

科学研究費助成事業（科学研究費補助金）研究成果報告書

平成24年 5月28日現在

機関番号：16101

研究種目：若手研究（B）

研究期間：2010～2011

課題番号：22710063

研究課題名（和文）水生生物に対する総毒性をベースにした流域圏での新たな化学物質汚染評価手法の構築

研究課題名（英文）Development of a Novel Method to Evaluate the Contamination by Chemical Substances in a Watershed Area on the Basis of Whole Toxicity for Aquatic Organisms

研究代表者

山本 裕史（YAMAMOTO HIROSHI）

徳島大学・大学院ソシオ・アーツ・アンド・サイエンス研究部・准教授

研究者番号：60380127

研究成果の概要（和文）：徳島県を流れる吉野川流域圏の農業排水を含む河川水や事業所排水、道路流出水等を採水し、それぞれ2～6回、環境省で現在検討中の水生生物3種（魚類、ミジンコ、藻類）を用いた亜慢性試験で総毒性を測定した。その結果、一般事業所や下水処理施設のほとんど（放流先河川の一部）でミジンコや魚類に対して強い毒性影響が検出された一方で、藻類は増殖した排水が多かった。河川水に毒性影響が検出されたのは主に都市部の汚染度が高い河川の一部に限られていた。道路流出水はミジンコや藻類に対して強い毒性が検出され、化学分析により、その一部がPAHsや重金属による可能性が高いことがわかった。

研究成果の概要（英文）：We sampled river waters, industrial and municipal wastewaters, and roadway runoffs from Yoshino River watershed area and conducted ecotoxicological tests using short-term chronic tests using three organisms, fish, daphnia, and algae, under discussion by Japan Ministry of Environment. Relatively strong toxicity was found for daphnia and fish larva for most of the industrial and municipal wastewater samples and some of their receiving waters. The strong toxicity was detected only for riverwaters sampled in urban streams. As for roadway runoffs, strong toxicity for daphnia and algae was found and the contribution of PAHs and some heavy metals were suspected.

交付決定額

（金額単位：円）

	直接経費	間接経費	合計
2010年度	2,200,000	660,000	2,860,000
2011年度	1,000,000	300,000	1,300,000
交付決定額	3,200,000	960,000	4,160,000

研究分野：複合新領域

科研費の分科・細目：環境学・放射線・化学物質影響科学

キーワード：微量化学物質汚染評価、生態毒性、化学物質管理、工場排水、ノンポイント汚染、ミジンコ、藻類、ゼブラフィッシュ

1. 研究開始当初の背景

徳島県は下水道普及率12%程度、合併浄化槽等と合わせた汚水処理普及率も40%余りと全国最下位で、残りの60%については生活排水が垂れ流しになっている。そのため豊富な流量の吉野川本流や支流の一部を除き水質や生物相の劣化は深刻であり、特に住宅地・工場・農地が混在する徳島市近郊の支流では深刻である。その劣化の原因としてコンクリ

ート化等の物理的要因やそれに伴う自浄作用の劣化もあるが、生活系、事業場系、農畜産系の化学物質負荷の急増も重要な要素である。化学物質負荷としては、農薬、界面活性剤、内分泌かく乱物質など様々な微量化学物質が環境中のあらゆる場所から検出され、挙動や生態影響が議論されてきたが、研究代表者らはそのうち全国津々浦々で使用・排出されており、低濃度で生理活性を有するよう

にデザインされた医薬品や化粧品類に着目してきた。水生生物に対する慢性影響を十分に調べれば、抗菌剤トリクロサンや降圧剤プロプラノロール等の一部の例を除き、個別の物質ごとでは生態影響が懸念されるレベルとはいえない。

しかし、微量化学物質の種類は莫大な数で増加傾向にあり、個別に詳細な生態影響を調べるアプローチは限界にきており、生態毒性をベースとした新たな化学物質の評価手法が望まれる。そういった背景の中で、欧米で導入済みで韓国でも導入された総排水毒性(Whole Effluent Toxicity: WET)の手法は、事業場等の排水の水生生物への影響を直接調べるもので、新規の微量化学物質や物質間の複合的影響も総合的に評価でき、生態系保全の観点から現在の生活環境項目と健康項目の枠組みならびに生物相調査を補完するものとして環境省による検討が始まっており、期待が大きい。国内ではWETの手法をもとにした研究例が少なく、楠井らによる研究や研究協力者の鎌迫ら、研究代表者らの徳島県内事業場を対象とした予備的検討結果などごくわずかである。

