

論 文

津山市小田中浄水場系水道水中のトリハロメタン量の変動

Fluctuation of Trihalomethane Contents in Tap Water Supplied from
Odanaka Water Treatment Plant in Tsuyama City.

鶴崎 実

緒 言

試料及び実験方法

水道水中には、浄水場で実施される塩素処理によつて副次的にトリハロメタン（THM）や種々の有機ハロゲン化合物などの変異原性物質、発癌性物質が作り出されていることが知られている（Bellar et al., 1974, Gray 1994）。それらの存在は、水道水への不安を大きくし、信頼感を損なわせる大きな要因となっている。総THM量は、1994年12月以降水質基準項目の1つとなり、100ppb以下(1ℓ水道水に0.1mg以下)に保つことが義務付けられている。一昨年、岡山県の水道水質データ（各浄水場から県への水道水質検査報告書のデータ）に基づいて、岡山県内の水道の平均総THM濃度は約8ppb(1992年度)で、その中でダム水や貯水池、河川水などの地表水を水源とする水道は、11~31ppbとTHM濃度が高く、地下水（井戸水、伏流水）の5倍程度の濃度であることを報告した（鶴崎 1995）。津山市水道は、吉井川あるいは加茂川の河川表流水を水源としているので、県平均THM濃度よりは高い部類に入る。先の報告では、主として水道水源の種別とTHM濃度の関係について考察を行ったが、THM濃度を決定する要因には、この他に水温、原水の有機物濃度および有機物の質などが考えられる。本研究は、津山市水道水を対象として、THM濃度を長期にわたり連続測定を行い、水温とTHM濃度の関係、水源河川の流量の変動とTHM濃度の関係について考察を行つた。

1. 水道水試料

1994年5月28日から1994年12月28日までの7ヵ月間、津山市上河原の美作女子大学構内の水道蛇口から採水した。この水道蛇口から得られる水道水は、大学の受水槽を経由していないもので、水道管と連続している。ここで採水される水道水は、津山市水道局小田中浄水場小田中第3配水池系である。小田中浄水場の水源は吉井川本流で、第1水源は津山市中島嵯峨山の吉井川右岸、第2水源は津山市小田中原南の吉井川左岸で、いずれも河川表流水となっている。浄水方法は、急速ろ過法で、塩素処理には塩素ガスを用いている。1日の最大配水量は、25,540m³で、津山市水道水のほぼ半分強を占めている。採水地点（美作女子大学校内）は、小田中浄水場から直線距離で約4.5kmの位置にある。

2. 採水方法

採水に先立って、蛇口付近に滞留している水道水を除くため1分以上水道水を出したままにした後、1ℓ瓶にはほぼ一杯採水した。採水時に、採水時間、水温、天候を記録した。採水後、直ちに(2分以内)研究室に持ち帰り、残留塩素濃度およびTHMの抽出操作を行つた。残留塩素濃度は、オルトトリジン法(OT法)を用い、目視による比色で定量した。

3. THMの測定

栓付き15ml試験管に、水道水試料を10mlとり、n-

ペンタン2mlを加え、栓をした後よく振とうしTHMをn-ペンタン層に抽出した。一定量のn-ペンタン層をガスクロマトグラフ(HP5890 series II Plus, 使用カラム:DB-624, 30m × 0.53mm φ, 検出器:ECD)に導入し、THM類を分離定量した。クロロホルム、プロモジクロロメタン、ジプロモクロロメタン、プロモホルム量の合計を総THM量とした。

