

# トリハロメタン生成能の汚染負荷解析に関する研究

朱 春黙<sup>1</sup>・浮田 正夫<sup>2</sup>・中西 弘<sup>3</sup>・今井 剛<sup>4</sup>

<sup>1</sup>学生員 大学院生 山口大学大学院 工学研究科 (〒755 山口県宇部市常盤台 2557)

<sup>2</sup>正会員 工博 山口大学教授 工学部社会建設工学科 (〒755 山口県宇部市常盤台 2557)

<sup>3</sup>正会員 工博 大阪工業大学教授 工学部土木工学科 (〒535 大阪市旭区大宮 5-16-1)

<sup>4</sup>正会員 工博 山口大学助手 工学部社会建設工学科 (〒755 山口県宇部市常盤台 2557)

トリハロメタン生成能はトリハロメタン (THM) 発生の原因となる前駆物質量の大小を総括的に表示しうる実用的な指標である。本研究では THM 生成能を COD, BOD, TP のように一種の水質指標とみなし、その前駆物質の汚染源からの発生、排出および公共水域への流達過程を原単位法により定量化する方法を検討した。また、厚東川流域の THM 生成能の汚染負荷解析の実例研究を行い、この水域に流達する THM 前駆物質汚染負荷の約 50% が自然由来であることを明らかにした。さらに本研究では原単位法が THM 前駆物質の流域水質管理においても有効であることを示した。

**Key Words :** trihalomethane (THM), trihalomethane formation potential (THMFP), pollutant load factor, pollutant load analysis, poll fixed-quantity

## 1. 緒言

近年、産業活動や生活様式の高度化により水域の汚濁が進行し、河川、湖沼など水道原水の水質の悪化が懸念されている。水道水に対して様々な問題が提起されている中で、浄水処理における原水中の有機物質と塩素との反応により生成するトリハロメタン (以下 THM と略す) をはじめとする有機ハロゲン化合物質による汚染がその発癌性との関連で社会的問題となっている。平成 5 年 12 月に改正された水道水の水質基準には、健康影響項目として新たに THM の 4 項目の基準値が示されており、水道に利用される公共水域や地下水の水質保全対策の強化が大きな課題となってきた。THM 生成能 (以下 THMFP と略す) は、トリハロメタン発生の原因となる前駆物質量を総括的に表示する指標として、前駆物質量の大小を総括的に表示しうる実用的な指標であり、反応に寄与する塩素処理の条件を一定に設定して、その条件下で生成する総 THM 濃度を THMFP と定義している。

THM の発癌性が指摘されて以来、国内外でのその発生要因と影響因子などに関する研究や浄水処理工程における前駆物質の除去に関する研究が数多く行われてきた<sup>1) - 6)</sup>。浄水処理は主として水中の懸濁性無機物質を物理化学的処理により除去するシステムであるため THM の除去には限界がある。この

ような場合には、その原因物質の発生源対策を含め公共用水域の水質保全対策で解決を図らなければならない。以上のことから THM 前駆物質の汚染機構や経路の解析手法を確立することがその前駆物質の監視・制御等水道水の水質管理において重要な課題となっている。THM 前駆物質は、自然界に由来するフミン酸、フルボ酸などのフミン質と人為的汚染源である工場排水、生活排水などに由来する有機物質である。しかし、THM 前駆物質の環境での挙動、変化などの実態はまだ十分明らかになっていない。THM 前駆物質は、単一の化学物質ではないので、直接定量するのは困難である。しかし、BOD や COD 同様検水を一定の条件で処理した時に生成する THM 量、すなわち THMFP を THM 前駆物質量として取り扱うことは可能であり、人為汚染発生源の THMFP 発生負荷原単位、し尿処理施設など処理プロセスにおける挙動、および排出率など情報が蓄積されつつある。

平成 6 年 5 月に「特定水道利水障害防止のための水道水源水域の水質の保全に関する特別措置法」が実施され、流域管理において THMFP も含む総合的制御手法を確立することは、行政的にも要請が強いものとなっている。本研究では、THMFP を COD, BOD, TN, TP のような水質指標とみなして、その前駆物質の汚染源からの発生、排出、および公共水域

表-1 ECD 測定条件

Col	2% OV-17 on Chro mosorb WAW DMCS 80 ~ 100 mesh 3mmID × 2m (glass)	
Temp	Col	90 °C
	INJ/DET	150 °C
Carrier gas	N <sub>2</sub>	50ml/min
Sample	100 μ l	

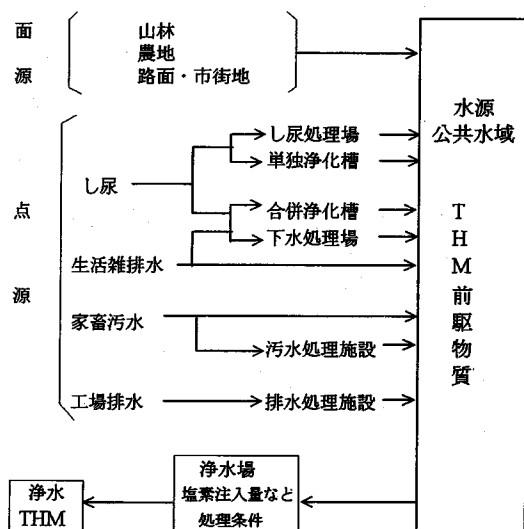


図-1 THM前駆物質の発生源および公共水域への流出過程

への流達過程を原単位法により定量化する手法を検討する。なお、水域における THMFP の変化は、総括的に流達率の形でまとめることとし、流達率の値も年平均値として対象地点間の流達負荷量と排出負荷量との比より計算するものとする。同方法は、マクロな年平均値を対象とする工学的手法であり、THM 前駆物質汚染の原因究明とその対策を立てるための手段を提供するものとする。

