測定・分析した。観測は毎月1回程度で、農薬については散布直後の降雨時に河川水質の連続観測や降水中の濃度の測定も実施した。土壌や粘土鉱物への吸着、生物分解性などは土壌や底泥を採取し、検討した。安定同位体(¹⁵N、¹⁸O)を測定することで、硝酸イオンの濃度の供給源の同定、湿地での脱窒作用の評価、また水の循環経路の推定を行った。菅平における水質は、基本的には土地利用を反映したものとなっているが、農薬の場合は、場所、時間による変動が大きいことが認められた。

河川水の硝酸イオン濃度は河川水としてはかなりの高濃度で、本流に沿っては上流から下流に向かって低下する傾向がみられる。支流では、土地利用により支流ごとにかんりのばらつきがみられる。畑地の下流端の地下水では、いずれも100mg/l前後の硝酸イオン濃度を示した。また、湿地内の地下水については、外周部の井戸では硝酸イオンが多量に検出され、変動も大きく認められたが、内部では硝酸イオンがかなり低濃度となる。今回、深井戸についても分析したが、硝酸イオンについてはほとんど検出されなかったが、TOXについては時折検出された。

湧水の硝酸イオン濃度は上流部の土地利用に影響され、畑地の場合はかなり高濃度になるが、森林などの場合はかなり低濃度となる。

PCNBについては、一支流で12μg/lという高濃度が観測された。地下水については今回の観測では最高0.021μg/lと比較的低かったが、PCNBを使用していた1989年7月には5.5μg/lを観測した井戸もある。PCNBの濃度は、散布時期直後に高くなる傾向がある。分解代謝物のPCAでは、最高濃度は1μg/l程度であるが、低濃度期や地下水ではPCNBよりも濃度が高いことが多い。PCNBは湿地のような還元状態では分解され易いが、分解代謝物のPCAの場合は逆に還元状態では分解し難く、残留性が高いことが生分解試験からも裏付けられた。

PCNBの粘土鉱物への吸着実験では、モンモリロナイトやベントナイトでは大きな値を示したが、黒ボク土で主要なアロフェンではそれほど大きくなかった。

降雨流出時の水質観測から、流量の増加とともに懸濁物などと同様にPCNBとTOXの濃度も増加することが観測され、PCNBなどはかなりの部分が土壌に吸着あるいは付着した形で流出することが示唆された。一方、硝酸イオンは流量の増加と共に濃度が減少する傾向を示したが、降雨後の減水時にやや増加するような傾向も示した。従って、硝酸イオンは地下水、あるいは表層付近を通過してくる地中水により主に運ばれてくるものと考えられる。

湿地の浄化機能については、上流から下流の4地点での濃度と比負荷量（単位面積当りの負荷量）、硝酸イオンと一般水質の関係から検討した。硝酸イオン、PCNBとも基本的には上流から下流へ向かって濃度、比負荷量とも減少しているが、最下流で流入支川、土地利用の関係で増加を示している。特に、最下流部では湿地の面積が少なくなることも大きな要因と考えられる。δ¹⁵N値は、変動が大きく上流から下流へと規測的に変化しないが、人為的影響の少なく、基底流出となる冬季には脱窒が行われていることが推定されるような増加傾向がみられた。地下水の硝酸イオンと一般イオンの変化からは、湿地内ではある程度浄化が進行すると考えられる。しかし、湿地内と河道内でどの程度の浄化が生じているのかは判定できなかった。

五大湖における鳥類の形態異常と環境汚染物質の蓄積に関する生態毒性学的研究

田辺 信介 (たなべ しんすけ) 愛媛大学農学部 助教授

(略歴) 1951年生まれ。愛媛大学農学部農芸化学科卒業、愛媛大学大学院修了
愛媛大学農学部助手を経て、1988年より現職。

(専攻) 環境化学

(著書) 「海と地球環境—海洋学の最前線 (共著)」(東京大学出版会)、

「海の哺乳類 (共著)」(サイエンティスト社)、「潮目の科学 (共著)」(恒星社厚生閣) 他

1. はじめに

北米大陸の五大湖では、1960年代以来鵜やアジサシなどの野生鳥類に脱脳症、浮腫、交叉嘴、蟹足、二重胚などの異常が多発し、海産哺乳類の大量変死事件と並んで世界的に大きな関心を集めている。こうした鳥類の異常は五大湖の化学汚染に原因があるとみられているが、化学分析の情報が乏しいため関係機関は事態の対応に苦慮している。米国やカナダの専門家は、史上最強の人工有機毒物として知られるダイオキシン (PCDD) に加えポリ塩化ビフェニール (PCB) の中の強毒性成分、コプラナPCBにとくに注目しており、この種の物質による汚染の実態把握と毒性影響の機序解明が望まれている。