2. 研究の目的

本研究ではWET手法を一部アレンジして環境水に適用し、カナダで成功している生態毒性影響をベースにした毒性物質管理「セントローレンス川アクションプラン」を参考に、水試料中の総毒性ベースで水質・微量化学物質の総合的評価を、吉野川流域圏を例にとって実施することを目的とした。対象としては、流域の工場排水や下水処理施設放流水のほか、その放流先河川、そして吉野川等の環境基準点や補助地点ならびに都市河川、農業排水を含む排水路、道路排水などである。また、WET手法については、環境省で検討中のWET試験法のうち亜慢性試験とした。

3. 研究の方法

研究代表者の所属する徳島大学から近く、水質調査に関する実績があり、流域の下水道普及率が非常に低い一級河川吉野川水系中下流の環境基準点、補助地点、生活排水として、下水処理場や住宅団地の排水処理施設、下水道未整備域の都市部小河川など計10箇所以上を選定し、水生生物3種に対する亜慢性毒性試験をおこなった。また、農畜産業排水として、農業用水路などから数箇所程度を選定するとともに、道路排水についても採取して試験を実施した。

亜慢性試験のうち藻類を用いた生長阻害試験は、OECDガイドラインNo. 201に準拠して、三角フラスコ内で単細胞緑藻類であるムレミカヅキモ(*Pseudokirchneriella subcapitata*)の72時間での生長率を調べ、

ブランクと比較して各濃度区3連の生長阻害率を算出して、最大無影響濃度(NOEC)や10%影響濃度(EC₁₀)を求めた。

ミジンコは、US-EPA WET Test Method No. 1002に準拠して、ニセネコゼミジンコ(*Ceriodaphnia dubia*)の3腹目(約8日間)までの産仔数と親ミジンコの致死率を各濃度区10連で調べた。

魚類については、OECDガイドラインNo. 212に準拠して、ゼブラフィッシュ(*Danio rerio*)の胚の孵化率と9日目までの仔魚致死率を1濃度区あたり10~15個×3連で調べた。

以上の試験を、少なくとも季節の異なる3回実施し、一部については、化学分析や水質測定データ、PRTRデータなどを総合して毒性原因の推定、低減策の提案をおこなった。

4. 研究成果

吉野川流域河川のうち、代表例として吉野川本流の環境基準点である高瀬橋、農業排水を多く含む支流の飯尾川、生活排水を多く含む田宮川の試験結果の一部を図1~3に示す。

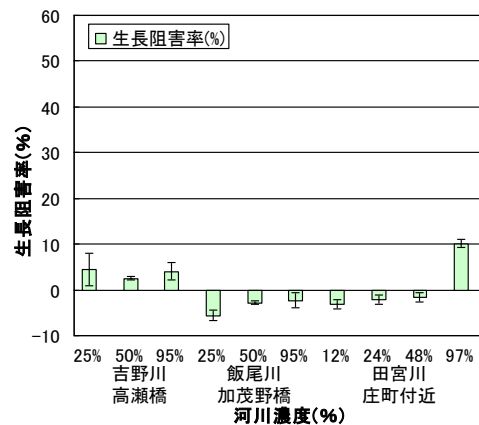


図1 吉野川流域河川水の藻類生長阻害試験結果

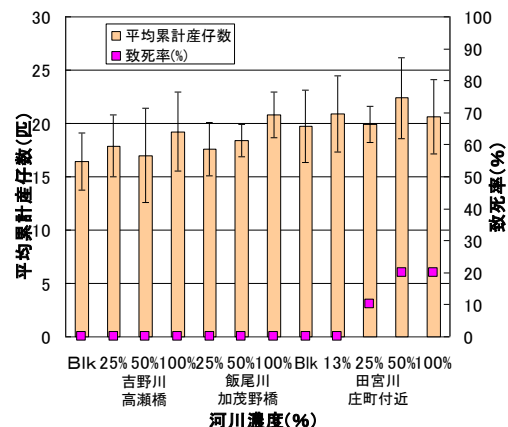


図2 吉野川流域河川水のミジンコ繁殖阻害試験結果

図1の藻類の試験結果から、環境基準点や農業排水などからは、有意な生長阻害は検出

されなかった。それに対して、生活排水に汚染された田宮川や、一部の事業所排水や下水放流水の中でも有効塩素濃度が高い試料からは、高濃度区で毒性が検出された。なお、栄養塩類のうち、窒素濃度の高い地点では藻類の増殖がやや促進される傾向が認められた。主要な原因としては、未処理の生活排水中の抗生物質等の作用が懸念される。

