

河川・湖沼におけるトリハロメタン生成能 及び関連物質の特性*

山口県衛生公害研究センター

才本光穂*・神田文雄・柴田公子
福田哲郎・田中克正・山本征治
前田達男・石津保子**

Trihalomethanes Formation Potential and Characterization of Relative Substances in River and Lake Waters

Mitsuo SAIMOTO, Fumio KOUDA, Kimiko SHIBATA
Tetsuro FUKUDA, Katsumasa TANAKA, Seiji YAMAMOTO
Tatsuo MAEDA, Yasuko ISHIZU

Yamaguchi Prefectural Research Institute of Health

はじめに

近年、水道原水の汚染が顕在化し、大きな社会問題となったため、水道水源2法が平成6年3月に公布、同年5月に施行され、対策が強化された。今後、同法に基づき、トリハロメタン生成能 (THMFP) の高い水域については、水域指定し、所要の対策が実施されることとなる。

トリハロメタン (THM) は、水道原水の塩素滅菌に伴って生成される。そこで、原水中のTHM前駆物質の濃度を推定する方法としてTHMFPの検査方法が検討され、平成6年7月14日付け環水官第149号・環水規第163号環境庁水質保全局水質管理課長・水質規制課長通知にて示された。

THMは、原水中の有機物を構成するカルボニル基、カルボキシル基などに隣接するメチル基が、ハロホルム反応によって塩素化されて主に生成するといわれており、アセチル基、 β -ジケトン構造、エトキシ基を有する化合物で生成し易い¹⁻³⁾。このようなTHMの生成に關与するカルボニル基等の官能基はフミン物質に多く含まれることが明らかになっており^{4, 5)}、このためTHMFPは森林等の自然界からも発生するものである。朱ら⁶⁾は、厚狭川水系におけるTHMFPの汚染負荷解析を行った結果、約50%が自然性のものであったと報告している。

本県においては、水道水源となる河川、湖沼におけるTHMFPの汚染実態や特性が十分に把握されていない状

況にある。そこで、本報では、県内の水道水源となっている16河川19地点及び4湖沼4地点においてTHMFPを含む30項目に関する詳細な調査を実施し、調査結果の解析を行って、水系別特性、季節変動、成分間の相関などの実態を明らかにした。

調査方法

1 調査対象及び項目

図1並びに表1に示す16河川19地点及び4湖沼4地点において、THMFPを含む30項目について調査を実施した。

これらの項目及び測定方法を表2に示す。



図1 調査水系及び地点
● 調査地点

* 本研究の要旨は第10回水環境フォーラム山口 (1997年1月, 山口市) において発表した。

* 山口県東京事務所: 東京都千代田区霞が関3-3-1 尚友会館4階

** 山口環境保健所: 山口市吉敷3325-1

表1 調査時期

水系名	地点名	調査時期	水系名	地点名	調査時期
錦川	EC-4~6	春季:5月	三隅川	MC-2	春季:5月
由宇川	PC-1	夏季:8月	阿武川	BC-3	夏季:8月
柳井川	NC-2	秋季:11月	田万川	TC-2	秋季:11月
田布施川	AC-2	冬季:2月	菅野湖	EC-9	冬季:2月
島田川	CG-2		菊川湖	KC-1	
末武川	CG-6		豊田湖	TC-1	
厚東川	UC-2		榎野川	YC-2	上記の他
厚狭川	KC-4		有帆川	KC-1	平成7年
木屋川	SC-2, 3		掛淵川	LC-3	7月以降
深川川	FC-1		小野湖	OC-1	は毎月

表2 調査項目及び測定方法

調査項目	測定方法
水温, 外観, 色度, 濁度, pH, 過マンガン酸カリウム消費量, COD, TOC, DOC, BOD, NH ₄ -N, Fe, Mn, Cl, Br, アルカリ度, 紫外線吸光度 (220 nm, 260nm), クロロホルム, プロモジクロロメタン, クロロジプロメタン, プロモホルム, 総トリハロメタン, クロロフィルa (小野湖のみ)	上水試験方法
THMFP (クロロホルム, プロモジクロロメタン, クロロジプロメタン, プロモホルム, 総トリハロメタン)	平成6年7月14日付け環水管第149号, 環水規第163号
気温	JIS K 0102

2 調査期間

平成6年5月から平成8年7月まで表1に示す時期に年4回調査を実施した。

なお、榎野川、有帆川、掛淵川及び小野湖については、平成7年7月以降は毎月調査を実施し、湖沼については、表層の調査であるが、小野湖については、平成7年7月から中層についても実施した。また、Br