## 2. THMFP の分析方法および汚染負荷解析手法

本研究では、THM 前駆物質の発生源および公共水域への流出過程について検討し、解析すべき発生源を特定した。また、THMFP 汚染負荷解析について検討し、その解析手法を決定した。次に、THMFP の発荷原単位について多くの基礎調査文献をもとに整理・解析し、不足部分を筆者らの実測によって補完した。さらに、事例研究として山口県東川流域における発生源ごとの汚染負荷量を算定し、河川の THMFP の実測値から流達負荷量を求め、汚染負荷解析を行った。

### (1) THMFP の分析方法

THMFP の測定は、100ml の試料に 20 °C、24 時間後の残留塩素が 1 ~ 2mg/l になるように次亜塩酸ナトリウム溶液を添加後、0.1N-H<sub>2</sub>SO<sub>4</sub> と 0.5N の NaOH 溶液を用いて pH を 7.0 に調整し、20 °C、24 時間後の THM を測定した。THM はヘッドスペース法により、ガスクロマトグラフ (日立製 263-30 形 ECD) に注入し、CHCl<sub>3</sub>, CHCl<sub>2</sub>Br, CHClBr<sub>2</sub>, CHBr<sub>3</sub> を分析した。なお、これら 4 種の化合物を総計して THM 総量を算出し、その測定値を THMFP とした。表-1 に ECD での測定条件を示す。残留塩素の濃度はオトリジン比色法により測定した。紫外外部吸光度 E<sub>260</sub> の測定は、5cm セルを用いて 260nm 波長で行った。その他、COD, TOC, SS, TN, TP の測定方法は、JIS 法に準拠した。

### (2) THM 前駆物質の発生源

塩素処理により THM の生成原因となる有機物質の発生源は水道水源の種類や状況によって異なる。図-1 は THM 前駆物質の発生源および公共水域への流出過程を模式的に示したものである。THM を生成する有機物質の典型はフミン質とされているが、比較的水質の清浄な河川上流部や山間貯水地を水源とする水道では、原水中の有機物質の大部分は自然界から流出する土壌由来の陸生フミン質である。河川下流域から取水している水道では、家庭雑排水や各種事業所排水など人為活動により公共用水域に排出されたフミン質および下水処理や産業排水処理の生物処理水に含まれるフミン質などである。また、塩素処理過程においては、水の pH、水温などの環境要因と塩素注入率、塩素接触時間などの塩素処理条件が影響する。本研究における THMFP の発生源としては、し尿、生活雑排水、家畜排水、工場排水の他、面源として山林、農地、市街地を取り上げた。

### (3) THMFP の汚染負荷解析手法

し尿、生活雑排水、家畜排水の発荷原単位は、それぞれ 1 人 1 日、1 頭 1 日当たりなどの発荷原単位とし、工場排水については、食品製造業、紙・パルプなどの業種毎に、出荷額あたり、原材料あたりの負荷量としてまとめた。面源の発荷原単位は 1km<sup>2</sup> あたり 1 日あたりの負荷量とした。また、し尿、生活雑排水の排出率は、下水処理場、し尿処理場、し尿浄化槽などの処理施設における除去を考慮し、また、工場排水は、活性汚泥法などによる除去率を考慮し、(1-除去率)の値をもつ。図-2 にその算定手順を示す。なお、THMFP の発荷原単位は、多くの

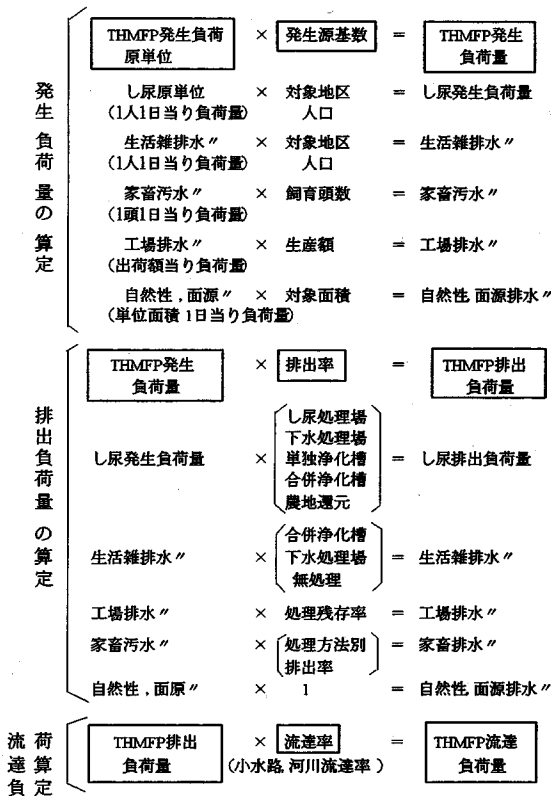


図-2 THMFPの汚染負荷解析手順

基礎調査文献を利用・解析することによって求め、不足する部分はスポット的な調査を行い、補完することによって求めた。また、事例研究として厚東川流域における発生源ごとの汚染負荷量を算定し、河川のTHMFPの実測値から流達負荷量を決定し、汚染負荷解析を行った。

### 3. 水道原水のTHMFP

丹保ら<sup>3)</sup>は、パルプ排水や下水処理場放流水で、THMFP/DOCとE<sub>260</sub>/DOCとの間に有意な関係があると報告している。筆者らは、人為汚染の影響が少ない上流域の水道原水のTHMFPおよびその他有機汚濁指標を測定し、その結果からTHMFPに関与する水質項目を明らかにするために、相関分析を行った。

#### (1) 水質調査結果

日本全国の水道原水のTHMFPの実態を把握するため、平成6年9月～11月にかけて22道県の46カ所で採水した水道原水についてTHMFP、E<sub>260</sub>およびCOD、NH<sub>4</sub>-Nなどと一般項目について、測

表-2 水道原水のTHM生成能 単位: μg/l

水源	湧水	表流水	ダム水	地下水	製品*
日本全国	20.6	37.2	29.5	25	16.0
	(10)	(22)	(2)	(3)	(2)
厚東川	15.2	30.7	45.5		

