

1. はじめに

人工化学物質や非意図的な化学物質など微量化学物質による水環境の汚染が問題になっている。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る。著者らは微量化学物質の総括的指標の1つとして変異原性に着目し、貯水池とその流入河川、導水路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を対象に通年調査を実施し、水環境中でのその動態を解明してきた。その際、従来は軽視されていた懸濁性物質への吸着を解明することにより、環境中での動態をより正確に評価することを試みてきた（奥川・楠井, 1995; 1996）。本研究では、同様の視点から、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、その時間変化特性を解明した。

2. 調査・分析方法

調査対象の河川は、富山県西部の水道水源となっている和田川ダム貯水池に流入する和田川である。流域の土地利用は、森林が65.5%、水田が28.2%などとなっており、流域人口は約600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。調査は1994年12月20日から21日、1995年5月1日から2日、1995年7月19日から20日の3回の降水時に実施した（以下、それぞれ調査9412, 調査9505, 調査9507とする）。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、紫外吸光度（50mm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、試料水をガラスファイバーフィルター（ADVANTEC製, GB140）で濾過して分画した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株を用いたプレインキュベーション法により行なった。試料の前処理、試験結果の評価基準など詳細は既報（奥川・楠井, 1995）を参照されたい。

3. 調査結果

3.1 調査9412

調査に先立つ7日間の降雨、降雪の状況は次のとおりである。12月13日から15日にかけて 65 mm の降雨、16日から17日にかけて降雪（降水量 15 mm）、18日には 30 mm の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（9 mm）、調査期間中の21日の未明に 11 mm の降雨が見られた。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、その間の積雪、降水量、流量の変化を Fig.1 に示した。21日3時までには初期の融雪出水、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。Fig.2 にはSSとCOD_{Cr}の時間変化を示した。SSは調査開始時に最も高く、その後減少していくが、降雨流出により再び上昇した。懸濁態COD_{Cr}（PCOD_{Cr}）はSSと似た変化であったが、調査後半ではSS、流量の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。溶存態有機物量の指標である E_{260} は、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 1 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。採水時間は Fig.1 において矢印で示したように、融雪出水初期、降雨流出初期、流量ピーク後および流量速減期である。溶存態の

サンプル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。この調査時の降水の変異原性は Table 2 に示したようにすべての条件で陽性または擬陽性であった。

3.2 調査9505

調査前には、4月22日に 3 mm、23日に 9 mm、26日に 2.5 mm の降雨があったあと、29日20時から30日7時にかけて 17.5 mm の降雨があった。調査期間中の降雨と流量の状況は Fig.3 のとおりであり、降水量は1日に 5 mm、2日に 4 mm であった。流量は1日12時30分に小さなピーク、2日9時10分に大きなピークを示した。採水は1日9時35分から2日13時35分まで行なった。Fig.

4 にはSSとCOD_{Cr}の時間変化を示した。SSは調査前半の流量の小ピーク時に最初のピークを示し、その後増減を繰り返しながら減少したあと、流量の大ピークにおいて最大のピークを示した。PCOD_{Cr}は調査前半では増加せず、流量の大ピーク時に大きなピークを示した。調査前半で増加しなかったのは前日の降雨により流出しやすい粒子状有機物質がすでに流出していたためと思われる。一方、SCOD_{Cr}はSS同様流量の増加時にピークを示した。また、E₂₈₀もSCOD_{Cr}、SSと類似の変化傾向を示した。

変異原性試験は Fig.3 中の矢印で示した降雨流出初期（前半）、流量遅減期、降雨流出初期（後半）および流量ピーク後のサンプルについて実施した。ほとんどの条件で変異原性は陰性であったが、懸濁態サンプルで一部生育阻害が認められた (Table 1)。また、この調査時の降水の変異原性は、溶存態サンプルがS9mix無添加の条件で陽性または擬陽性であった (Table 2)。

3.3 調査9507

7月としては気象台開設以来1、2番目の多雨の中での調査となった。すなわち、7月1日から連日のように雨が降り、降水量は17日までで 366 mm を記録した。18日から19日の採水開始まではほとんど降雨はなく、19日夜半から20日にかけて 51 mm の降雨となった。19日から20日の降水量、流量の変化は Fig. 5 に示した。変異原性試験用の採水は降雨流出前、流量増加期および流量ピーク時に行なった。この調査ではそれ以外の採水は行なっておらず、他の水質についてもデータは3回のみである。流量の増加とともにSS、PCOD_{Cr}が著しく高くなった。

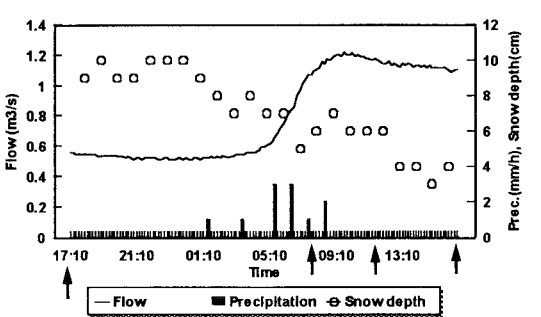


Fig.1 Flow and weather conditions, 1994/12/20-21.

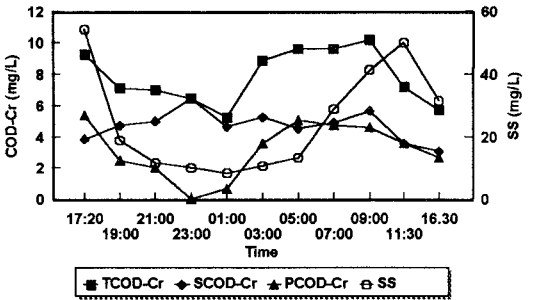


Fig.2 SS and COD-Cr, 1994/12/20-21.