については、平成7年8月まで調査した。

結果及び考察

1 水温区別THMFP濃度

THMFPについて、河川、湖沼ごとに水温区別に集計した結果を表3に示した。表3を「トリハロメタン生成能の濃度に係る水質目標値」(平成7年5月8日付け環水官第120号)と比較してみると、いずれも年平均値は水質目標値を達成している。また、各月のデータをみると、河川については、20~25℃で有帆川の平成8年6月の1回、25~30℃で有帆川、30℃超で木屋川の平成6年8月の1回が水質目標値を超過していた。また、湖沼については、小野湖において20~25℃で平成8年7月の1回、30℃超で平成6年8月の1回が水質目標値を超過していた。これらはいずれも2か月以上連続する超過ではないうえ、年平均値としては、水質目標値を達成しているが、水温が上昇する6月~8月に散発的に超過することがあるため、今後とも水質の監視を継続する必要がある。なお、水温が高いほどTHMFPも高くなる傾向があり、THM前駆物質の濃度と水温の関連性を示唆している。

表3 水温区別THMFP濃度 (単位: mg/L)

水温区分	河川			湖沼		
	平均値	最大値	最小値	平均値	最大値	最小値
15℃以下	0.021	0.046	0.007	0.022	0.037	0.016
15~20℃	0.029	0.057	0.008	0.035	0.074	0.021
20~25℃	0.033	0.095	0.014	0.038	0.049	0.028
25~30℃	0.034	0.063	0.010	0.041	0.063	0.025
30℃超	0.038	0.059	0.025	0.052	0.082	0.036

2 水系別THMFP濃度

THMFPについて、水系別に表4に示した。

表4 水系別THMFP濃度 (平均値)

(単位: mg/L)

項目	錦川	由宇川	柳井川	田布施川	島田川	末武川	榎野川	厚東川	有帆川	厚狭川
THMFP	0.015	0.026	0.033	0.037	0.022	0.022	0.030	0.033	0.037	0.032
クロロホルム	0.010	0.021	0.027	0.029	0.017	0.017	0.020	0.023	0.027	0.021
プロモジクロロメタン	0.0037	0.0047	0.0054	0.0069	0.0046	0.0041	0.0073	0.0078	0.0083	0.0087
クロロジプロメタン	<0.001	<0.001	<0.001	0.0013	0.0010	<0.001	0.0022	0.0022	0.0022	0.0028
プロモホルム	<0.001	<0.001	<0.001	<0.001	<0.001	<0.001	<0.001	<0.001	<0.001	<0.001

項目	木屋川	掛淵川	深川川	三隅川	阿武川	田万川	菅野湖	菊川湖	豊田湖	小野湖
THMFP	0.038	0.016	0.025	0.020	0.026	0.031	0.025	0.028	0.039	0.041
クロロホルム	0.027	0.0076	0.015	0.011	0.017	0.017	0.019	0.022	0.028	0.031
プロモジクロロメタン	0.0089	0.0049	0.0072	0.0063	0.0073	0.0091	0.0049	0.0049	0.0090	0.0080
クロロジプロメタン	0.0018	0.0029	0.0029	0.0032	0.0021	0.0041	<0.001	<0.001	0.0022	0.0014
プロモホルム	<0.001	<0.001	<0.001	<0.001	<0.001	<0.001	<0.001	<0.001	<0.001	<0.001

注) 湖沼は表層の測定値の平均を示す。

河川については、THMFPは木屋川、有帆川、田布施川で高い値を示し、錦川、掛淵川で低い値を示した。

一方、THMFPのうちブロム化合物は日本海側の田万川、三隅川などで高かった。

湖沼については、THMFPは小野湖>豊田湖>菊川湖>菅野湖の順に高い傾向を示した。

3 各環境要素の季節変化

(1) 河川

河川における各環境要素の季節変化をみると、KMnO₄消費量、COD、THMFPは顕著な傾向を示し、春季から夏季にかけて高かった。その他の項目は顕著でないものの、濁度、Fe、Mn、TOC、DOC、E₂₆₀は春季に、色度、BODは春季から夏季に、pHは夏季に高い傾向を示した。

また、Brとアルカリ度は夏季から秋季に高く春季に低い傾向を示した。さらに、E₂₂₀は冬季から春季に高い傾向を示した。

なお、Cl及びNH₄-Nについては季節変化は明確でないものの、特定の発生源の影響と考えられる大きな変動が認められた。このような季節変化の概要を表5に示した。

これらの変化をより詳細に検討するため、毎月測定を実施している榎野川、有帆川及び掛淵川にお

表5 各要素の季節変化の概要 (河川)

高濃度時期	要素
春季	濁度, Fe, Mn, TOC, DOC, E ₂₆₀
春季~夏季	THMFP, 色度, KMnO ₄ 消費量, COD, BOD
夏季	pH, 気温, 水温
夏季~秋季	Br, アルカリ度
冬季~春季	E ₂₂₀

るTHMFP及びこれと相関が高いと考えられるCOD、KMnO₄消費量、E₂₆₀、TOC、DOC、BODの濃度の月別変化を図2に示した。

榎野川においては、いずれの項目も6月に高い値を示し、有帆川では、6月から8月に、掛淵川では7月に高い傾向を示した。このように、THM生成関連物質は春季から夏季にかけて高いことがより明確となった。なお、BODは他の有機成分とは月別変化がやや異っていることから、THMFPへの関与も相違があるものと推察される。