注: ( ) 数字は調査カ所である。

\* ミネラルウォーター

定を行った。また、平成7年5月～12月に山口県宇部市の水源である厚東川水系の12地点で採水し、THMFPおよびE<sub>260</sub> (5cmセル)、COD、NH<sub>4</sub>-N、TP、Chl-aなど計12項目について、月1回の測定を行った。これらは、その大部分が人為的汚染の影響が少ない地域に位置している水源である。その測定結果からみると、表流水を水源とする原水では、THMFPが100 μg/lを越えるものが2検体あり、その他は9～53 μg/l、湧水では10～36 μg/l、ダム水では16～36 μg/lであった。表-2に、その測定結果の平均値を示す。また、その構成成分は、クロロホルムが50%程度で、もっとも多くなっている。

#### (2) 一般項目との相関性

上記の調査結果を用いて相関分析を行った。図-3はTHMFPと一般項目の相関性を示し、表-3にその相関係数を示す。以上の結果から、水温が低く、pHが低い水ほどTHMFPが低い傾向があり、清浄と思われる湧水、上流水にもTHM前駆物質が存在することが確認された。COD、TOCが高いほどTHMFPが高い傾向になる。表-4は各種水道原水および浄水のTOC、CODの単位当たりのTHMFPの生成量を目安として示したものである。その他、NO<sub>2,3</sub>-N、NH<sub>4</sub>-NおよびTN、TPなどの富栄養化指標との相関性は見られなかった。またE<sub>260</sub>とTHMFP、CHCl<sub>3</sub>の間には良い相関があり、その値が高いほどTHMFPも高くなる傾向がある。THMFPの概略値はE<sub>260</sub> (5cmセル)を用いて次式より推定することができる。

$$\text{THMFP} = 8.03 \ln (E_{260}) + 49.2$$

$$\text{CHCl}_3 = 5.57 \ln (E_{260}) + 28.2$$

E<sub>260</sub>、COD、TOCとTHMFPの間には相関が認められるものの、発生源の種類によりその関係は異なるものである。THM前駆物質の汚染負荷解析において、THMFPを独立して指標化し、流域の生成特性に対応したモニタリングが必要であると考えられる。

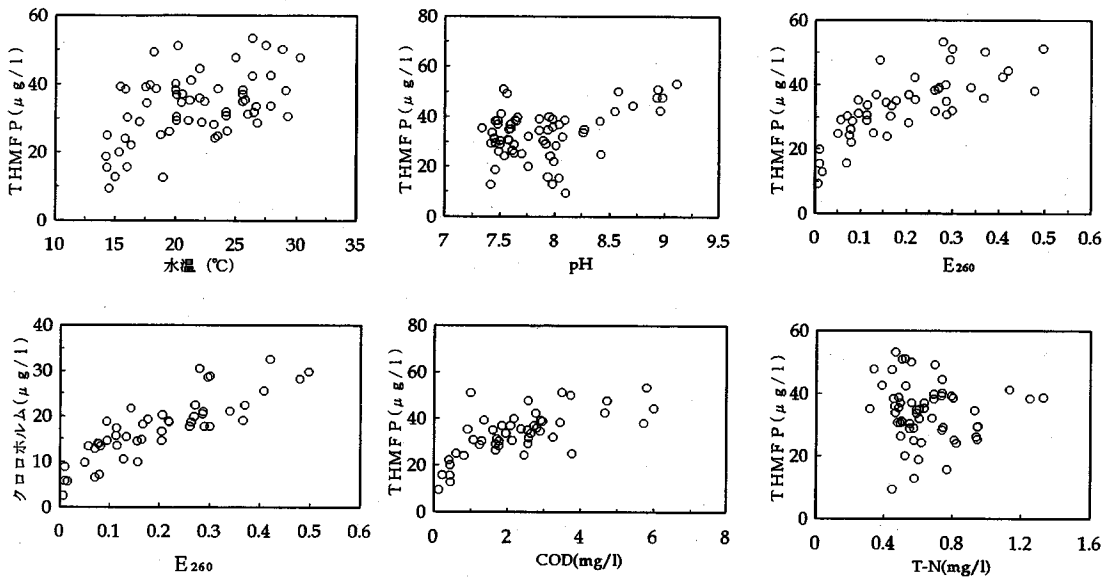


図-3 水道原水のTHMFPと一般項目との相関

表-3 THM生成能と一般項目との単相関表

	E260	TOC	COD	pH	水温	SS	NH4-N	NO2,3-N	T-N	T-P
E260		0.611*	0.692*	0.359	0.457*	0.589*	0.314	0.358	0.016	0.209
THMFP	0.805*	0.524*	0.678*	0.405	0.506*	0.456*	0.267	0.404*	0.050	0.400
CHCl3	0.813*	0.529*	0.752*	0.386	0.478*	0.589*	0.247	0.322	0.146	0.343
CHCl2Br	0.607*	0.431*	0.529*	0.313	0.536*	0.258	0.344	0.437	0.181	0.409
CHClBr2	0.073	0.169	0.076	0.252	0.194	0.183	0.196	0.262	0.366	0.166
CHBr3	0.121	0.105	0.152	0.216	0.056	0.215	0.154	0.097	0.091	0.144

\* は 1% 有意水準を示す

表-4 TOC, COD 単位あたり THMFP の生成量

	THMFP/TOC (μg/mg)	THMFP / COD (μg/mg)
湧水	24	30
河川上流水	21	17
ダム水 表層	15	9
低層	19	13
浄水 (宇部市)	20	17

表-5 し尿処理場における THMFP と発生原単位

	水量原単位 // 人・日	THMFP mg / l	THMFP 原単 位 mg / 人・日
生し尿	1.94	18.4	35.7
浄化槽汚泥	2.14	16.5	35.4

#### 4. THMFP の汚染負荷原単位および排出率の解析

本研究における THMFP の負荷原単位および排出率を、多くの基礎調査文献<sup>9) - 15)</sup>して解析を利用し、不足する部分を著者らの実測をもとに補完することによって求めた。