図2のミジンコの試験結果から、藻類と同様に、環境基準点や農業排水系の河川で繁殖阻害が検出される地点はなかった。一方、生活排水に汚染された田宮川では、致死率が20%程度まで上昇するが、繁殖が逆に促進される傾向が認められた。そのことから、ミジンコに硝酸を添加した際の繁殖の促進を調べたが、その結果、やや促進されることがわかった。なお、事業所排水と下水放流水については、事業所排水の一部で顕著な繁殖毒性が検出された。なお、汽水域に放流された場合、放流先河川の塩分によって、ミジンコに顕著な影響が確認される地点もあった。

なお、毒性原因の物質については、下水道未整備地域であることから、PRTRで水域への排出の上位を占める界面活性剤が毒性レベルも比較的高いことから主要な原因の一つとして考えられる。今後、さらに毒性分画や同定評価などによる確認作業が求められる。

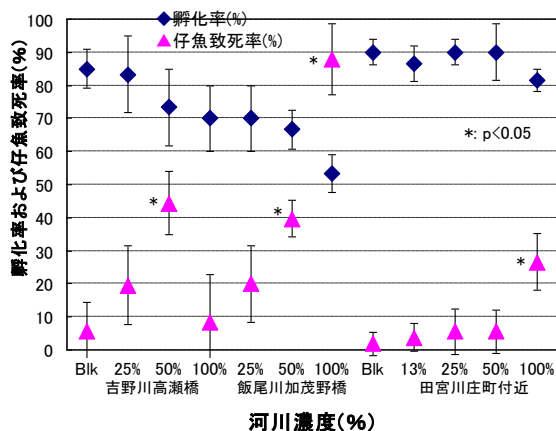


図3 吉野川流域河川水の魚類胚・仔魚毒性試験結果

図3の魚類試験結果から、吉野川的环境基準点だけでなく、農業排水を多く含む飯尾川でも孵化や仔魚致死に影響が確認された。しかしながら、この傾向は再度測定した際には検出されなかったために、継続的なものではないと考えられる。生活排水が多く含まれる田宮川でも影響が確認されている。魚類への代表的な毒性物質であるアンモニア濃度についても測定したが、飯尾川や田宮川についてはその濃度が1 mgN/L程度と高かったが、吉野川本流については、0.5 mg/Lを下回っていた。他の毒性原因物質について、さらに検討を進める必要がある。

次に、徳島市内の幹線道路の側溝の枡から採取した道路排水について、藻類とミジンコを用いて測定した結果を図4に示す。図4に示すように、排水の藻類およびミジンコに対する毒性は非常に強く、25%の排水でも藻類の生長阻害を引き起こすほか、100%排水はミジンコの致死率は100%となった。なお、藻類について、C18カートリッジで前処理を実施すると、藻類に対する毒性が低減することが分かった。このことから、藻類の生長阻害を引き起こしている物質は、C18で補足されるような多環芳香族炭化水素類(PAHs)などであることが推定された。また、一部については、亜鉛などの重金属類の寄与もあることがわかった。

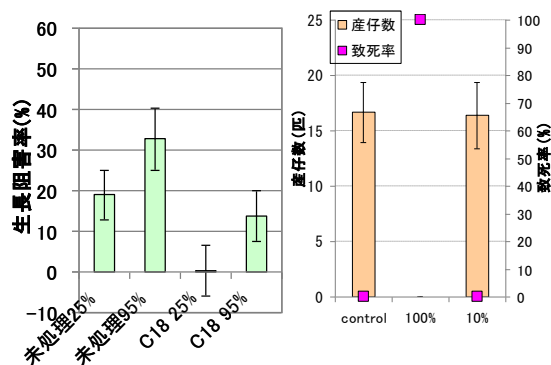


図4 道路排水の藻類・ミジンコ試験結果

以上を総合して、吉野川流域圏の様々な河川水や事業所排水、農業排水に道路排水などに3種の水生生物を用いた生態毒性試験を適用したところ、毒性影響が検出される試料が多く確認された。そのことから、その発生源には事業所排水、生活排水などの混合であり、雨天時に流出する道路排水も重要であることがわかった。

