

	ふじもと たかのり
氏 名	藤 本 隆 則
学 位	博 士 (学 術)
学 位 記 番 号	新大院博(学)第26号
学位授与の日付	平成19年 3月22日
学位授与の要件	学位規則第4条第1項該当
博 士 論 文 名	Contamination of the Shinano River Water with Mutagenic Substances after the Niigata Chuetsu Earthquake (新潟県中越地震後の信濃川河川水の突然変異原性物質による汚染)
論文審査委員	主査 教授 鈴木 宏 副査 教授 山本正治 副査 教授 岡田正彦

#### 博士論文の要旨

信濃川下流域の河川水の突然変異原性の地域差と季節変動を調査し、突然変異原性に影響を与えていると考えられる物質の検索を行った。調査期間中、新潟県中越地震が2004年10月23日に突然起こったことから、この地震が河川水の突然変異原性に与える影響についても検討を行った。

地域差を把握するために信濃川下流域の3市域(上流から長岡市、燕・三条市域及び新潟市)の上下流4箇所にはサンプリング地点を配置した。また、季節変動を把握するため、2004年9月～2005年8月の間に毎月1回のサンプリングを行った。しかし、新潟県中越地震とその後の豪雪の影響で最上流地点での2004年11月と2005年1月の2回のサンプリングは不可能であった。

突然変異原性物質の吸着、回収は河川水中にブルーレイオンを24時間浸漬する方法を用いた。突然変異原性はAmes試験により評価した。試験用菌株としてネズミチフス菌のヒスチジン要求性変異株である *Salmonella typhimurium* TA98株(TA98)とTA100株(TA100)を用い、代謝活性化の影響を見るためにS9 mixture添加(+S9)と無添加(-S9)の条件で評価した。突然変異原性物質として芳香族炭化水素(PAHs、benzo[a]pyrene、benzophenone、及び4-nitrotoluene)を選択し、ガスクロマトグラフ質量分析計で分析した。その他の有機化合物は、全イオンクロマトグラム(Total Ion Chromatogram: TIC)のスペクトルを用いて分析した。さらに、調査期間中の信濃川河川水の一般的水質を評価するために、サンプリング地点もしくはその近傍の水温、透視度、生物化学的酸素要求量、及び懸濁物質を調査した。

調査地点の全期間においてTA98 +S9を用いた測定系で突然変異原性陽性を示し、その強度は上流より下流で強い傾向を示した。さらに、季節変動を調べた結果、夏季より冬季に採取した試料の方がより強い変異原性を示した。しかし、突然変異原性が最も強かったのは最上流地点で2004年12月に採取した試料であった。さらに2004年12月に採取した全試料中にはfluorantheneまたはpyreneと推定される物質が保持時間22.9分の位置に特異的に検出された。突然変異原性物質として選択した3種類のPAHsは調査期間中の全ての試料で定量下限値未満であったが、脂肪族炭化水素やエステル類(methyl palmitate、methyl palmitoleate、methyl

linoleate、及び squalene) が高頻度に検出された。一般的水質はほぼ環境基準内にあったが、水温と変異原性の強さとの間には有意な負の相関関係が認められた ( $r=-0.471$ 、 $P=0.002$ )。

信濃川下流域の河川水の変異原性は下流に向かうほど強かったことから、川沿いの3市域の事業所からの排水等の影響が考えられた。また、突然変異原性は冬季に強い傾向が認められ、その強さは水温との間で負の相関関係が認められたことから、突然変異原性物質の代謝が遅くなること等がその要因として推測された。今後、流量との関係を明らかにする必要がある。調査対象とした3種類のPAHsは全て定量下限値未満であった。しかし、変異原性が最も強かった2004年12月の試料においては、新潟県中越地震後に発生した鉱油類の流出が原因と考えられる fluoranthene 又は pyrene が特異的に検出された。これ以外の試料では、benzo[a]pyrene、benzophenone、及び 4-nitrotoluene を除く未同定の化学物質が突然変異原性に参与していると考えられた。

#### (論文審査の要旨)

本研究は、信濃川下流域(長岡、三条及び燕、新潟)の河川水の突然変異原性の地域差と季節変動を明らかにし、変異原性に影響を及ぼすと考えられる物質の検出と検索を2004年9月～2005年8月の間に毎月1回行ったものである。調査の途中、2004年10月23日に新潟県中越地震が発生し、河川水の変異原性に影響を与えたので報告する。

河川水中の変異原性物質の吸着、回収には浸漬法を用い、変異原性は Ames 法を用いた。またブルーレイオン抽出物の化学物質の検出と検索はガスクロマトグラフ質量分析計と全イオンクロマトグラムを用いて行った。

変異原性は *Salmonella typhimurium* TA98 株、S9mix 添加の測定系で陽性を示し、その強度は下流で採取した試料ほど強い傾向を示すことが明らかとなった。しかし、変異原性が最も強かったのは最上流地点で12月に採取した試料であった。さらに12月から2月に採取した試料は全地点で変異原性陽性を示し、変異原性は冬季に強い傾向を示すことが明らかとなった。検出対象とした多環芳香族炭化水素 (benzo[a]pyrene、benzophenone 及び 4-nitrotoluene) は、全ての試料で定量下限値未満であった。しかし変異原性が最も強かった12月に採取した全試料から fluoranthene 又は pyrene と考えられるピークが検出され、10月に発生した地震で漏出した油類の影響による可能性が高いことが判明した。

以上、本研究は、信濃川下流域の河川水の変異原性における地域差、季節変動及び新潟県中越地震の影響を明らかにし、変異原性に影響を及ぼす物質を検出した点に学位論文としての価値を認める。