##### (1) 発生原単位

###### a) し尿にかかわる原単位

し尿は各種有機性排水のうち比較的 THM 前駆物

質を多く含むものであり、公共水域への一つの排出源である。ここで、山口県内の 6ヶ所のし尿処理場における汲み取りし尿人口、浄化槽使用人口およびその排水量を調査し、その結果から生し尿および浄化槽汚泥の一人あたり、1日あたり排水量を求めた。また、THMFP、E260、CODなどの項目を測定し、その実測値から生し尿、浄化槽汚泥の THMFP 発生原単位を求めた。表-5には、以上の計算結果を示す。

###### b) 生活雑排水原単位

家庭雑排水の THMFP は  $244 \mu\text{g/l} \sim 269 \mu\text{g/l}$  であると報告<sup>10)</sup>されている。その対象対象である住宅団地の人口および一日排水量から排水量原単位

表-6 生活排水の THMF 発生負荷原単位

	水量原単位 l / 人・日	THMF $\mu\text{g} / \text{l}$	THMF 原単 位 $\text{mg} / \text{人} \cdot \text{日}$
水洗し尿	64 <sup>10)</sup>	580*	37
生活雑排水 <sup>10)</sup>	148	250	38
家庭下水 <sup>11)</sup>	230	354	82
汲み取りし尿	1.94	18400	36

\* 水洗用水および生し尿 THMF 測定結果より、算出したものである

を計算すると  $0.148\text{m}^3 / \text{人} \cdot \text{日}$  であり、THMF の平均値と排水量原単位から発生負荷量を求めると  $38\text{mg} / \text{人} \cdot \text{日}$  が得られる。また、し尿と生活雑排水を含む家庭下水については、山口県内 6ヶ所の下水処理場流入水の THMF の測定を行った。その結果、流入水の THMF の平均値は約  $170\mu\text{g} / \text{l}$  であった。

水洗し尿の発生負荷原単位は水洗用水（水道水）THMF を測定し、表-5 の生し尿の THMF の測定結果および水洗し尿の水量原単位<sup>10)</sup> より計算した。水洗用水の THMF 測定結果は  $25\mu\text{g} / \text{l}$  であり、水洗し尿の発生負荷原単位は  $37\text{mg} / \text{人} \cdot \text{日}$  であった。

以上の結果を整理して、表-6 に家庭生活排水、汲み取りし尿および下水処理場の THMF 発生負荷原単位を示した。ここで、家庭下水の THMF、その調査対象人口および排水量は、永淵ら<sup>11)</sup> の調査結果であり、その結果を用いて計算した水量原単位である。

#### c) 家畜排水原単位

水域に排出される家畜排水としては、主要なものとして、豚を対象とする。文献<sup>10)</sup>によると、豚を対象とする畜産排水における THMF の出荷肉あたり、出荷額あたり発生負荷原単位などが報告されている。この報告によると出荷頭数が 1250 頭 / 年の規模の養豚場では、THMF の発生濃度が  $4880\mu\text{g} / \text{l}$ 、肉あたり、出荷額あたりの発生負荷原単位は  $1000\text{g} / \text{t}$  肉出荷、 $1176\text{g} / \text{百万円}$  であり、また出荷頭数が 550 頭 / 年の規模の養豚場では、THMF の発生濃度が  $4920\mu\text{g} / \text{l}$ 、肉あたり、出荷額あたりの発生負荷原単位は  $307\text{g} / \text{t}$  肉出荷、 $307\text{g} / \text{百万円}$  である（出荷額の基準年は昭和 58 年である）。なお、農林水産統計<sup>17)</sup>によると飼養頭数と出荷頭数との比は約 0.5 であり、その比を用いて出荷頭数から飼養頭数を計算し、1 頭あたり発生負荷原単位を求めると  $320\text{mg} / \text{頭} \cdot \text{日}$ 、 $90\text{mg} / \text{頭} \cdot \text{日}$  である。また、この 2 件の平均から負荷原単位を求めると  $204\text{mg} / \text{頭} \cdot \text{日}$  であった。

#### d) 工場排水原単位

各種工場の工程廃水（原水）の測定結果<sup>10)</sup>によると、原水の THMF が  $1000\mu\text{g} / \text{l}$  を越える業種は、

表-7 業種別 THMF 発生負荷原単位<sup>10)</sup>

業種名	THMF $\text{mg} / \text{l}$	出荷額	原材料	主要 原材料
		当たり <u>g</u> 百万円	当たり <u>g</u> t	
畜産食料品	1.59	142	6.2	豚、牛
乳製品	0.25	11	2.9	原乳
果実缶詰	0.88	83	14.9	蜜柑
味噌・醤油	0.35	36	3.4	大豆
麺類製造	0.36	8	16.4	小麦粉
清涼飲料	1.21	114	65.1	糖類
ビール製造	0.99	68	168.0	混合原料
器機生糸	0.20	9	31.1	乾繭
製紙パルプ	3.51	3860	248.0	原木 パルプ
と畜場	2.51	276	12.4	牛、豚
医薬品	0.27	3	114.0	酢酸
電気メッキ	0.56	66	4.6	作業工具
繊維雑品	2.19	2000	442	混合原料
板紙製造	0.95	479	26.3	混合原料

畜産食料品製造業、製紙パルプ製造業、清涼飲料製造業、屠畜場等である。表-7 は、業種毎の原料当たり、生産額あたりの THMF の発生負荷原単位を文献<sup>10)</sup> から引用してまとめたものである。

#### e) 面源負荷発生源の原単位

公共用水域へ流出する THM 前駆物質の面源負荷発生源として、灌漑期における農業排水、降雨による路面排水が考えられるが、雨水の THMF は  $11 \sim 48\mu\text{g} / \text{l}$  であり、雨水による山林流出水では  $49 \sim 80\mu\text{g} / \text{l}$ 、路面排水は  $97\mu\text{g} / \text{l}$  と報告<sup>12)</sup> されている。図-4 には、山口県厚東川流域上流部 2ヶ所の山林流出水を中心に行われた 12 カ月間の調査結果を示したものである。水温の変化による THMF の季節変化が見られるが、その年間平均値と偏差値はそれぞれ  $(24.6 \pm 5.4)\mu\text{g} / \text{l}$ 、 $(35.8 \pm 4.6)\mu\text{g} / \text{l}$  であり、その 2ヶ所の平均値をとると  $(30.2 \pm 5.0)\mu\text{g} / \text{l}$  であった。季節変化を考慮することは今後の課題として、本稿では、年間平均値を採用する。表-8 は年間降雨量を  $1500\text{mm}$  と仮定して高見ら<sup>13)</sup> による流出係数を用いて算出した負荷原単位である。