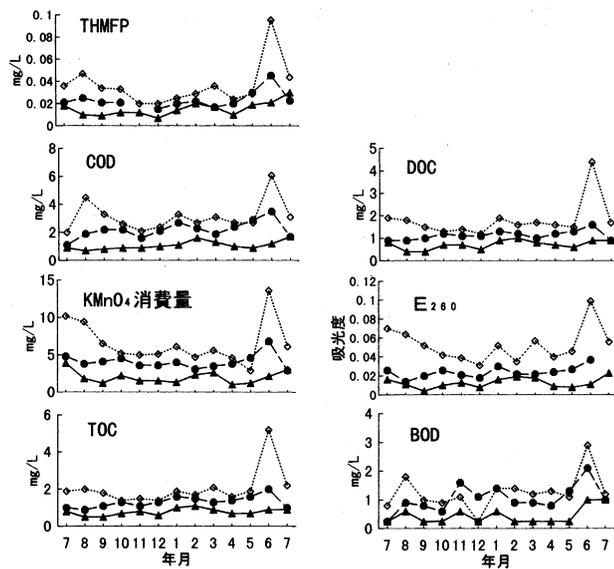


図2 河川におけるTHMFPに関連する成分濃度の月別変化
● 榎野川 ○ 有帆川 ▲ 掛淵川

(2) 湖沼

湖沼の表層における各環境要素の季節変化の概要を表6に示した。

これをみると、概ね河川と同様の傾向を示しているが、有機物の指標のうち、TOC、DOC、E₂₆₀が春季のみでなく、夏季にも高いこと、Mn、Feが春季でなく冬季に高いこと、Cl、NH₄-Nが冬季に高いことなどが異っている。このほか、濁度が春季のみでなく冬季にも高いことやアルカリ度の変動が大きく季節変動の傾向が明確でないことなども異っている。また、表層のクロロフィルaが夏季に高く、有機物の指標成分やpHも顕著に高くなることを総合すると、夏季に光合成が活発に行われていることが明らかとなった。

これらの変化をより詳細に検討するため、毎月測定を実施している小野湖 (表層、中層) における

表6 各要素の季節変化の概要 (湖沼)

高濃度時期	要素
春季~夏季	THMFP, KMnO ₄ 消費量, TOC, DOC, COD, BOD, E ₂₆₀ , 色度
夏季	pH, 気温, 水温, クロロフィルa
秋季	Br
冬季	Cl, Mn, NH ₄ -N, Fe
冬季~春季	E ₂₂₀ , 濁度
特徴不明確	アルカリ度

THMFP及びこれと相関が高いと考えられるTOC, DOC, BOD, COD, KMnO₄消費量, E₂₆₀の月別変化を図3に示した。これをみると, THMFPの濃度変化は有機物の指標成分の変化とほぼ同様であった。しかしながら, 表層及び中層のE₂₆₀は3月にもピークを示したのに対し, THMFPは高くない。

また, 表層のBODが6月に低くなっているのに対し, THMFPを含む他の成分はいずれも高い値であり, 河川と同様にBODの特異的な挙動も認められた。

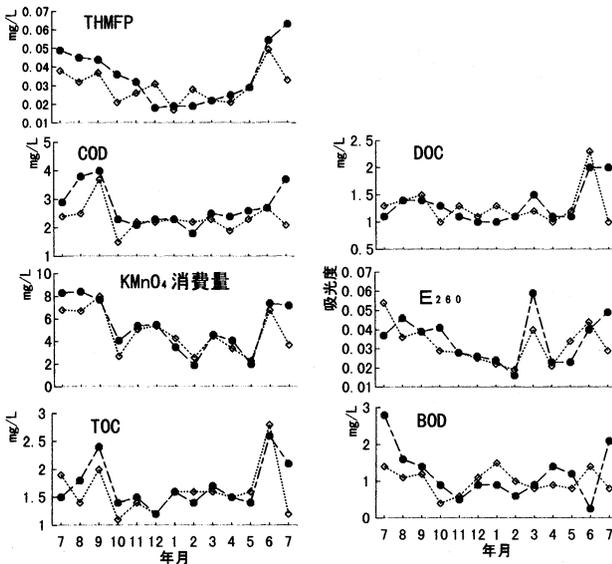


図3 小野湖におけるTHMFPに関連する成分濃度の月別変化
● 表層 ○ 中層

4 各環境要素の統計解析

河川及び湖沼に係る環境要素をそれぞれ相関分析, 因子分析, クラスタ分析によって統計解析した。

(1) 河川

ア 各環境要素間の相関

河川について算出したTHMFPと環境要素間の相関係数を表7に示した。

各環境要素との相関をみると, DOC>COD>E₂₆₀>TOC>KMnO₄消費量>色度の順で相関が高かったが, これらに比較して, BODはやや低い相関であった。

表7 THMFPと各環境要素間の相関 (n=189)