そこで本研究では、米国研究者と共同で五大湖産鳥類の異常発生の実態調査、有害物質の残留分析、薬物代謝酵素系の生化学分析などを実施し、水鳥類の形態の異常が強毒性の人工有機化合物の蓄積と関わっていること、またその毒性発現は薬物代謝酵素系の誘導を介した生理機能の攪乱であることなどについて実証を試みたので報告する。

2. 汚染の実態

まず卵の残留分析を試みたところ、およそ80種の有機塩素化合物が検出された。なかでも殺虫剤のDDT化合物と工業用材料として利用されたPCBの汚染が最も顕在化しており、五大湖が世界でも有数の環境汚染地帯であることをあらためて確認できた。さらに、コプラナPCB、PCDDなど強毒性物質の分析結果では、オルソ位に一つ塩素原子の置換したモノオルソコプラナPCBが最も高い濃度で検出され、ついでオルソ位に塩素の置換していないノンオルソコプラナPCBの蓄積が認められた。検出されたダイオキシン類の異性体は、いずれも2, 3, 7, 8-位に塩素原子が置換した毒性の強い成分であったが、その残留濃度はコプラナPCBより明らかに低値であった。

3. 有害物質の蓄積量と毒性影響

この種の有機塩素化合物の生体影響を2, 3, 7, 8-TCDD (四塩素化ダイオキシン) 換算の毒性値 (TEQ) を用いて評価したところ、汚染地域で最も高い値が得られ、その90%以上を3, 3', 4, 4', 5-PCBと2, 3, 3', 4, 4'-PCBが占めた。さらにミミヒメウについて毒性値の地域比較を試みたところ、死亡卵・死亡奇形および未発生卵の出現率と総ダイオキシンのTEQ値との間に関連性が認められた。また同様な関係は、コプラナPCBのTEQ値と生存奇形の発生率との間でも観察された。しかしその他の有機塩素化合物と異常発生率の間には、明瞭な関係は認められなかった。このことより五大湖産鳥類の異常には、強毒性の有機塩素化合物が深く関わっていること、とくにコプラナPCBが影響の主役を担っていることなどが推察された。

4. 毒性発現の機序

ところでダイオキシンやコプラナPCBは、強力な薬物代謝酵素誘導剤であることが知られている。こうした有機塩素化合物によって誘導された酵素は様々な物質を代謝活性化し、これがガンや奇形に結びつくといわれている。そこで渡り行動を営むミミヒメウと留鳥のセグロカモメについて肝臓中の薬物代謝酵素活性を測定し、PCB蓄積量との関係を調べた。まず毒性影響との関わりが示唆されているEROD (ethoxyresorufin O-deethylase) の活性を調べたところ、五大湖の汚染地帯で捕獲したミミヒメウではPCB蓄積量と有意な相応関係が認められ、強毒性成分による本酵素系の誘導が明らかとなった。一方留鳥のセグロカモメの場合、地域や時期によるPCBの蓄積量およびEROD活性の変動は小さく、有害物質によるこの酵素系の誘導は起こっていないものと考えられた。またその他の酵素系の活性も測定したところ、興味深いことにセグロカモメはミミヒメウに比べ誘導されている酵素系が少なく、有害物質によって通常誘導される酵素系が本鳥種の場合遺伝的に欠落しているものと推察された。これまでの研究によると五大湖産鳥類の異常の大半は卵の発生過程で生じ、ミミヒメウの有害物質蓄積量はセグロカモメに比べ少ないにもかかわらず、異常の発生率は高いことがわかっている。本研究で明らかのように、ミミヒメウには多様な薬物代謝酵素系が存在し、その一部はコプラナPCBのような微量の有害物質によって強く誘導されている。類似の作用は卵胚の発生過程でも予想され、ミミヒメウでは誘導されたP-450分子種が性ホルモンなどの生理活性物質を阻害したり、共存する変異源を代謝活性化し標的臓器に異常をもたらすなどさまざまな悪影響をおよぼしているものと推察される。ところがセグロカモメではこうした酵素系が欠落しているため、高濃度の有害物質が蓄積してもその誘導は起こらず、結果的に毒性影響は顕れにくいことになる。本研究では、こうした敏感・鈍感のちがいに薬物代謝酵素系の誘導の有無が関わっていること、また鳥類のもつ酵素系の多様性や欠落の状況も有害物質の毒性影響を決める重要な要因となっていることを示唆できた。