## (2) 排出率

### a) し尿処理場

し尿処理場については、山口県内 6ヶ所のし尿処理場の流入水と放流水について THMF の測定を行い、その実測値および希釈率から排出率を求めた。表-9 にその結果を示した。

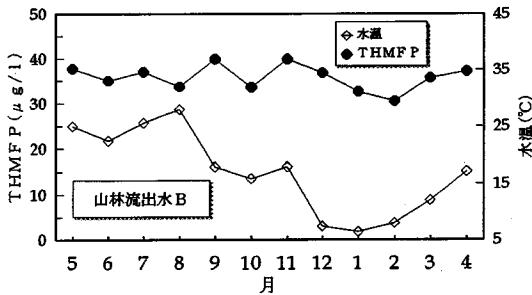
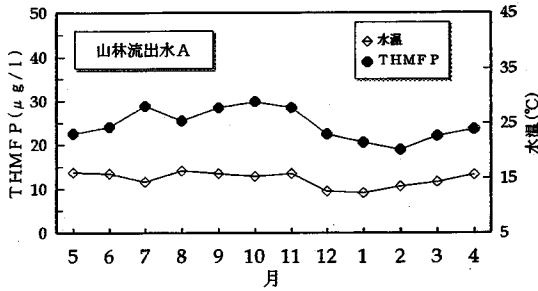


図-4 山林流出水の THMF P 調査結果

表-8 面源負荷発生源の THMF P と負荷原単位

汚染発生源	THMF P μg/l	流出 率 <sup>10)</sup>	原単位 kg/km <sup>2</sup> /d
雨水	22		
路面排水	97	0.80	0.319
水田	代かき期	0.60	0.814
	生育期	53	0.131
畑	39	0.70	0.112
山林流出水	31	0.75	0.096

b) 下水処理場

表-10は、山口県内7ヶ所の下水処理場の流入水と放流水のTHMF Pの実測値からまとめたそれぞれの下水処理場における排出率を示したものである。また、各下水処理場における処理水量、水洗化人口の調査および流入水、放流水のTHMF Pの平均値から排出負荷原単位17mg/人・日が得られた。

c) 合併処理浄化槽

住宅団地の家庭下水の合併処理浄化槽による処理については、永淵らの報告<sup>11)</sup>がある。その調査対象となる住宅団地の合併処理浄化槽の流入水、流出水および排水量の1日平均値から求めた結果、発生負荷量原単位82mg/人・日、排出負荷量原単位10mg/人・日、負荷原単位より排出率12.2%が得られた。

表-9 し尿処理場における THMF P 負荷の排出率

処理方式	n*	放流水 THMF P μg/l	排出率
好気性消化	1	80	0.016
嫌気性消化	2	320 ± 12	0.018
高負荷脱窒素	1	180	0.040
標準脱窒素	2	360 ± 17	0.132
平均		235	0.052

表-10 下水処理場の処理方式による THMF P の排出率

処理方式	n*	THM 生成能 (μg/l)		排出率
		流入水	放流水	
活性汚泥 (汚泥嫌気性 消化)	3	162 ± 18	28 ± 5	0.17
活性汚泥 (嫌気好気法)	2	178 ± 20	22 ± 8	0.13
長時間曝気	1	214	46	0.21
OD法	1	148	54	0.36
平均		175	38	0.22

\* 各1回調査

表-11 単独、小型合併浄化槽および住宅団地における THMF P の排出率

区分	形式	放流 THMF P μg/l	排出率
単独浄化槽 (12ヶ所)	腐敗タンク 分離接触	31 ± 7	0.14
	全曝気		
小型合併浄 化槽 (10ヶ所)	嫌気性消化	46 ± 8	0.13
住宅団地 合併浄化槽	長時間曝気	58	0.12

d) し尿単独処理浄化槽、小型合併処理浄化槽

宇部市の単独処理浄化槽12ヶ所および小型合併処理浄化槽10ヶ所についてTHMF PおよびTOC、E260、塩素イオン等の項目について実測を行い、その実測の平均値から排出率を求めた。排出率の計算においては、単独処理浄化槽への流入水の濃度をし尿排水の発生濃度(表-6参照)と仮定して、排出率14.3%が得られた。また、小型合併処理浄化槽への流入水の濃度を家庭下水の発生濃度(表-6参照)と仮定して、排出率13.2%が得られた。これらの値は、住宅団地の合併処理浄化施設の排出率と同程度の値であった。表-11は以上の測定結果の平均値から計算した排出率をまとめたものである。

表-12 業種別の排水施設の除去率<sup>10)</sup>

製造業種	処理方法	除去率		
		BOD	COD	THMFP
畜産食料品	活性汚泥法	100	97	93
乳製品	活性汚泥法	97	88	68
果実缶詰	活性汚泥法	98	93	86
ビール製造	活性汚泥法	100	98	89
種類製造業	活性汚泥法	99	97	93
紙・パルプ	回転円板法			
	活性汚泥法	94	71	69
と畜場	活性汚泥法	99	94	95
医薬品製造	活性汚泥法	98	87	78
繊維製品	活性汚泥法	90	91	85
板紙製造	凝集沈澱法	31	58	54

e) 家畜汚水

家畜糞尿については、浄化処理、農地還元、無処理等の処理・処分形態がある。浄化処理においては、畜産農業排水の調査結果<sup>10)</sup>をもとに、排出率を17%と仮定した。また、無処理では排出率を60%とし、農地還元では排出率を10%とした。

f) 工場排水

業種別処理水のTHMFPの測定結果<sup>10)</sup>によると、THMFPが300 μg/lを超える業種は、製紙パルプ製造業、繊維染色整理業、各種食料品製造業等である。表-12に業種別排水処理施設における原水および処理水の測定結果からまとめた除去率を示す。この表からTHMFPの除去率はCODの除去率に比べ、やや低い値を示していることがわかる。