	KMnO ₄ 消費量	COD	TOC	DOC	BOD	NH ₄ -N	Fe	Mn	Cl
THMFP	0.8005**	0.8387**	0.8276**	0.8489**	0.5307**	0.2509**	0.2630**	0.4283**	0.3294**
	アルカリ度	E ₂₂₀	E ₂₆₀	色度	濁度	pH	水温		
THMFP	0.4018**	0.2509**	0.8330**	0.7454**	0.2601**	0.2960**	0.4796**		

注) **は危険率0.1%で有意である。

イ. 因子分析・クラスター分析

河川の環境要素の関連性をより簡潔に示すため, 因子分析法(因子の回転; バリマックス法, 因子の抽出; 最尤法)を用い, 各環境要素の因子負荷量を求め, 得られた因子負荷プロットを図4に示した。

なお, 因子分析に当たっては, 海塩由来のBrを追加した。Brは生物体や堆積物中に濃縮しにくく, 蒸発もしないといわれており⁷⁾, ほとんどが海塩(風送塩)の降下又は雨水への取り込みによって河川水にもたらされると考えられるため, 海塩の指標として用いた。また, Clについても, 大部分が海塩由来と考えらるが, 工場等排水, 生活排水にも多く含まれる。そこで, これらを区別して解析するため, 海塩由来のClをss-Cl, 非海塩由来をnss-Clとした。ss-Clについては, 海水中のBr/Cl比の変動は非常に少なく, 平均では0.00347^{8, 9)}と報告されていることから, Br濃度とこの比を用いて算出した。また, nss-ClはClとss-Clの差から求め, これが0又はマイナスになる場合は0.05mg/L (NDの1/2) とした。

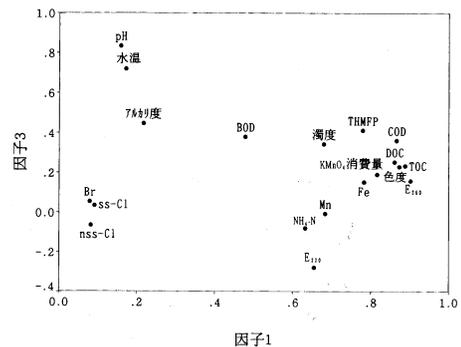
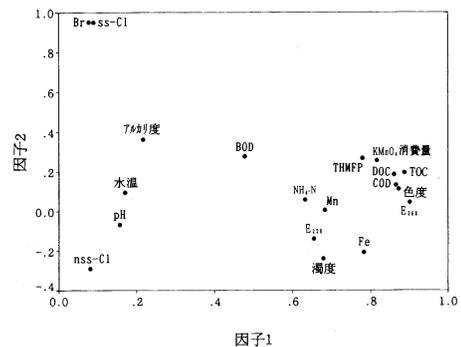


図4 河川に係る各環境要素の因子負荷プロット

次に、各環境要素の因子負荷量をもとにクラスター分析を行って、要素の類似性を分類し、デンドログラムとして図5に示した。なお、因子分析及びクラスター分析においては、データの分布がpH、水温については正規分布、その他は対数正規分布であったので、pH、水温以外については対数変換して解析に用いた。

図4の因子負荷プロットの各因子の寄与率は、固有値が1以上のものについてみると、因子1が46.9%、因子2が12.9%、因子3が7.7%、因子4が6.3%で、これらの累積寄与率は73.8%であった。これらの各因子の解釈としては、図4のプロットの位置関係及び図5のデンドログラムから、因子1は有機汚濁の指標、因子2は海塩の指標、因子3はpH、水温の指標と考えられる。このように、THMFPはTOC、DOC、DOC、KMnO₄消費量、色度、COD、E₂₆₀と類似性が高い項目に分類された。また、BODはこれらとはやや異なる分類となった。

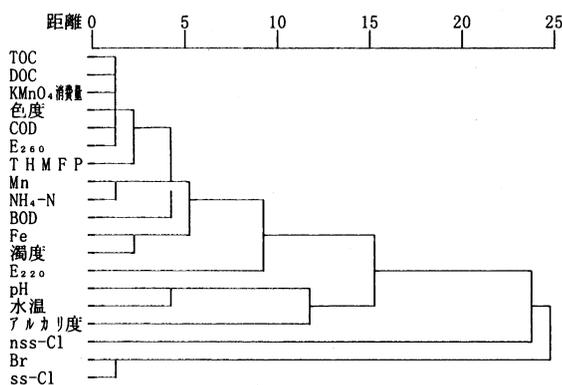


図5 河川に係る各環境要素の類似性 (デンドログラム)

さらに、これらの因子負荷量を用いて、河川別の因子得点を求め、因子1-因子2、因子1-因子3のプロットを図6に示した。これをみると、柳井川、有帆川、木屋川、田布施川が有機汚濁の進んだ河川に、錦川、三隅川、掛淵川が有機汚濁の少ない河川に分類された。また、田万川、阿武川、掛淵川の日本海側の河川が海塩の影響の強い河川に分類された。このことは、大堀ら¹⁰⁾による県下の広域雨水成分調査において日本海側の地域で海塩由来成分が雨水中に高濃度に含まれていたことと一致している。なお、錦川、末武川、島田