5. まとめ

以上の研究により、(1)五大湖産鳥類の異常に強毒性の有機塩素化合物とくにコプラナPCBが深い関わりをもつこと、(2)強毒性物質による薬物代謝酵素系の誘導が異常の引き金になっていること、(3)薬物代謝酵素の種類と機能の多様性が、有害物質に対する生物の感受性を決めていること、などを明らかにすることができた。有害物質の蓄積が薬物代謝酵素を誘導し、そのことが異常の発生に関わっていることを野生生物で指摘した例は最初と思われ、今後この成果が生態系本位の有害物質対策に生かされることを期待している。

ライフスタイルからみた汚濁源特性とその水環境インパクトに関する研究

山田 淳 (やまだきよし) 立命館大学理工学部・教授

(略歴) 1941年生まれ。京都大学工学部衛生工学科卒業、京都大学大学院修了、
京都大学助手、立命館大学理工学部助教授を経て、1978年より現職

(専攻) 地域環境工学

(著書) 「衛生工学」(鹿島出版)、「都市環境の創造」(法律文化社)

1. 研究の背景と目的

社会の変化と環境保全施設の整備によって水環境は変化する。そして、水の安定性や充足性に対する意識の変化によって水環境への要求も変化する。現在、水環境へのインパクトを小さくする手段として下水道の建設が進められており、地域によっては大きな効果をもたらしているが、下水道の普及には、なお長い年月を要するだろうか、下水道が普及しても十分除去できない汚濁負荷があるだろうかといわれている。また、社会の変化を、汚濁物の発生と受水域への排出としてみると、人間のライフスタイルの変化と深く関わっていることも明らかである。

かねてより、ライフスタイルと関連づけながら水需要の構造を明かにし、需要予測法を開発して、水資源開発計画や水道計画に適用してきた。また一方、下水道整備途上や完成後の水質汚濁問題について。都市域での環境汚濁物の現存特性や流出特性を検討してきた。今回の研究は、これらの成果を利用して、ライフスタイルから水環境へのインパクトまで、おおまかではあっても一連のフローとして関連づけ、環境管理政策を考える一助となることを目的としている。

2. ライフスタイルと水利用

急激に増加してきたわが国の水需要は、石油ショックでその増加が鈍るとともに、その後の異常渇水で節水型社会の提起があつたにもかかわらず、依然増加基調にある。しかも、増加の大半は生活用水であり、総水量だけでなく一人当りの使用水量も増加している。その要因を調査したところ、核家族化の進行や水利用機器の普及によるものの他に、水利用行動の変化がかなり寄与していることが分かった。

とくに、風呂、シャワー、洗面、手洗い、洗濯、皿洗いなど、健康、衛生と関連する利用の変化が大きい。しかも、その利用が個性化しており、利用回数での個人的なばらつきが大きく、また、利用時間もばらつくため、全体としての使用水量も多くなっている。一方、女性の社会進出やグルメ志向などで、家庭以外で使われる都市活動用水の利用も増えているが、事業所の水利用合理化などでまだあまり目だつてはいない。

3. ライフスタイルと汚濁発生

生活の場から出る廃棄物が水に混入して排水となるとき、野外に廃棄されたり空から供給され、道路、屋根、空地などに現存する汚濁物が降雨で流出するとき、水環境に影響を与えることになる。し尿はともかく、調理や食後の後始末において、食事として摂取された残りの食品はすべて廃棄物として、ゴミ袋に入るか排水に含まれて出ていく。そしてここ2~30年の間に最も変化したのは、生活の利便性と健康・衛生保持のために使われるようになった化学物質の種類とその使用量である。洗濯、風呂・シャワー、食器洗浄、洗面・手洗、掃除など多くの用途で洗剤が使われている。また、健康・美