5. THM 前駆物質の流下過程における変化

THM 前駆物質の流下過程における変化については、山口県厚東川の人為汚染の影響が少ない上流部5ヶ所において平成7年5月～11月まで毎月1回THMFPおよび流量を測定し、その結果からTHMFP、負荷量と河川流量との関係について検討した。図-5に示すように河川の流量が0.025～1.00m<sup>3</sup>/sではTHMFPは大きく変化しない。すなわち、この図から流下過程におけるTHM 前駆物質の変化は小さく、一方THMFP負荷量は流量の増加に比例して増加することがわかる。なお、文献<sup>9)</sup>によると人為汚染の影響が大きい桂川、宇治川など河川では、人為汚染に起因するTHMFPが高いため、河川流量の増加に伴う希釈が大きく、THMFPは流量の増加にともなって減少すると報告されている。また、本研究では、山林流出水、河川水、生し尿、し尿処理場

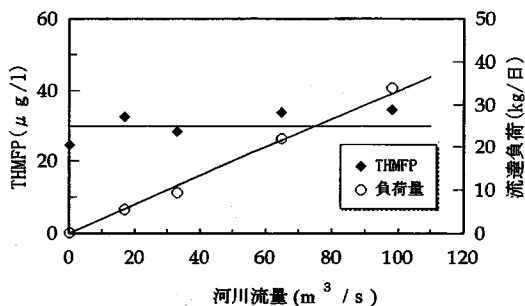


図-5 河川流量とTHMFP負荷量

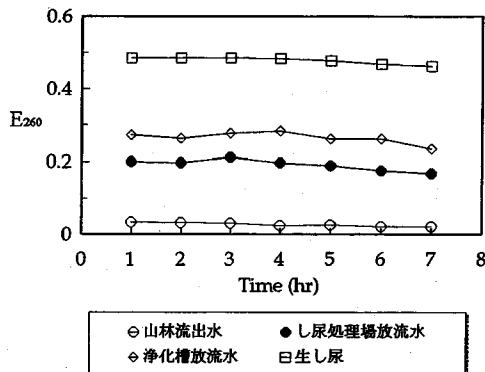


図-6 試料のE260の経時変化

からの放流水等の試料を用いて、攪拌しながら20℃で1時間に1回E260を測定し、その変化について検討した。図-6はそれぞれの試料のE260の経時変化を示したものであり、この図から時間の経過により、E260は大きな変化は見られないことがわかる。以上の結果から、THM 前駆物質は、河川流下中に自浄作用を受けることが少ないと考えられる。河川に流入したTHM 前駆物質は分解することなく流下し、前駆物質の流入に伴って負荷量が増加する。したがって河川の上流から下流に向かって順次前駆物質を調査することにより、その汚染の影響を推定することが可能である。

6. 厚東川流域における汚染負荷解析

実例研究として、水道水源として重要な水系である山口県厚東川流域を例にとり、この流域におけるTHMFPの人為汚染源と自然性汚染源とを分類して、各種排水の発生負荷量を求め、THMFPの汚染負荷解析を行った。厚東川水系は、上流を山口県秋吉台に発し、中流に宇部市および小野田市の水道、工業用水をまかなう厚東川ダム(小野湖)を有し、宇部市の西南部から周防灘にそそぐ2級河川である。その流域は図-7に示すように、面積320km<sup>2</sup>、流量が

汚染負荷解析対象地域

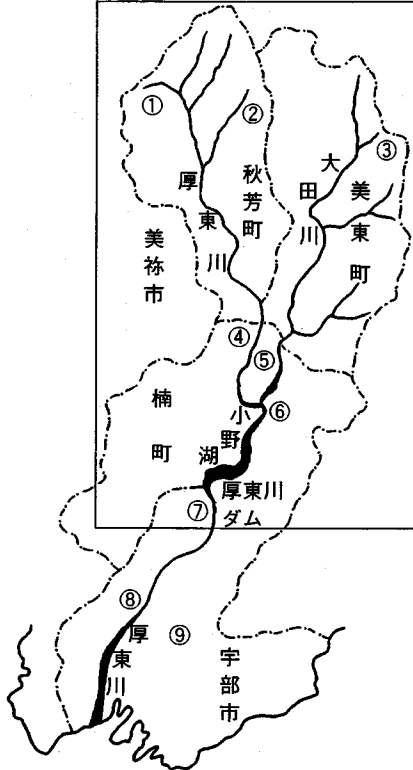


図-7 厚東川水系および観測地点

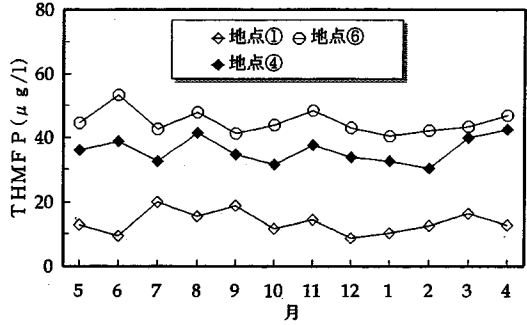


図-8 各調査地点の THMF P 季節変化

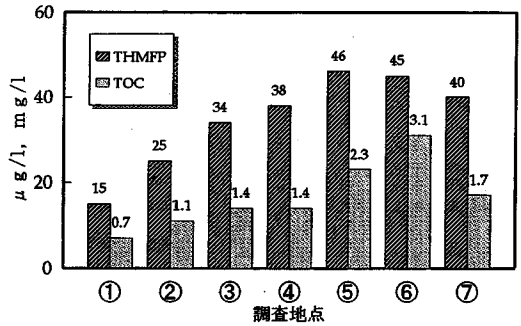


図-9 各調査地点の THM 生成能と TOC

表-13 厚東川流域の発生源基数 (1994年)