川、由宇川の瀬戸内海側の県東部の河川では、海塩の影響が少なかった。

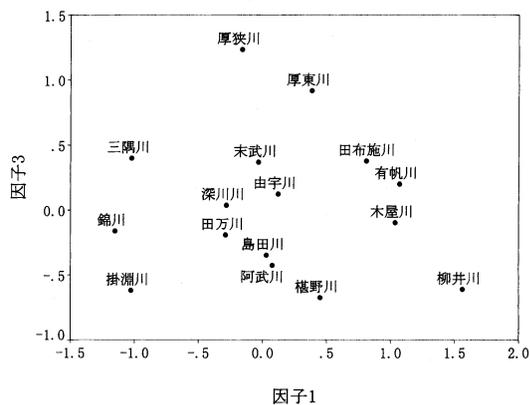
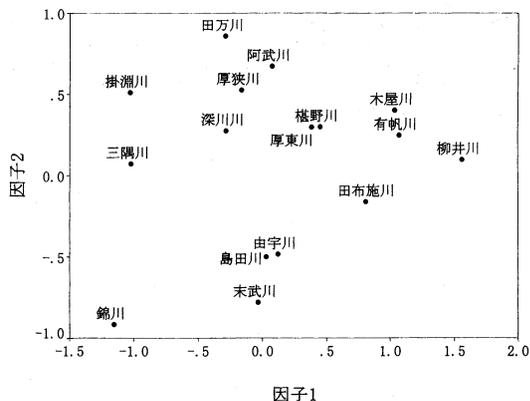


図6 各河川の因子得点

(2) 湖沼

ア 各環境要素間の相関

湖沼(表層)について算出したTHMFPと環境要素間の相関係数を表8に示した。

各環境要素との相関をみると、DOC>E₂₆₀>COD>色度>TOC>水温>KMnO₄消費量>BOD>pHの順で相関が高かった。河川における相関との相違点は、色度や水温との相関が高くなっていることが挙げられる。なお、BODはやや相関が低い傾向であった。

イ 因子分析・クラスター分析

湖沼の環境要素の関連性をより簡潔に示すため、河川と同様に因子分析法を用い、各環境要素の因子負荷量を求め、得られた因子負荷プロットを図7に示した。

次に、各環境要素の因子負荷量をもとにクラスター分析を行って、要素の類似性を分類し、デンドログラムとして図8に示した。

表8 THMFPと各環境要素間の相関 (n=42)

	KMnO ₄ 消費量	COD	TOC	DOC	BOD	NH ₄ -N	Fe	Mn	Cl
THMFP	0.5350**	0.6179**	0.5906**	0.7668**	0.4291*	-0.2036	-0.1888	-0.3293	0.0899
	アルカリ度	E ₂₂₀	E ₂₆₀	色度	濁度	pH	水温		
THMFP	0.2969	-0.0602	0.7105**	0.5942**	0.0537	0.4032*	0.5554**		

注) **は危険率0.1%, *は危険率1%で有意である。

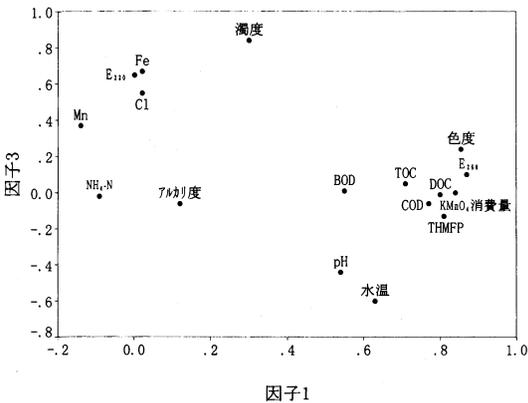
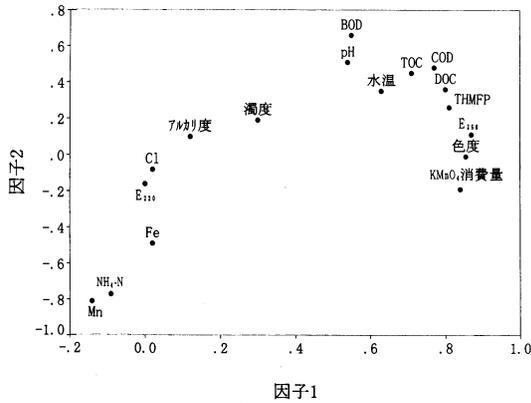


図7 湖沼に係る各環境要素の因子負荷プロット

各因子の寄与率は、固有値が1以上のものについてみると、因子1が41.6%、因子2が19.5%、因子3が9.1%、因子4が6.7%で、これらの累積寄与率は77.0%であった。

これらの各因子の解釈としては、図7のプロットの位置関係及び図8のデンドログラムから、因子1は有機汚濁の指標、因子2は光合成等の富栄養化の指標、因子3は土壌・地質の流出成分の指標と考えられる。