容や消毒、殺虫剤として使用されているものもある。これらの化学物質の中には、直接水を使わないものもあるが、最終的にはその一部が水に混入してくるものが大半である。さらに、自動車の普及は、規制があるとはいえ排気ガスの増加につながった。これらの汚濁発生はすべて消費のライフスタイルと環境保全に配慮したライフスタイルのバランスによって大きく支配される。汚濁のタイプ別に発生のメカニズムを定量化することが課題である。

4. 発生汚濁物の分解と処理・処分

特定汚濁源で下水道に流入する場合には、その分解、処理特性の検討が必要である。一般的な下水処理は、浮遊物の除去や分解しやすい有機物の除去を目的とし、最近では、これに窒素やリンを除去するプロセスを追加しているケースが大半であるため、今後さらに分解を促進したり特別な除去を行うための新しいプロセスの追加、現行システムへの大きな負荷増がある場合のあり方などについて検討が必要である。現在、栄養塩素、洗剤、油類について検討している。また、低濃度で自然域へ排水される場合の分解特性、ドライクリーニング等の溶剤、殺虫剤、油類などの非特定汚濁となりやすい化学物質の自然界での挙動の把握が必要である。分解、処理が期待できない場合には、最終受水域までの過程で汚濁物をカットする必要がある。家庭での排出削減、非特定汚濁に転化しないような管理、非特定汚濁負荷の除去などの施策が必要である。ここではそれぞれの効果について検討した。家庭での排出削減の効果が大きいのは当然であるが、道路にある非特定汚濁負荷の除去の効果も無視できないことがわかった。この問題について、わが国の道路管理者の関心は低いですが、欧米では関心が高くすでに国際全議が継続的に開かれている。

5. 非特定汚濁負荷の現存・流出特性

下水道や下水道類似施設の整備が進んでもなお、下水道の未整備区域、合流式下水道の越流水、分流式下水道の雨水分など、処理されることなく水環境に直接インパクトを与える要因は少なくない。降雨とともに都市域から流出する汚濁物の実態を降雨毎に実測して、都市域に堆積している汚濁物が降雨の間隔と強さによってどのように流出するのかをモデル化し、非特定汚濁負荷の影響の大きさを検討してきた。また同時に、都市域に堆積している汚濁物の現存量とそこに含まれる有害物質の量を継続的に測定し、晴天時における堆積の増加と降雨時の流出による堆積の減少の実態を明らかにしてきた。

その結果、下水道に取り込まれる特定汚濁負荷と比較して非特定汚濁負荷のウエイトがかなり高い汚濁物質、有害物質のあることが分かり、都市域についても非特定汚濁問題を検討すべき段階にきていることを改めて認識した。

新しい環境汚染指標Rec-Volumeを利用したDNA損傷性物質の環境動態評価

松井 三郎 (まつい さぶろう) 京都大学工学部 教授

(略歴) 1944年生まれ。京都大学工学部衛生工学科卒業、テキサス大学オースティン校大学院博士課程修了、金沢大学建設工学科助教授を経て、1987年より現職

(専攻) 環境衛生工学

(著書) 「新体系土木工学 (環境保全1)」(技報堂出版)、「環境工学のための化学」(森北出版)、「環境衛生工学研究法」(技報堂出版)、放送大学「土木工学」他

1. はじめに

都市活動、生産活動等によって排出された汚水は、下水処理施設によって浄化され、環境に放出される。人間の健康や生態系の保護という観点からみて問われる問題は、下水処理施設は、はたして下水中の毒性物質を十分安全なレベルまで除去、無害化する能力を有しているのか否か、と云うことであろう。我々のグループでは、突然変異の原因となるDNA損傷に注目し、その定量的な測定法として、枯草菌Rec-assay法を用いて、河川や下水、し尿処理水などのDNA損傷性を評価してきた。以下にその成果を述べたいと思う。

2. 実験方法

(1) 環境水の濃縮方法

環境水をRec-assayに供するときには一般的に感度が不足するため、試料水を濃縮する必要がある。我々は、環境中で生物濃縮され易いと考えられる、非極性の毒性有機化合物を濃縮することを目的として、XAD-2樹脂を用いた固相吸着法によって濃縮した。