地域名	し尿排水人口(人)					生活雑排水人口		家畜(頭)	
	下水処理	合併浄化槽	単独浄化槽	し尿処理施設	自家処分	処理	未処理	豚	牛
美東町の大部分	0	889	530	2948	2000	2105	3373	0	710
楠町の一部	0	43	68	677	480	411	814	0	97
秋芳町	0	842	488	3168	2695	625	5726	0	605
美祿市の一部	0	29	10	394	15	219	200	216	680
宇部市小野地区	0	311	148	636	659	800	643	0	113

地域名	工業汚染源(出荷額:億円)					面積:(km <sup>2</sup> )			
	食品製造	衣料・繊維	木製品製造	皮革製造	機械製造	山林	水田	畑	市街地
美東町の大部分	0.87	0	0.94	0	0	94.6	10.4	3.3	15.6
楠町の一部	0.41	0.20	0.56	0	0.39	20.7	0.3	0.5	4.5
秋芳町	2.35	0	3.30	0.71	0	78.6	12.5	3.4	21.1
美祿市の一部	0	0	0.00	0	0	15.9	0.1	0.2	1.9
宇部市小野地区	0.27	0	0.20	0	0	26.3	0.5	0.8	4.5

$1.06 \times 10^5 \text{ m}^3/\text{日}$ , 人口 2.5 万人の農村地帯である。

(1) 河川の THMF P の季節変化と流域の発生源基数  
 厚東川水系の 8ヶ所における毎月 1 回の連続調査を行った。図-7 は厚東川流域および調査地点であり、図-8 は THMF P の季節変化である。図-8 から

THMF P は春期, 夏期, 秋期の間であり大きな変化はなく, 冬期には若干低い傾向があるが, 年間には大きな季節変化は見られなかった。また, 図-9 は各地点における年間の THMF P の分析結果を示したものであり, この結果から下流へいくにつれて徐々に増加傾向になることがわかる。表-13 は 1994 年に行われた調査において用いられている流域の発生



表-14 厚東川流域の THM 生成能と流達負荷量

河川・地点	流量	THMFP	流達負荷量	
	万 m <sup>3</sup> /日	μg/l	kg/日	
厚東川 ①地点	2.45	13.6	0.33	
	②地点	15.89	22.2	3.52
	④地点	64.56	35.4	22.85
大田川 ③地点	0.2	35.9	0.07	
	⑤地点	32.78	44.3	14.52
両河川合流 ⑥地点	97.34	46.0	44.78	
ダム流出点 ⑦地点	102.56	38.5	39.49	

表-16 厚東川流域の発生源別 THMFP 汚染負荷量

発生源	発生 負荷 kg/日	排出 負荷 kg/日	排出 率	寄与率 (%)	
				発生 負荷	排出流 達負荷
生活下水	11.90	3.25	0.27	19.3	7.1
し尿	6.24	0.59	0.09	10.1	1.1
雑排水	5.66	2.66	0.47	9.2	5.8
家畜排水	1.06	0.18	0.02	1.7	1.1
工場排水	6.63	0.33	0.05	10.7	2.8
自然性	24.08	24.08	1.00	39.0	51.0
その他*	18.13	18.13	1.00	29.4	38.4
合計	61.80	45.97	0.74	100.0	100.0

\* は農地、市街地を示す。

表-15 厚東川流域の THM 前駆物質の汚染負荷量

地域名	発生 負荷量 kg/日	排出 負荷量 kg/日	流達負荷量 kg/日	総括 排出率 *	流達率 **	排出負荷量寄与率 (%)					
						し尿 排水	雑排水	家畜 汚水	工場 排水	面源負荷	
										自然性	その他
大田川流域	22.21	14.78	14.52 (大田川流入点)	0.665	0.982	1.1	4.9	0.9	0.7	54.9	37.5
厚東川上流域	32.22	26.04	22.85 (厚東川流入点)	0.808	0.877	1.2	7.2	1.6	2.2	50.8	37.2
小野湖流域	7.37	5.15		0.699		0.7	2.3	0.4	10.2	41.5	44.9
全流域	61.80	45.97	39.49 (厚東川流出点)	0.744	0.859	1.1	5.8	1.1	2.8	51.0	38.4

注：\* 総括排出率=排出負荷量/発生負荷量

\*\* 流達率=流達負荷量/排出負荷量

源基数の調査値を示してあるが、本解析の基準年(1995年)に比べて大きな変動はなく、この値を用いて負荷解析を行った。

(2) THMFP の流達負荷量

流達負荷量はそれぞれ図-7 に示す厚東川、大田川の両河川の上流部の①、②、③地点、厚東川の流入点④、大田川の流入点⑤、両河川の合流地点⑥および厚東川ダム(小野湖)からの流出点⑦における1年間の流量と THMFP の実測値の平均から求めた。表-14 は流達負荷量をまとめたものである。

(3) 流域の THMFP 汚染負荷量と寄与率

表-15 は、表-5 ~ 表-12 に示した発生原単位および排出率と表-13 の発生源基数値より求めた THMFP の発生負荷量および排出負荷量をまとめたものである。総括排出率は、地域全体の発生負荷量と排出負荷量との比で 0.744 であった。流達率は、排出負荷量と流達負荷量との比で求められ、人為汚染源の影響の少ない河川における THMFP の流達率は 0.859 ~ 0.982 とかなり高い値を示した。本研究では、THM 前駆物質の河川の流下過程における変化を河

表-17 浄水処理過程での THM 生成能

処理方式	原水	処理水	除去率 %
	μg/l	μg/l	
急速ろ過 河川水	41	28	29.9
ダム水	37	29	20.0
緩速ろ過	34	29	13.8

川の流量と THMFP、負荷量の関係および室内実験の結果による考察を行ったが、上記の負荷解析結果から得られた流達率が高い値を示しており、THM 前駆物質は難分解性物質であり、流下過程で自浄作用を受けにくく、減少率が低いという点で一致した結論が得られた。