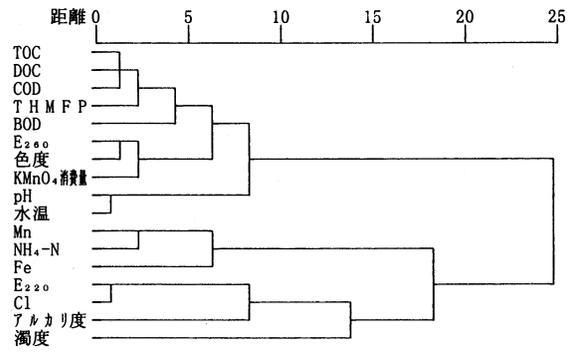


図8 湖沼に係る各環境要素の類似性 (デンドログラム)

このように、THMFPはTOC、DOC、CODと類似性が高い項目に分類された。

さらに、これらの因子負荷量を用いて、湖沼別の因子得点を求め、因子1と因子2について因子得点プロットを図9に示した。これを見ると、因子1に関連する有機汚濁については、豊田湖が最も著しく、次いで小野湖が汚染されている分類となった。また、因子2に関連する富栄養化についても、豊田湖が最も著しく、次いで菊川湖、小野湖が同程度と分類された。

なお、4湖沼のうちでは、菅野湖が有機汚濁、富栄養化とも進んでいない結果となった。

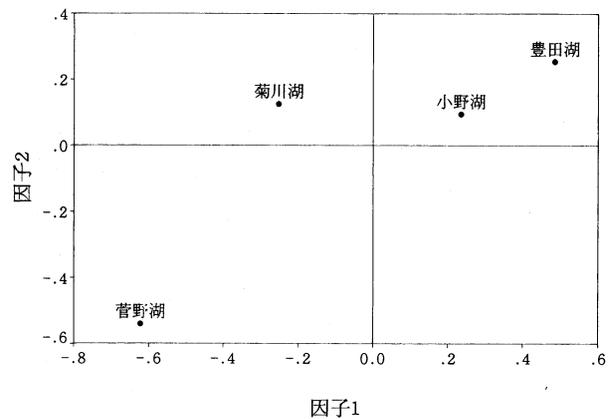


図9 各湖沼の因子得点

5 THMF Pの諸特性

(1) THMF Pの成分構成

THMF Pは、THM前駆物質に所定の検査方法に従って塩素を添加し、生成したTHMを定量した結果であり、クロロホルム、ブロモジクロロメタン、クロロジブロモメタン、ブロモホルムによって構成される。そこで、河川及び湖沼別に、これらの存在比を集計し、表9に示した。これをみると、その7割がクロロホルムであり、次いで、ブロモジクロロメタン、クロロジブロモメタン、ブロモホルムの順で、ブrom数が少ない順に存在比が高かった。

また、湖沼の方がややクロロホルムの割合が高くなっており、これはBrイオン濃度が湖沼でやや低い傾向にあるためと考えられる。

表9 THEMF Pの成分構成比 (単位: wt%)

成分	河川			湖沼		
	平均値	最大値	最小値	平均値	最大値	最小値
クロロホルム	66.1	89.4	25.0	74.3	90.0	57.1
ブロモジクロロメタン	25.3	40.0	10.6	21.8	35.7	10.0
クロロジブロモメタン	8.4	37.5	1.1	4.3	11.8	0.9
ブロモホルム	2.6	11.1	0.1	1.7	3.1	0.1

(2) THM生成過程におけるブrom化合物の生成

THMF Pの測定においては、塩素処理によりクロロホルムだけでなく、表9のとおりブrom化合物も生ずる。

これは、検水中に溶存しているBrイオンが塩素によってHOBrやBr₂に酸化され、これによってブrom化合物が生成するためといわれている^{11,12)}。

そこで、THMF P中のBrのモル濃度と検水中のBrイオンのモル濃度の関係を散布図として図10に示した。これをみると、水中のBrイオン濃度とTHMF P中のBr濃度に有意の相関(危険率0.1%)がみとめられ、Brイオンの10%程度が含ブromトリハロメタンになっていることが明らかとなった。また、THMF Pの検査には、塩素を2~4mg/L(モル濃度で約30~60 μmol/L)添加してTHMを生成させているが、検水中のBrイオン濃度は平均値で0.026mg/Lであるため、Br₂/Cl₂のモル比は1/100~1/数百となる。したがって、Brイオンの10%程度が含ブromトリハロメタンになることを考えると、ブromの方が塩素より数十倍反応性が高いと考えられる。

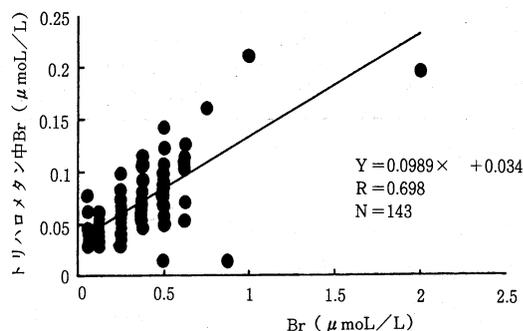


図10 THMF P中BrとBrイオンの散布図

(3) THMとなる有機炭素の割合

THMは、カルボニル基やカルボキシル基などを有する有機物中の炭素が塩素化されて生成する。そこで、このTHMとなる(THM-C)の割合をTHM-C/TOCのモル比(%)として算出し、月別変化を図11に示した。