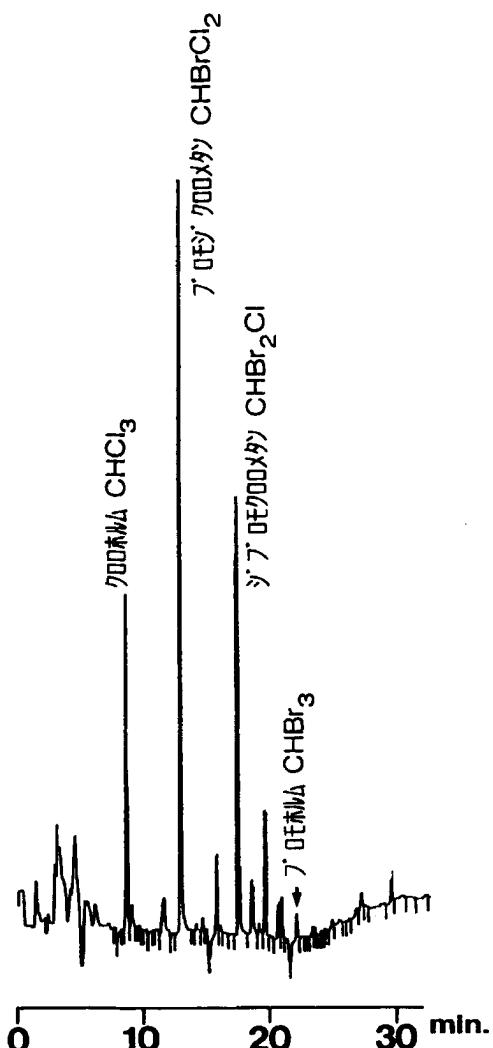


図1. 津山市水道水(10月9日)中のTHM類のガスクロマトグラム分析。

条件:40°Cで4分保持した後、4.5°C/min.で120°Cまで昇温

4. 吉井川の流量データ

建設省の津山市内吉井川流量データを建設省中国地方建設局吉田ダム工事事務所から提供してもらった。流量測定地点は津山市昭和町2丁目で、この地点は小田中浄水場の取水堰(第1水源)の下流約4kmに位置している。本研究には日流量データを用いた。

結 果

美作女子大学水道水(10月9日試料)のn-ペンタン抽出層のガスクロマトグラムを図1に示した。クロロホルム、プロモジクロロメタン、ジプロモクロロメタン、プロモホルムの4種のトリハロメタンが確認された。通常水道水中の総THM量はこれら4種の化合物の合計量として求められている(上水試験方法 1993)ので、THM量は本研究においてもこれら4種の化合物量の合計とした。

図2に1994年6月1日から12月28日までの水道中のTHM量、総THM量に占めるクロロホルム量の割合(クロロホルム/THM比)、水道水の温度(水温)および吉井川流量をそれぞれ示した。

考 察

1. 津山市水道(小田中浄水場系)のTHM量

1994年6月から12月までの美作女子大学水道水中のTHM量は、図2(最上段)に示したように季節的に大きく変動している。最大値が8月1日の40.6μg/l、最小値が12月28日の6.5μg/lで、最大値は最小値の6倍を越える。水道水質基準では、THM濃度は給水栓で100μg/l以下と定められているので、今回のすべての測定結果は基準値以下である。しかし、最大40μg/lの値は決して低いものではない。THM濃度は、7月、8月の夏期に高く、11月、12月の冬期に低いという季節変動が認められた。

6~12月の全データ(198日分)の平均値は、22.2μg/l(±9.6μg/l)となった。この平均値は、岡山県内水道の平均THM濃度8μg/lよりも高いのはもとより、