(2) 枯草菌Rec-assay法

対数増殖期にある枯草菌のRec+菌とRec-菌をそれぞれ 4×10^5 /ml、 8×10^5 /mlとなるようにANTIBIOTIC MEDIUM3 (DIFCO社) で希釈し菌液とする。0.3mlの菌液に0.1mlのリン酸緩衝液と、純水で適宜希釈した被験試料を0.6ml加え、L字管内で1時間37°Cでインキュベートした後、5mlのANTIBIOTIC MEDIUM3を加え、37°Cで振とう培養し、Control (被験物質の代わりに純水を0.6ml加えたもの) の菌数が 5×10^7 になった時点で培養を止め、L字管の濁度を測定する。controlの濁度を生存率100%と換算し、横軸に被験物質の濃度、縦軸に生存率をプロットした生存率曲線を、Rec+菌、Rec-菌それぞれについて作製した。

3. 実験結果

図-1に琵琶湖一淀川水系の河川水のDNA損傷性を調査した結果を示す。琵琶湖疏水取水口のRec-volume値21に比べて、淀川の下流域ではその約70倍高い1427という、かなり高いRec-Volume値が観察された。このことは淀川の下流域でDNA損傷性物質による汚染が進んでいることを示している。図-1の調査地点7のRec-Volume値は489で、地点6の値である81よりもかなり高くなっているが、この地点6と7の間には、京都市の大半の下水を引き受けている鳥羽下水処理場が立地している。これらのことから、この下水処理場では、下水中のDNA損傷性物質の除去、無害化が不十分であるということを示唆することができるだろう。

図-2は標準活性汚泥法によって約100,000m³/日の下水を処理している、地方中核都市K市の終末処理場の最初沈澱池越流水と最終沈澱池越流水のTOCとRec-volume値をグラフに表わしたものである。標準活性汚泥法によって、TOCは53%除去されているが、Rec-volumeは27%しか除去されていない。また、データは示さないが、初沈越流水よりも終沈越流水の方がRec-volume値が高くなる現象も観察されている。従って、このデータからも、DNA損傷性物質を除去するためには、標準活性汚泥処理だけでは不十分であるということが言える。

図-3はし尿処理場から採水したサンプルのTOCとRec-volumeを一示してある。この処理場では日に80Mの収集し尿の処理を行なっている。収集された生し尿は、生物処理、化学処理された後、オゾン処理、砂ろ過を経て放流される。①調整タンク中の生し尿②生物・化学処理後の越流水、及び③オゾン処理、砂ろ過後の放流水をそれぞれサンプリングして、Rec-assayに供した。まず、生し尿のRec-volume値は非常に大きく、生し尿中には強いDNA損傷性物質が存在していることが示唆された。エームス法では検出しにくい生し尿中の変異原物質も、Rec-assayでは容易に検出することができた。この処理プロセスにおいては、TOCは最終的に99%以上除去されており、Rec-volume値も90%近く除去されているので、この処理法はDNA損傷性物質を除去する上でも、一応有効であると考えられる。ところが、最終的な放流水ですら、Rec-volume値が239を示しており、DNA損傷性物質のさらなる除去のためには、さらに有効な処理プロセスの開発、導入が必要かと考えられる。

4. 考察

以上で述べてきたように、Rec-volumeを指標に汚染のレベルと処理効率をながめると、淀川下流のRec-volume値は大変高く、京都市の下水処理水の影響に加えて別の汚染源の存在が考えられる。また人間の生し尿中にもDNA損傷性物質が大変多く含まれていることがわかり、下水処理水の目標と、飲料水の安全レベルを考える上で、Rec-volumeは利用可能な水質指標、と考えられる。今後DNA損傷性物質の発生源を同定し、その発生を抑制するような努力もはらわなければならないであろう。