これをみると、最大値が0.31%、最小値が0.1%で、最大と最小の差が3倍程度あった。また、月別変化は、1月に最小で、1月以降夏季にかけて増加し、6月~8月の間にピークを示した。

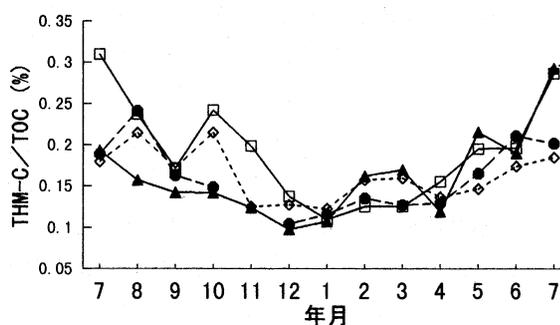


図11 THM-C/TOCの月別変化
● 榎野川 ● 有帆川 ▲ 掛淵川 □ 小野湖

THMとなる炭素は、フミン物質に多く含まれる¹⁾。また、森林における落葉・有機物堆積・分解のサイクルとフミン物質の発生が密接に関連している¹³⁾ため、THMとなる炭素の挙動を解明するには、森林の物質循環を併せて考察する必要がある。

したがって、今後、森林から流出する水質と森林の物質循環との関連性の研究がさらに必要と考えられる。

表10 クロロフィルaとTHM関連物質の相関 (n=12)

区分	THMFP	BOD	COD	KMnO ₄ 消費量	pH	TOC	DOC	E ₂₆₀	色度
表層	0.4752	0.8029 *	0.5551	0.4805	0.6602	0.2264	-0.1492	-0.0406	0.0124
中層	0.1596	0.4129	0.7781 *	0.3716	0.6799	0.2556	0.1878	-0.1207	-0.1734

注) * は危険率1%で有意である。

6 小野湖におけるTHMFPに係る詳細調査結果

(1) 富栄養化に伴う影響

富栄養化に伴ってTHMFPがどの程度生成するかを明らかにするため、小野湖の表層、中層において、月別にクロロフィルa及びTHMFP関連物質の調査を行った。層別のクロロフィルaとの相関は表10のとおりである。

クロロフィルaとTHMFP関連物質との相関は、表層でBOD、中層でCODと相関が高く、また、表層及び中層ともpHとやや相関が高かった。したがって、富栄養化の指標であるクロロフィルaそのものとTHM前駆物質の相関は高くないものと考えられる。しかし、中層ではTHMFPとは相関が低いものの、表層でやや相関が高くなっていることから、表層における富栄養化もTHM前駆物質の生成にある程度関連していることも示唆された。

(2) 溶存態別の比較

溶存態別の比較をするため、小野湖の表層、中層について、濾過前と濾過後 (Whatman GF濾紙) のサンプル中のTHMFP、TOC、CODを測定し、図12に示した。

この図から、THMFPやこれと相関の高いTOC、CODは、いずれも溶解性の物質が多く、それぞれの溶解性成分の表層、中層の平均割合は、89%、78%、79%であった。したがって、THM前駆物質はほとんどが溶解性成分である。このことは、クロロフィルaをはじめとする不溶解性有機炭素はTHMの生成に直接的に関与しているものでなく、その分解や代謝に伴って生成される溶解性有機炭素が関与していると考えられる。

このように、THMFPは、溶解性成分が約9割であること、BODとの相関が比較的低いこと、富栄養化との関連性がみられることから、THMの前駆物質はフミン物質や藻類等の代謝産物などの難生物分解性の有機物質であると考えられる。