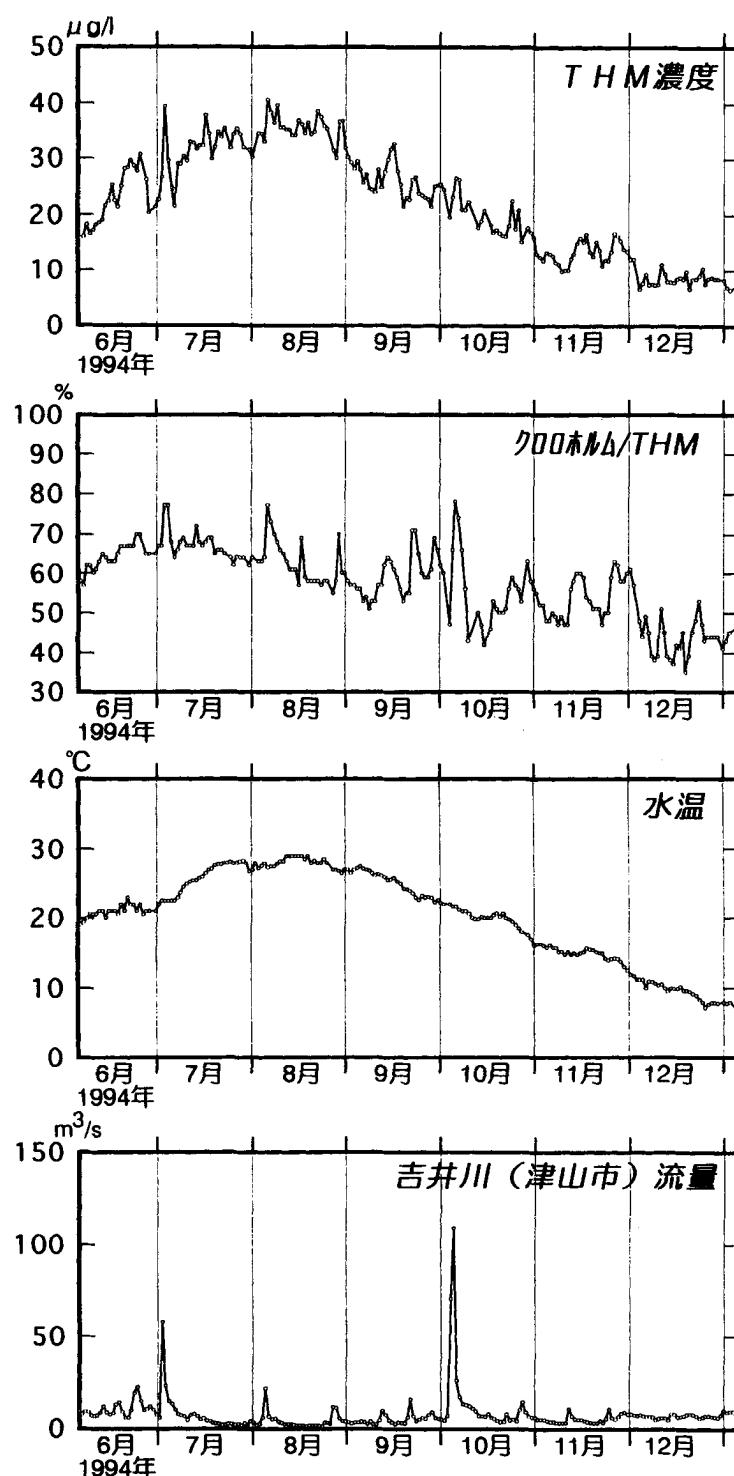


図2. 津山市水道水のTHM濃度、クロロホルム/THM、水温、吉井川流量の変化

岡山県内で河川表流水だけを水道原水とする水道（22净水場系）の平均THM濃度 $11.7\mu\text{g}/\ell$ （鶴崎1995）と比べてもかなり高い。地表水を水道原水に利用している大都市圏（東京、近畿地方）の水道のTHM濃度は、通常 $15\sim50\mu\text{g}/\ell$ の範囲（田中ら 1993, 足立ら 1994）にある。津山市水道（小田中净水場系）のTHM量は、それらとも大差がない。津山市では、吉井川上流域から水道原水を取水しているので、岡山の他地域や大都市圏と比べると、有機汚濁の影響が小さいが、THM濃度は必ずしも低くない。Rook(1974)は、THMの起源物質として自然界のフミン質であると考えた。また、浦野ら(1987)も、腐葉土抽出水や試薬フミン酸水溶液のTHM生成能が高いことを示している。有機汚濁の比較的少ない上流域の河川表流水を水道原水でもTHM濃度が低くならない理由は、おそらく山間部森林土壤から流入する腐植物質によるものと思われる。津山市の場合、自然界の腐植物質と周辺の生活排水汚染が合わさり、THM濃度の高い水道水を生じさせているものと考えられる。