有機スズ化合物による海産生物への影響に関する研究

～特にトリブチルスズ (TBT) 汚染による海産巻貝類の imposex の誘起と回復について～

清水 誠 (しみず まこと) 東京大学農学部 教授

(略歴) 1935年生まれ。東京大学農学部水産学科卒業、東京大学大学院修了、
東京大学農学部助手、助教授を経て、1987年より現職

(専攻) 水産資源学、海洋生態学

(著書) 「海洋の汚染」(築地書館)、「水産生物と環境 (共著)」(大日本図書)、
「水産資源学 (共著)」(東京大学出版会) 他

堀口 敏宏 (ほりぐち としひろ) 国立環境研究所化学環境部研究員

(略歴) 1964年生まれ。東京水産大学水産学部水産養殖学科卒業、東京大学大学院修了、
1993年より現職

(専攻) 生態系毒性学、水産学

(著書) 「有機スズ汚染と水生生物影響 (共著)」(恒星社厚生閣)

船底塗料等として広く用いられてきた有機スズ化合物による海洋汚染が世界的に問題となっている。有機スズは水生生物に対する毒性が強く、とりわけ顕著なものが巻貝類に対する imposex の誘導である。imposex とは雌に雄性生殖器官 (ペニスと輸精管) が形成され発達する一連の症状を指し、不妊化を伴うため個体群の減少を導く。欧米では1969年の発見以降注目されてきており、1993年8月末現在、世界各地から68種について報告されている。日本ではトリブチルスズ (TBT) とトリフェニルスズ (TPT) が使用され、両者による汚染が進行していたが、imposex に関する報告がきわめて少なかった。そこで以下の諸事項を検討した。

1. 日本産海産巻貝類の imposex の出現状況

わが国沿岸性の代表的巻貝38種の imposex の出現状況を調べたところ、30種 (新腹足目24種と中腹足目6種) で imposex が確認された (1993年10月現在)。中腹足目の種における imposex はこれまでに報告例がなく、本研究が初めてである。したがって imposex は新腹足目の種だけでなく中腹足目の種にも発生し得る現象であると推察された。

2. イボニシとレイシガイにおける imposex 出現状況の全国調査

並びに疫学的検討1990年5月から1992年10月までの主として夏期に全国32地点でイボニシとレイシガイを採集し imposex の出現状況を調べたところ、佐渡・相川の一地点を除き、全地点で両種共 imposex の出現率が100%あるいはほぼ100%であった。imposex の症状の重さは、油壺周辺や下田、浜名湖、鳥羽周辺及び下関や福岡などの地点で高かった。産卵不能個体の出現率も上記の各地点でかなり、またはきわめて高く、その他の地点では確認されなかった。これらはいずれもマリーナや漁港の近くあるいは船舶航行量の多い海域であった。またマリーナ等近づくとつれ形態異常の程度も産卵障害を持つ個体の割合も著しく高くなる傾向が認められた。また上述の地点で採集された個体の有機スズ含有量はいずれも高い傾向があり、その最大値は魚介類における既報値より高かった。さらにTBTとTPTの間で相関係数が0.857~0.966ときわめて高かった。この高い正相関は魚介類では初めて認められた。またその含有量

は雌において雄よりも有意に高かった ($P < 0.05$)。体内含有量とimposex症状との関係から、TBTとともにTPTについてもimposex症状との関連性がうかがえた。

3. imposexを誘導する有機スズの化学種と発症限界濃度に関する実験的検討

TBTとTPT及びそれぞれの代謝物併せて6種の有機スズをイボニシに筋肉注射してペニス伸長に及ぼすそれぞれの効果を検討したところ、TBTとTPTで著しい効果が認められた。この実験結果には再現性があった。また正常な成熟雌にTPTを筋肉注射するとペニス形成が認められたことから、TPTにはイボニシに対するimposex誘導及び増進効果のあることが明らかになった。またTPTの効果はTBTのそれと概ね同等であると推察された。イボニシの正常な成熟雌に対する流水式水槽でのTBT連続曝露によるimposex誘導試験の結果、TBTに対するイボニシのimposex発症限界体内濃度は 20ng/g wet (0.06nmol/g wet)程度であると推定された。また海水中のTBT濃度に対する本種のimposexのEC50は概ね $1\sim 2\text{ng/l}$ であると推定された。しかし長期曝露の場合には 1ng/l を下回る可能性がある。以上より、先の全国調査結果について、本種のimposexの発症限界となる体内有機スズ濃度をTBTとTPTの含有量のモル総和とRPL Indexとの関係から検討したところ、 $0.05\sim 0.10\text{nmol/g wet}$ 程度であると推察された。これはTBTによるimposex誘導試験結果に基づく推定値とよく対応した。しかしTBTとTPTの相互作用についてはなお検討が必要である。