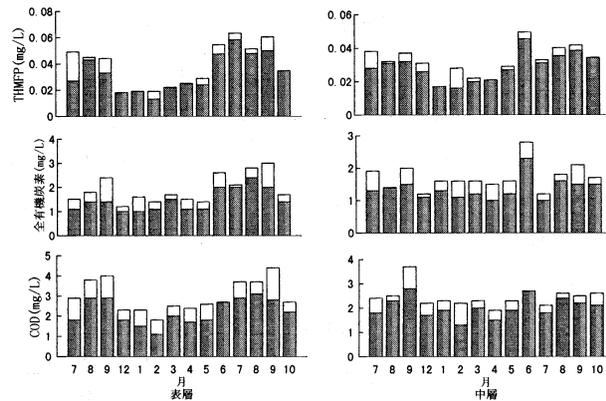


図12 小野湖における溶存態別調査結果

■溶解性 □不溶解性

まとめ

- 1 本県の水道水源となる河川、湖沼におけるTHMFPについては「トリハロメタン生成能の濃度に係る水質目標値」を達成しているが、月別にみると、6月～8月において水質目標値を有帆川、木屋川、小野湖で超過していた。したがって、これらの水系については今後とも継続して調査し、推移を監視することが必要である。
- 2 河川、湖沼におけるTHMFPは、水温が高いほど高くなる傾向があった。
- 3 THMFPの水系別比較では、河川については木屋川、有帆川、田布施川で高い値を示した。湖沼については小野湖、豊田湖で高い値を示した。また、THMFPのうちブロム化合物は、日本海側の田万川、三隅川などで高く、海塩に起因するブロム濃度が高いためと考えられた。
- 4 THMFPの季節変化については、河川、湖沼ともに春季～夏季に高い傾向を示した。これと同様の季節変化を示す項目は、河川では色度、KMnO₄消費量、COD、BODがあり、湖沼ではKMnO₄消費量、TOC、DOC、COD、BOD、E₂₆₀、色度であった。
- 5 THMFPの月別濃度変化は、河川、湖沼とも有機物の指標成分とほぼ同様の変化を示したものの、BODはやや異なる変化を示した。

- 6 河川におけるTHMF_Pと各環境要素との相関は、DOC>COD>E₂₆₀>TOC>KMnO₄消費量>色度の順であり、BODはやや低い相関であった。また、各環境要素の因子分析、クラスター分析の結果、THMF_Pは、TOC、DOC、KMnO₄消費量、色度、COD、E₂₆₀と類似性が高い項目に分類された。さらに、柳井川、有帆川、木屋川、田布施川が有機汚濁の進んだ河川に、錦川、三隅川、掛淵川が有機汚濁の少ない河川に分類された。なお、田万川、阿武川、掛淵川の日本海側の河川が海塩の影響の強い河川に分類された。
- 7 湖沼(表層)におけるTHMF_Pと各環境要素との相関は、DOC>E₂₆₀>COD>色度>TOC>水温>KMnO₄消費量>BOD>pHの順であり、河川と比較して色度や水温との相関がやや高かった。また、各環境要素の因子分析、クラスター分析の結果、THMF_PはTOC、DOC、CODと類似性が高い項目に分類された。さらに、4湖沼の比較では、豊田湖は有機汚濁や富栄養化の進んだ湖沼に、菅野湖はこれらが進んでいない湖沼に分類された。
- 8 THMF_Pの成分構成比は、平均値で約7割がクロロホルムであり、次いでブロモジクロロメタン、クロロジブロモメタン、ブロモホルムの順に多く、ブロム数が少ない順に存在比が高くなった。
- 9 含ブロムトリハロメタンの生成量は、河川、湖沼中のブロム濃度に依存し、ブロムイオンの10%程度が含ブロムトリハロメタンとなっていた。また、ブロムの反応性は塩素の数十倍であると考えられた。
- 10 THMとなる有機炭素の割合は、1月に最小で、6月~8月の間で最大となり、森林の物質循環と深い関係があると考えられた。したがって、今後この発生機構の解明のため、森林から流出する水質と森林の物質循環との関連性の研究がさらに必要と考えられた。
- 11 湖沼における富栄養化の指標としてのクロロフィルaとTHMF_Pとの相関は高くなかったが、中層よりは表層における相関が高くなることから、富栄養化も

THM前駆物質の生成にある程度関連していることが示唆された。

- 12 湖沼におけるTHMF_Pは、溶解性成分が約9割であり、クロロフィルaをはじめとする不溶解性炭素はTHMの生成に直接的に関与しているものではないと考えられた。
- 13 THMF_Pは、溶解性成分が多いこと、BODとの相関が低いこと、富栄養化との関連性が考えられることから、THMの前駆物質はフミン物質や藻類等の代謝産物などの難生物分解性の有機物質であると考えられた。

文 献

- 1) 丹保憲仁：技法堂, 96~104 (1983)
- 2) 土木学会水質管理に関する研究委員会：公共用水域における有機塩素化合物の発生メカニズムとその除去に関する研究報告書 (1981)
- 3) 長谷川一夫ほか：水質汚濁研究, 6, 151~160 (1983)
- 4) 米林甲陽：水環境学会誌, 18, 257~260 (1995)
- 5) Yonebayasi, K. and Hattori, T.: Soil. Sci. Plant Nutr, 34, 571~584 (1988)
- 6) 朱 春黙ほか：土木学会論文集No.545/II-36, 113~123 (1996)
- 7) 堀部純男ほか：海洋科学基礎講座10, 324~326 (1970)
- 8) Tompson, T.G., and E. Korpi: J. Marine Res., 5, 28~36 (1942)
- 9) Morris, A.W., and J.P. Riley: Deep-Sea Res., 13, 699~705 (1966)
- 10) 大堀智弘ほか：山口県衛生公害研究センター年報, 38, 52 (1996)
- 11) Lange, A.L. and Kawczynski, E.: Jour. AWWA, 70, 653~654 (1978)
- 12) 梶野勝司：水道協会雑誌, 46, 514, 17~36 (1977)
- 13) 筒木潔：水環境学会誌, 18, 252~256 (1995)