2. 水温とTHM濃度との関係

水温の変動とTHM量の季節変動は類似している。図3に示すように、水温とTHM量との間には、相関係数0.95（データ数198）の高い相関が得られた。回帰直線は、 $Y = 1.2X - 2.0$ となった。THMの生成因子には、pH、水温、有機物濃度、塩素注入量がある。伊藤ら(1984)によると、THMの生成量は水温の上昇、塩素注入量の増加、起源有機物濃度の増加に伴って増える。津山市小田中浄水場の塩素注入量は夏期と冬期でその差は2倍を越えない（津山市小田中浄水場 personal communication 1996年：浄水場における浄水の残留塩素量は、夏期0.9ppm程度、冬期0.5ppm程度）ものの、夏期は確かに残留塩素濃度が少し高い。また、有機物濃度も、夏期は冬期よりわずかに高い（鵜崎 未発表）。それ故、夏期の水道水中のTHM濃度が高い要因として、塩素注入量や有機物濃度の影響も少なからずあると考えられる。しかし、水温の差は、冬期と夏期で20°C以上もあり、この差はTHMの生成速度を数倍大きくする（伊藤ら 1984）。津山市では、先に述べたようにTHM濃度は最小と最大で6倍程度の差があるので、この差は主として水温の影響—水温上昇による反応速度の増加—を考える必要があると思われる。

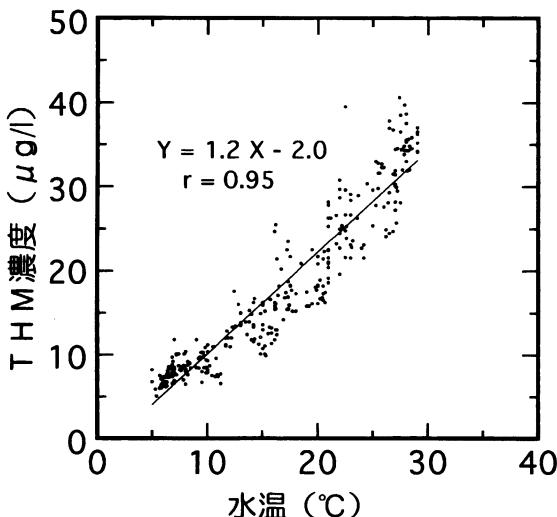


図3. THM濃度と水温の相関

3. クロロホルム/THM比の季節変動

図2（2段目）に示したように、クロロホルム/THM比は、7月の60–70%前後から、12月の40–50%へ変動した。クロロホルム以外のTHM類はいずれも臭素を含んでいる。本研究の測定結果は、臭素化THMの割合が冬期に高く、夏期に低いことを示している。臭素化THMは、原水中に含まれる臭素イオンを次亜塩素酸が酸化して次亜臭素酸を生成し、それが有機物と反応するというメカニズムでつくられる。また、次亜臭素酸は、次亜塩素酸よりも有機物との反応性が高いことが知られている。臭素化THMの割合が夏期に低くなる原因としては次のような可能性が考えられる。(1)原水中の臭素イオン濃度が夏期は冬期よりも低い、（そうであれば、臭素化THMの生成が夏期に相対的に少なくなる）(2)原水中の臭素イオン濃度は一定で、夏期に有機物濃度が高い、（有機物濃度が高いと臭素化された後に、塩素化しうる有機物が残されているためクロロホルムが多く生成する）。(3)原水中の臭素イオン濃度は一定で、夏期の原水中の有機物のTHM生成能が高い（THM生成能が高いと臭素化された後に、塩素化しうる有機物が残されているためクロロホルムが多く生成する）。臭素は地殻中にアルカリ金属（Naなど）の塩化物（NaCl）とともに臭化物として存在しており、海水中には比較的濃度が高い(65mg/l程度)。それ故、河川水中の臭素イオンの由来は、海からの送風塩や岩塩鉱床などの風化によって溶出したものと考えられ、河川水に含まれる臭素イオンに季節変動が生じるとは考えにくい。したがって(1)の可能性は少ない。一方、先に述べたように原水中の有機物濃度は夏期に高く、冬期は低くなるので、(2)の可能性は残される。また、河川表流水中の有機物のTHM生成能が季節によって違うかどうかについてはこれまで報告がないが、吉井川最上流部（奥津町）の表流水のTHM生成能を測定した結果では、夏期はむしろ生成能が低い傾向がある（鵜崎ら 未発表）。それ故、(3)の可能性も低いと思われる。以上から、クロロホルム/THM比が夏期に高くなる要因として最もありそうなことは(2)と考えられる。