4. imposexの症状

イボニシのimposex症状として、雌におけるペニスと輸精管の形成、ペニス先端部の分岐や輸精管への瘤状物の形成、及び輸卵管末端開口部の閉塞と変質卵囊塊の充満が広く認められた。また輸卵管の開裂や消失、及び性転換も一部に見られた。imposexが産卵不能を含む産卵能力の低下を伴う現象であることが明らかになった。他種のimposex症状もこれらと類似していたが、種による差異も見られた。

5. imposexが個体群に及ぼす影響

imposexがイボニシ個体群に及ぼす影響について、神奈川・油壺周辺海域で1990年10月から1992年4月まで毎月調査を行なって検討したところ、産卵と加入に対してimposexの影響が及んでいるものと考えられた。すなわち、産卵不能個体の出現率が湾奥部で80%に達し、沖合の定点でも40%を超えており、産卵がほとんど見られなかった。また湾奥部ほど分布密度が低く、小型個体や稚貝が採集されなかったことから、他海域からの幼生の加入に対する影響もあると考えられた。別途行ったイボニシ幼生に対するTBTの急性毒性試験の結果から、油壺湾の汚染レベルで幼生の致死影響が現れる可能性のあることが示唆されており、imposexの直接影響としての産卵不全と湾内の汚染に伴う幼生の加入阻害が起きていると推察された。imposexが原因と見られる個体群の減少はバイでも見られている。

6. イボニシにおけるTBTとTPTの濃縮、蓄積、分布、代謝及び排泄

流水式水槽によるTBTとTPTのイボニシに対する生物濃縮試験の結果、TBTとTPTの生物濃縮係数はそれぞれ $5000\sim 10000$ 程度及び 22000 程度と推定された。同様に人工海水を用いて行なった排泄試験の結果、TBTの生物学的半減期は約22日と推定された。TPTのそれは推定できなかったが、かなり長いものと考えられた。なおTPTの生態学的半減期は約347日と推定された。またTPTの高濃縮部位は雌のcapsule glandであると見られた。各種潮間帯生物中の有機スズ濃度の測定結果から、TPTでは食物連鎖を通じた濃縮も進むと見られた。

imposexの症状は、人工海水中で4週間飼育してもその症状に回復の兆しが見られなかったことから、

回復は困難であると考えられる。このことは外国種においても報告されている。個体群レベルでの回復については、今後引き続き調査・検討する必要があるだろう。

農薬・肥料による地下水汚染の実態調査とその防止法

園田 洋次 (そのだ ようじ) 岐阜大学農学部 教授 (農学部長)

(略歴) 1931年生まれ。岐阜大学農学部農芸化学科卒業、東北大学大学院修了、
1977年より現職 (教授)

(専攻) 生物機能工学

(著書) 「化成肥料に関する研究」(養賢堂)、「植物栄養・土壌肥料大事典」(養賢堂)、
「肥料と環境保全」(ソフトサイエンス社) 他

1. 研究目的

最近、農耕地が主体である広汎な洪積台地 (例、濃尾平野の一端) において、地下水が農薬・肥料などにより高濃度に汚染されている事例が明らかにされ、環境保全の見地から問題が提起されている。この富化現象は単に、一地域のみでなく農耕地を中心に、全国規模で進行しており、主な汚染物質として有機臭素化合物1,2-ジブロモエタンを含む、EDB系農薬並びに肥料としての硝酸態窒素等がクローズアップされている。高濃度に汚染されている地下水では硝酸態窒素が水質基準である10ppmを上回る数値を示し、また、有機ハロゲン化合物の一種である1,2-ジブロモエタンは、発ガンとの因果関係が討議されているが、これら農薬、肥料による汚染の事例は、汚染地域住民が飲料水として使用する可能性を考慮するなれば、環境衛生上極めて重要な課題とされ、早急に汚染原因を究明するとともに汚染防止策を確立することが急務とされる。本研究では汚染地域の農耕地を対象として地下水汚染の実態を詳細に調査し、汚染の一因としてEDB系の農薬及び硝酸態窒素肥料の施用を推定し、これらの農薬、肥料成分が土壌表層から漸次溶脱下降し、地下水系に溶解されて移動する経路について明らかにすることを目的とした。