5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文] (計7件)

- ① 鐘迫典久、山本裕史、新野竜大、生物応答を用いた新たな排水評価・管理手法、環境浄化技術、査読無、11(1)、2012、6-14
- ② 安田侑右、米多佐織、田村生弥、鴛田啓一郎、中田典秀、花本征也、亀田豊、木村久美子、鐘迫典久、山本裕史、生活排水に汚染された河川水に対する短期慢性毒性試験、土木工学論文集G(環境)、査読有、67(7)、2011、III_249-III_256
- ③ 山本裕史、生物応答手法を用いた排水評価および管理、ぶんせき、査読無、11、2011、672
- ④ 山本裕史、生物応答を用いた新たな排水

管理－WET 手法－、機能紙研究会誌、査読無、50、2011、35-42

- ⑤ 山本裕史、WET 手法を利用した排水管理の実際－徳島県内事業所の排水に対する WET 試験適用例－、資源環境研究、査読無、47(5)、2011、76-82
- ⑥ 山本裕史、池幡佳織、安部香緒里、安田侑右、田村生弥、中村友紀、鑪迫典久、徳島県内事業所排水を対象にした WET 試験、環境工学論文集、査読有、47、2010、727-734
- ⑦ 山本裕史、池幡佳織、安部香緒里、安田侑右、田村生弥、鑪迫典久、WET (全排水毒性試験) 手法を用いた徳島県内事業所排水の先行的評価、環境衛生工学研究、査読無、24、2010、176-179

〔学会発表〕(計 18 件)

- ① 森田隼平、中野太洋、安田侑右、駕田啓一郎、田村生弥、鑪迫典久、山本裕史、水生生物 3 種の短期慢性試験を用いた全国一級河川の生態毒性影響の評価、第 46 回日本水環境学会年会、2012. 3. 14、東洋大学 (東京都文京区)
- ② 行本みなみ、田村生弥、駕田啓一郎、サラマイテ・トエスン、葛西博文、山田登志夫、田中基博、松尾暁、山本裕史、多孔質担体による道路排水中に含まれる微量汚染化学物質除去能および毒性同定評価、第 46 回日本水環境学会年会、2012. 3. 14、東洋大学 (東京都文京区)
- ③ 安田侑右、米多佐織、森田隼平、中田典秀、木村久美子、亀田豊、鑪迫典久、山本裕史、水生生物 3 種の短期慢性毒性試験を用いた都市河川の生態毒性と生活関連物質の寄与の評価、第 46 回日本水環境学会年会、2012. 3. 14、東洋大学 (東京都文京区)
- ④ 行本みなみ、田村生弥、駕田啓一郎、大比賀裕希、山田登志夫、葛西博文、田中基博、山本裕史、多孔質担体による道路排水中の微量汚染化学物質除去能の評価、第 48 回環境工学研究フォーラム、2011. 11. 26、大同大学 (名古屋市)
- ⑤ 安田侑右、米多佐織、森田隼平、中田典秀、花本征也、亀田豊、木村久美子、鑪迫典久、山本裕史、生活排水に汚染された河川水に対する短期慢性毒性試験、第 48 回環境工学研究フォーラム、2011. 11. 25、大同大学 (名古屋市)
- ⑥ Yamamoto H, Yasuda Y, Morita J, Tamura I, Nakada N, Kameda Y, Kimura K, Tatarazako N, Ecotoxicity of Sediments Sampled in Urban Rivers and Streams Dominated by Domestic Sewage: Potential Contributions of PPCPs, 32nd SETAC North America Annual Meeting、

2011. 11. 16、ハインズコンベンションセンター (米国ボストン市)