4. 吉井川流量変動とTHM濃度との関係

図2(最下図)に示したように、測定期間中、吉井川流量が降雨の影響により急増したケースが10回以上見られた。流量の増加が水道水中のTHM濃度にどのような影響を与えていたかを示すため、増水時前後を拡大し図4に示した。この図には、6月28日、7月31日、

9月29-30日の増水日を中心とした前後合せて25日間を示した。尚、6月28日の増水は梅雨期間の集中豪雨で、7月31日は雷雨、9月29日は台風による増水であった。また、図5には、同様に流量とクロロホルム/THMの関係を示した。

増水の影響は増水日当日でなく翌日に、THM濃度

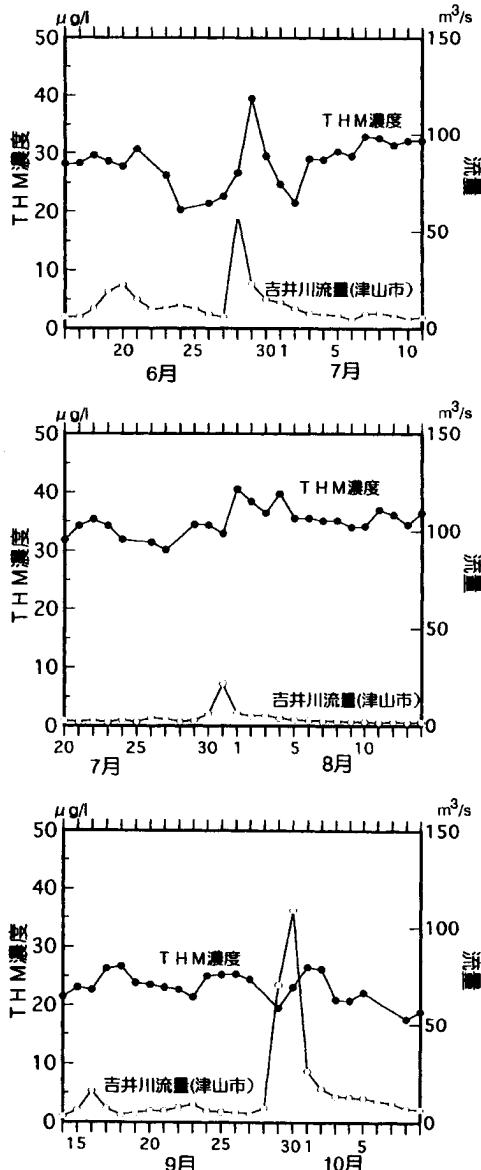


図4. 吉野川流量増加日前後における水道水中のTHM濃度の変化

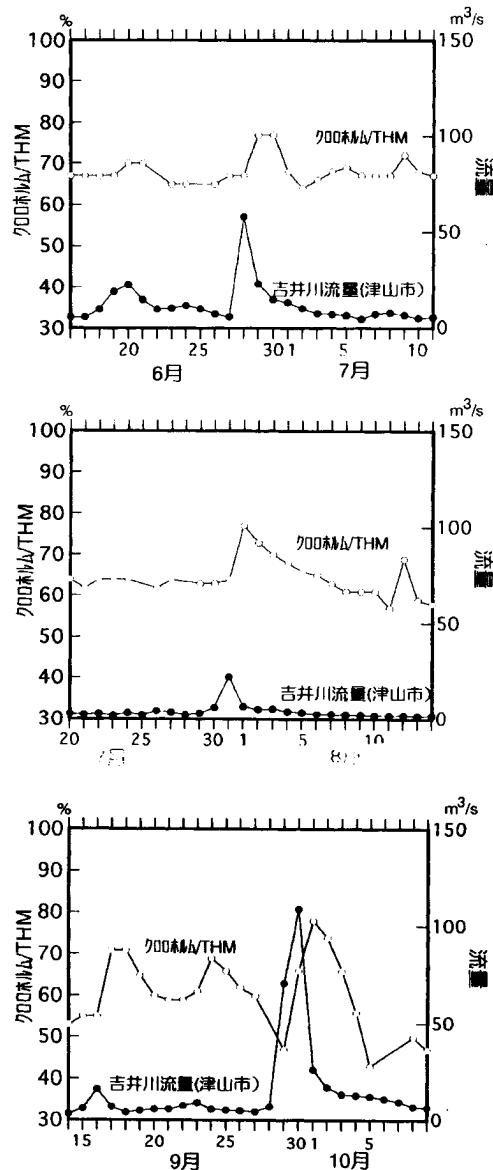


図5. 吉野川流量増加日前後における水道水中のTHMに占めるクロロホルムの割合の変化

の増加、クロロホルム／THMの増加となって現れた。津山市街地では小田中浄水場から1～2日以内に水道水が届く（津山市小田中浄水場 personal communication 1996年）ので、この遅れは、増水した時に取水された河川表流水が、水道水採水地点に届くまでの時間を反映していると考えられる。

増水に伴ってTHM濃度が何故増加するかについてははっきりしたことは言えない。ただ、増水時前後に水道水温の変化や残留塩素量の変化は認められなかつたことや、pHの大きな変化も考えにくいで、増水に伴って原水中の有機物濃度や質が変化したためと考えることが出来る。また、増水に伴ってクロロホルム／THM値が変化することが同時に認められた（図5）ことも、そのことを支持している。

ま　と　め

1994年6月～12月まで津山市水道水（小田中浄水場系）のTHM濃度の連続測定を行った結果、THM濃度の変化について次のような特徴があることが明らかになった。

- (1) THM濃度は、6～40 $\mu\text{g}/\ell$ の範囲で、年平均濃度は22 $\mu\text{g}/\ell$ であった。この濃度は、岡山県内の河川表流水を水源とする水道の中では高い方に属し、大都会の濃度範囲に匹敵する濃度であった。