2. 研究方法

農薬、肥料による地下水汚染が進行している地域 (濃尾平野の一端) を対象として、広範囲にわたって実態調査を行うことを主軸として、次の事項について解析を行った。

- (1) 汚染地域内で数多くの地下水採水地点 (井戸水採水を含む) を設定し、採水後直ちに水質分析を行い、地域内を主要汚染物質である硝酸態窒素並びに、1,2-ジブロモエタンの等濃度線を描き、一次元での汚染状況を明確にした。
- (2) 主要汚染物質濃度が高い地点を中心として、深さ30m以上のボーリング調査を行い、深さ5mより下層について深度別に硝酸態窒素並びに1,2-ジブロモエタンの濃度分布を描き、二次元での汚染状況を明確にした。
- (3) 汚染地域内で数多くの土壌を採取し、層位別に形態別窒素量を測定した。また、微生物による硝酸還元能、硝化能及び残留農薬の分解性等について検討し、上記2項目と合わせて農薬、肥料成分の動態について単に平面上のみならず垂直面からも解析し、立体的に明らかにすることにより、汚染原因の確証を裏付けた。

3. 研究成果

今回調査した全ての地点で、推定された有機ハロゲン化合物の一種である1,2-ジブロモエタンは、地下水サンプルからは殆ど検出されなかった。一方、硝酸態窒素量は著しく高濃度を示した。その結果を

地域内の硝酸態窒素等濃度曲線として示したが、最高30ppmから最低6ppmの範囲で著しい富化現象が認められた。さらに、高濃度の硝酸態窒素が認められた地点で、ボーリング調査を行ったところ、採水地点により傾向が異なり、一定の関係は認められなかった。このように、層位別に一定の傾向が認められない原因としては、層位間に不透水層が存在し、そのため表層と深層が明らかに二分された状態にあるものと考えられる。

一方、地下水中の硝酸態窒素を変動させる要因として、硝酸態窒素の施肥量が顕著に影響することが明確にされた。例えば、採水地点における過去の硝酸態窒素の施用総量を試算し、現状の地下水中の硝酸態窒素濃度分布と比較検討すると、両者の間には正の相関が認められ、長期にわたり施用された肥料中の硝酸態窒素が地下水の富化要因であることが裏付けられた。またこの際、降雨による浸透が硝酸態窒素の地下水系への移行の原動力となっており、例えば、降雨量が比較的多い4月から7月の間に調査したところ、各地点とも降雨後速やかに地下水中の窒素量が増加し、地下水中の硝酸態窒素濃度と降雨量との間に一定の量的関係が認められた。最も著しい場合、降雨後、地下水深度5mでは20ppm、30mでは10ppmの増加が認められた。このことは、5m以内の表層に地下水の硝酸態窒素富化を引き起こす要因物質が存在し、降雨による溶脱により速やかに地下水に運ばれることを意味している。一方、土壌における硝化能は表層で極めて高いことから、施肥などにより投与された窒素が比較的表層に近い土壌中で硝酸態窒素に変化し、降雨により浸透することにより、地下水汚染の一次的汚染源になっていると考えられる。また、このような地下水の富化現象は苦土、加里等の溶脱され易い他の肥料含有成分についても硝酸態窒素と同様な傾向が認められ、投与された肥料による地下水の富化現象は、硝酸態窒素のみならず、複合的な成分について同時に引き起こされていると考えられる。今回の調査を通じて特に注目される点は、地下水の富化と過去に施肥された肥料の試算量との間に相関が認められた点であり、地下水の汚染防止には中・長期的な施肥管理が必須であると考えられる。

総合討論

<コメンテーター>

青山 勲 (あおやま いさお) 岡山大学資源生物科学研究所 教授

(略歴) 1942年生まれ。京都大学工学部衛生工学科卒業、京都人学大学院修了、京都大学工学部助手、岡山大学農業生物研究所助教授を経て、1990年より現職

(専攻) 衛生工学、生態化学

(著書) 「生物濃縮－環境科学特論－ (共著)」(産業図書株式会社)、

「用水排水ハンドブック (共著)」(産業用水調査会)、

「湖沼汚染の診断と対策 (共著)」(日刊工業新聞社)、

「環境微生物工学研究法 (共著)」(技報堂出版)

<コーディネーター>

中西 準子 (前掲)