表-16 は、厚東川流域の発生源別 THMFP の排出率と寄与率を示したものである。この表から人為的汚染の影響が少ない地域においては、自然性負荷の寄与率が発生負荷で 39%、排出負荷で 51% と大きくなることが明らかとなった。

本稿では、面源負荷原単位、流達率をマクロに解析する手法を提案しており、ここで得られた流達率は年平均という意味をもつものである。以上に示したように水域ごとの実例研究を積み重ねることによ

って、それぞれの水域の汚染源の THMF 発生・排出および流域における寄与率を明確にすることによって、その排出対策を講じることができると考えられる。

また表-17 に示すように、厚東川を水源とする浄水場の浄水過程における THMF の変化をみると、急速ろ過過程における原水（河川水）の THMF は  $41 \mu\text{g/l}$ 、処理水は  $28 \mu\text{g/l}$ 、除去率は 30% 程度であり、緩速ろ過における原水（河川水+ダム水）の THMF は  $34 \mu\text{g/l}$ 、処理水  $29 \mu\text{g/l}$ 、除去率は 14% 程度であった。このことから、浄水処理による THM 前駆物質の除去率は低く、それゆえに THM 前駆物質の発生源および公共水域における制御が重要となるものと考えられる。

## 7. 結語

本研究で得られた知見をまとめると以下のようになる。

- (1) 原単位法による THMF の汚染負荷解析は、その生成要因物質の発生、排出量および公共水域への流達負荷量の予測手法として有効である。
- (2) 汲み取りし尿の THMF の発生原単位は  $36\text{mg}/\text{人}\cdot\text{日}$ 、浄化槽汚泥の発生原単位は  $35\text{mg}/\text{人}\cdot\text{日}$  であり、し尿処理場、下水処理場、し尿処理の単独浄化槽の排出率は、それぞれ 5.2%、22.0%、14.0% であった。
- (3) 厚東川流域の実例研究を通じて、人為汚染の影響が少ない河川においては THM 前駆物質の変化率が小さく、流達率が大きいことから河川の上流、下流を順次調査することによってその汚染負荷を推定することが可能である。
- (4) 厚東川流域の実例研究では、水域に流達する THM 前駆物質の汚染負荷の 50% が自然性によるものであった。こうした実例研究を積み重ねることによって、それぞれの水域の汚染源を明確にし、その排出対策を強化することができると考えられる。

## 参考文献

- 1) 相沢 貴子, 真柄 泰基: トリハロメタン生成能による浄水プロセス評価 (I), 水道協会雑誌, Vol.557, pp.25, 1981.2.
- 2) 相沢 貴子, 真柄 泰基: トリハロメタン生成能による浄水プロセス評価 (II), 水道協会雑誌, Vol.558, pp. 17, 1981.3.
- 3) 丹保 憲仁, 堤 行彦ら: トリハロメタン生成能に関する研究 (I), 水道協会雑誌, Vol.574, 21, pp.159-177, 1982.7.
- 4) 丹保 憲仁, 堤 行彦ら: トリハロメタン生成能に関する研究 (II), 水道協会雑誌, Vol.576, 22, pp.159-177, 1982.8.
- 5) 住友 恒ら: トリハロメタン生成能の原水監視, 水道協会雑誌, Vol.588, pp.26, 1983.9.
- 6) Gary L. Amy, Jill M. Thompson, et al: Evaluation of THM Precursor Contributions From Agricultural Drains, *Jour. AWWA*. Vol.82, No.1, 1990.1.
- 7) Rachel E. Miller, Stephen J. Randtke, et al: Organic Carbon and THM Formation Potential in Kansas Groundwaters, *Jour. AWWA*. Vol.82, No.3, 1990.3.
- 8) Joseph G. Jacangelo, Nancy L. Patania, et al: Ozonation: Assessing Its Role in the Formation and Control of Disinfection By-products, *Jour. AWWA*, Vol.81, No.8, 1989.8.
- 9) 大沢 利名, 真柄 泰基ほか: 水道における有機塩素系化合物の指標化に関する研究, 環境保全全集, 9-1, 1978.
- 10) 合田 健ら: 低沸点有機塩素系化合物の生成原因物質の制御に関する研究, 環境保全全集, 10, 1-26, 1983.
- 11) 永淵 義孝, 松井 宏, 中村 又善ほか: 住宅団地合併浄化槽におけるトリハロメタン生成能の実態, 福岡県保健環境研究所年報, 第 19 号, pp.74-78, 1992.
- 12) 合田 健ら: 低沸点有機塩素系化合物の生成原因物質の制御に関する研究, 環境保全全集, 6, 1-23, 1985.
- 13) 高見 寛: 開発と水文環境アセスメント技法, 鹿島出版会, 1980.
- 14) 合田 健ら: 低沸点有機塩素系化合物の生成原因物質の制御に関する研究, 環境保全全集, 8, 1-20, 1984.
- 15) 合田 健ら: 低沸点有機塩素系化合物の生成原因物質の制御に関する研究, 環境保全全集, 12, 1-18, 1982.
- 16) 國松 孝男, 村岡 浩雨: 河川汚濁モデル解析, 技報堂出版, 1989.
- 17) 農林水産統計情報部編, 農林水産統計, 1991.

(1996.2.5 受付)

## STUDY ON POLLUTION LOAD ANALYSIS OF TRIHALOMETHANE FORMATION POTENTIAL

Chun mo ZHU, Masao UKITA, Hiroshi NAKANISHI and Tsuyoshi IMAI

In this study, trihalomethane formation potential (THMFP) was considered a kind of water quality item, same as COD, or BOD. The discharge of THM precursor from various sources, and its runoff process to public water area were illustrated using pollutant-load-factor method for quantitative study. As a case study, the pollution load analysis of THMFP in KOTOH river basin was also carried out. The results indicated that about 50% of pollution load of THMFP was attributed from nature. It was shown that the pollutant-load-factor method was effective for the management of THM polluted in river basins.