- ⑦ Yamamoto H, Yasuda Y, Morita J, Kagota K, Tamura I, Tatarazako N, Control and Management of Toxic Substances in Watershed Area Using the Whole Effluent/Sediment Toxicity Approach, 14th World Lake Conference, 2011. 10. 31、オースチンコンベンションセンター (米国オースチン市)
- ⑧ 山本裕史、生物応答を用いた新たな排水管理－WET 手法－、第 50 回機能紙研究会招待講演、2011. 10. 27、高知県立県民文化ホール (高知市)
- ⑨ 山本裕史、安田侑右、駕田啓一郎、田村生弥、鑪迫典久、WET 手法を用いた排水・環境水の評価および管理の可能性、第 66 回土木学会全国大会、2011. 9. 9、愛媛大学 (松山市)
- ⑩ 安田侑右、田村生弥、米多佐織、森田隼平、中田典秀、亀田豊、木村久美子、鑪迫典久、山本裕史、*Ceriodaphnia dubia* を用いた都市河川に対する短期慢性毒性試験と窒素・リン等栄養塩の及ぼす影響評価、第 17 回環境毒性学会・バイオアッセイ研究会合同発表会、2011. 9. 2、鹿児島大学 (鹿児島市)
- ⑪ 安田侑右、米多佐織、田村生弥、森田隼平、中田典秀、亀田豊、木村久美子、鑪迫典久、山本裕史、水生生物 3 種とセスジユスリカを用いた河川水・底質に対する短期慢性毒性試験、第 20 回環境化学討論会、2011. 7. 17、熊本県立大学 (熊本市)
- ⑫ 行本みなみ、田村生弥、池幡佳織、駕田啓一郎、大比賀裕希、山田登志夫、葛西博文、田中基博、山本裕史、短期慢性毒性試験を用いた多孔質担体による道路流出水中の微量汚染化学物質除去能の評価、第 20 回環境化学討論会、2011. 7. 17、熊本県立大学 (熊本市)
- ⑬ 山本裕史、徳島県内事業所排水を対象にした WET 試験～学術研究者の視点から、第 54 回日本環境化学会講演会招待講演、2011. 6. 8、サイエンスホール (東京都千代田区)
- ⑭ 池幡佳織、安部香緒里、安田侑右、平田佳子、田村生弥、中村友紀、鑪迫典久、山本裕史、徳島県内一般事業所排水に対する WET 試験と放流先ミキシングゾーン端での毒性影響評価、第 47 回環境工学研究フォーラム、2010. 11. 13、高知大学 (高知市)
- ⑮ Ikebata K, Abe K, Yasuda Y, Yoneda S, Nakamura Y, Tatarazako N, Yamamoto H, Short-term Chronic Toxicity Tests on Industrial Wastewater in Tokushima,

Japan: Possibility of Toxicity Reduction Evaluation, 31st SETAC North America Annual Meeting、2010.11.9、オレゴンコンベンションセンター (米国ポートランド市)

- ⑩ Yasuda Y, Yoneda S, Ikebata K, Tamura I, Nakada N, Kameda Y, Kimura K, Tatarazako N, Yamamoto H, 31st SETAC North America Annual Meeting、2010.11.9、オレゴンコンベンションセンター (米国ポートランド市)
- ⑪ 池幡佳織、安部香緒里、安田侑右、平田佳子、田村生弥、中村友紀、鑪迫典久、山本裕史、徳島県内事業所排水に対するWET 試験と放流先河川水におけるリスク評価、2010.9.2、第16回バイオアッセイ研究会・日本環境毒性学会合同研究発表会、文部科学省研究交流センター (茨城県つくば市)
- ⑫ Yamamoto H, Yasuda Y, Yoneda S, Tamura I, Kagota K, Nakada N, Kameda Y, Kimura K, Tatarazako N, Evaluation of Whole Toxicity of the River Waters Sampled in Urbanized Area of Japan, Mainly Contaminated by Treated or Untreated Sewage, 22nd SETAC Europe Meeting, 2010.5.16、ミラノコンベンションセンター (イタリアミラノ市)

6. 研究組織

(1) 研究代表者

山本 裕史 (YAMAMOTO HIROSHI)
徳島大学・大学院ソシオ・アーツ・アンド・サイエンス研究部・准教授
研究者番号：60380127

(2) 研究分担者

()

研究者番号：

(3) 連携研究者

()

研究者番号：

(4) 研究協力者

鑪迫 典久 (TATARAZAKO NORIHISA)
国立環境研究所・環境リスク研究センター・主任研究員
研究者番号：40370267