		Table 1 Mutagenicity of storm runoff water				Sol Soluble, Part Particulate			
		TA98--S9mix		TA98++S9mix		TA100--S9mix		TA100++S9mix	
Date	Time	Sol	Part	Sol	Part	Sol	Part	Sol	Part
94/12/20	17:10	-	+	-	-	-	+	-	+
94/12/21	07:40	-	T	-	-	-	+	-	+
94/12/21	11:30	-	T	-	-	-	-	-	-
94/12/21	16:30	-	T	-	-	-	-	-	-
95/05/01	09:35	-	-	-	-	-	-	-	-
95/05/01	17:05	-	-	-	-	-	-	-	T
95/05/02	05:35	-	-	-	-	-	-	-	T
95/05/02	13:15	-	-	-	-	-	-	-	T
95/07/19	14:30	-	-	-	-	-	-	-	-
95/07/20	05:45	-	T	-	+	-	-	-	+
95/07/20	10:10	-	+	-	-	-	-	-	+

		Table 2 Mutagenicity of precipitation				Sol Soluble, Part Particulate			
		TA98--S9mix		TA98++S9mix		TA100--S9mix		TA100++S9mix	
Date	Time	Sol	Part	Sol	Part	Sol	Part	Sol	Part
94/12/20		++	+	++	++	++	+	+	++
95/05/01		+	-	T	-	++	-	-	-
95/07/19		-	-	-	-	-	-	-	-
95/07/20		-	-	-	-	-	-	-	-

変異原性試験の結果 (Table 1) について言うと、溶存態のサンプルではすべて陰性であったが、懸濁態ではSSおよびPCOD_c濃度の高くなったサンプルで擬陽性が認められた。また、この調査時の降水の変異原性はすべての条件で陰性であった (Table 2)。これは多雨による大気の洗浄効果のため降水中の汚染物質が少なかったためと考えられる。

4. 考察

今回の調査9412の降水ではすべての試験条件で変異原性は陽性か擬陽性であった。また、調査9505でも溶存態の降水で変異原性が認められた。それに対し、溶存態の河川水ではいずれの調査でも変異原性が認められなかった。これは降水中に溶存している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。一方、懸濁態の河川水の場合、調査9412でも、また降水に変異原性の認められなかった調査9507でも擬陽性となる場合があった。これは吸着された変異原物質が土壌とともに流出したためと考えられる。懸濁態サンプルで変異原性が認められたのはいずれも有機性の懸濁物質が多いときであり、疎水性の変異原物質の吸着量が多かったものと思われる。なお、調査9505では調査前日の降雨流出のため有機性の懸濁物質が低濃度であったため、懸濁態の河川水で変異原性が認められなかったのであろう。懸濁態サンプルの変異原物質として流域で 사용되는農業などの可能性もあるが、農業の使用量の少ない時期でも懸濁態の河川水で変異原性がしばしば認められることから、降水の寄与が大きいと思われる。

著者らは既報 (奥川・楠井, 1995; 1996) において、流出・流下過程における変異原性の変化の態様を、通年調査の結果から示したが、今回の降雨流出あるいは融雪出水時の調査結果は基本的にそれと一致するものである。付け加えて言うならば、降水時河川水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。

5. おわりに

降水の変異原性を解明するとともに、降水時における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、その時間変化特性を解明した。その結果、降水中に溶存している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こと、吸着した変異原物質は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、降水時河川水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た。

6. 参考文献

- 奥川・楠井 (1995) 第32回環境工学研究フォーラム講演集, 60-62.
- 奥川・楠井 (1996) 環境衛生工学研究, Vol.10, No.1, 7-15.

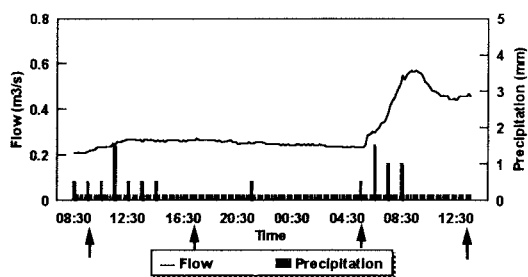


Fig.3 Flow and precipitation, 1995/05/01-02.

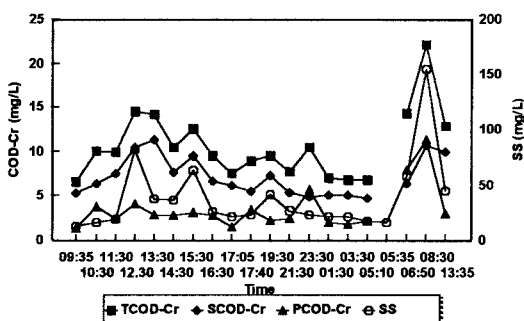


Fig.4 SS and COD-Cr, 1995/05/01-02.

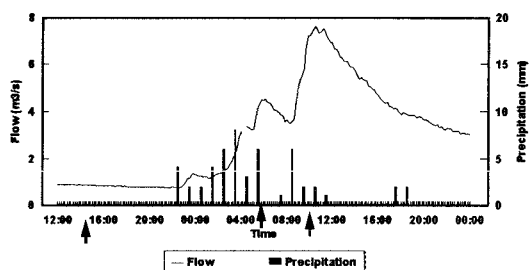


Fig.5 Flow and precipitation, 1995/07/19-20.