- (2) THM濃度は、夏に高く、冬に低くなる季節変動を示した。これは、主として水温の影響が大きいと考えられた。
- (3) 集中豪雨などによって短期に河川表流水（水道原水）の水量が上昇することによって、THM濃度が一時的に上昇することが明らかになった。

謝　辞

本研究において、藤村崇子さん、高橋明子さん、古庄志真子さんの三氏には、私が津山を留守にした時に、採水、THM抽出を手伝っていただきました。また、原史子さんは、データの整理をお手伝いいただきました。皆様に心よりお礼申し上げます。

引用文献

- 足立昌子、上田順子、舟倉由紀子、小林正（1994）近畿地方における水道水中のトリハロメタン濃度.衛生化学 40(4), 388-392.
- Bellar,T.A., Lichtenberg,J.J. and Kroner,R.C. (1974) The Occurrence of Organohalides in Chlorinated Drinking Waters. J. American Water Works Association, 66,703.
- Gray,N.F.(1994) Drinking Water Quality. John Wiley & Sons p.315.
- 伊藤和廣、相沢貴子、羽布津博明、真柄康基（1984）河川水の全有機性ハロゲン（TOX）生成能と浄水処理過程におけるその挙動. 水道協会雑誌 53(8),14-21.
- 上水試験方法解説編（1993）日本水道協会
- Rook,J.J. (1974) Production of potable water from a highly polluted river. Water Treatment and Examination, 21, Part3, p259.
- 田中一浩、守田康彦、鹿田雄喜、高橋敬雄（1993）種々の条件下における水道水中の全有機塩素およびトリハロメタン量について（第1報）－煮沸の効果と全国各地のTOX、THMs量. 環境化学 3 (1),85-89.
- 浦野紘平、武政隆夫、伊藤新治、陸熹梁（1987）水の有機ハロゲン化合物生成ポテンシャル. 水道協会雑誌 56(8), 37-47.
- 鵜崎 実（1995）岡山県水道水のトリハロメタン濃度：1992年度県水道水質資料の解析. 美作女子大学・美作女子大学短期大学部紀要 40,37-44.

（1996年12月2日 受理）