小笠原諸島の水道原水中の溶存有機物の特性と 浄水場における特性変化

栃本 博^{*,†} 小杉 有希^{*} 鈴木 俊也^{*}
保坂 三継^{*} 中江 大^{*}

Characteristics of Dissolved Organic Matter in Raw Water in the Ogasawara Islands and their Variation in Water Treatment Plants

Hiroshi TOCHIMOTO^{*,†}, Yuki KOSUGI^{*}, Toshinari SUZUKI^{*},
Mitsugu HOSAKA^{*} and Dai NAKAE^{*}

* Tokyo Metropolitan Institute of Public Health, Hyakunin-cho 3-24-1, Shinjuku-ku, Tokyo 169-0073, Japan

Abstract

Dissolved organic matter (DOM) in water samples obtained from raw water, reservoir, mountain stream and treated water in purification plants in the Ogasawara Islands, was fractionated into hydrophilic fractions, hydrophobic acids and hydrophobic neutrals. Hydrophilic fractions and hydrophobic acids of DOM were the main components of water samples from mountain streams, reservoirs and raw water in the Chichijima Island and Hahajima Island. The total trihalomethane formation potential (TTHMFP) and the contribution of each fraction were mostly in agreement with the total DOM and the rate of each fraction, respectively. The contribution of the hydrophobic acids fraction to the total haloacetic acid formation potential (THAAFP) was higher than that to TTHMFP. The rates or contributions of the hydrophilic fractions in DOM or TTHMFP/THAAFP were the highest, respectively, in activated carbon- and coagulation-sedimentation-treated water of the Chichijima Island, and coagulation-sedimentation-treated water of the Hahajima Island. It is thus suggested that a water treatment method for removing hydrophilic matter of DOM in raw water can effectively decrease the amount of DOM thus resulting in a decrease in the amount of disinfection by-products in treated water. It is presumed that the weight-average molecular weights of DOM in mountain stream water and raw water are both 1220~1390 g·mol⁻¹, and it is indicated that DOM in raw water originates from such mountain streams flowing into a reservoir. It is also suggested that the weight-average molecular weights of DOM in treated water are reduced to 630~970 g·mol⁻¹ after water purification treatment.

Keywords: Dissolved organic matter; Hydrophilic; Hydrophobic; Trihalomethane formation potential; Haloacetic acid formation potential; Molecular weight; Raw water; Treated water; The Ogasawara Islands

1. はじめに

小笠原諸島は亜熱帯性気候で、亜熱帯性の植物が繁茂している¹⁾。小笠原諸島に存在する小笠原村の主な水道水源は、植物が繁茂している島内の沢水を貯水したダム湖水である²⁾。そのため水道原水の消毒副生成物生成能はわが国の最高レベルで³⁾、水道水のトリハロメタン等の消毒副生成物濃度もわが国の最高レベルである^{3~5)}。これは水道原水に植物由来の溶存有機物 (DOM) 濃度が高いためであり⁶⁾、DOM の代表的な成分の一つである疎水性酸 (フミン物質) の除去を目的とした浄水処理 (父島: 粉末活性炭処理・凝集沈殿処理, 母島: 凝集沈殿処理) が行われてきたが^{2,7)}、現在、消毒副生成物のさらなる低減化のための浄水処理法が検討されている。

近年、DOM を親水性と疎水性に分画することにより、

これまでの凝集沈殿処理による水道原水の浄水処理効果がそれらの画分によって異なることが報告されている^{8,9)}。湖水やその流入水の DOM がその性状により分画され、疎水性酸 (フミン物質) と親水性酸が卓越的な画分であることが報告されている^{10~12)}。また、原水についてはそれらの画分のトリハロメタンの生成能やハロ酢酸の生成能^{12~18)}が報告されているが、処理水についての報告はわずか¹⁸⁾、国内ではみられない。

そこで、小笠原村の水道水源である貯水池水及び貯水池に流入水する沢水並びに浄水場の水道原水と凝集沈殿処理水の DOM について親水性画分、疎水性酸及び疎水性中性物質に分画し、DOM の性状とその由来を調べるとともに、水道原水と凝集沈殿処理水及びその画分についてトリハロメタン生成能とハロ酢酸生成能を測定し、各画分におけるそれらの生成能の特性を調べた。さらに、

* 東京都健康安全研究センター 〒169-0073 東京都新宿区百人町 3-24-1

† 連絡先: Hiroshi_Tochimoto@member.metro.tokyo.jp

Fig. 1 Water flow and sampling points of water purification processes of the Chichijima and Hahajima Islands
the Chichijima Island (upper) Sampling points : ① Raw water for water supply, ② the Renju dam, ③ Mountain stream flowing into the Renju dam, ④ Outflow water from a settling basin,
the Hahajima Island (lower) Sampling points: ① Raw water for water supply, ② the Chibusa dam,
③ Mountain stream flowing into the Chibusa dam, ④ Well water, ⑤ Outflow water from settling basin.

これらの DOM の特性評価の一つとしてこれらの沢水、水道原水及び処理水の DOM の分子量の推定を行ったので報告する。

2. 調査方法

2.1 試料

小笠原諸島には、人が居住する父島と母島に2ヶ所の簡易水道の浄水場がある⁷⁾。父島の扇浦浄水場と母島の沖浦浄水場の給水人口は、それぞれ1,951人及び452人、1日平均給水量はそれぞれ673m³、149m³である。**Fig. 1**に父島と母島の水道水供給の流れと今回の採水地点を示す。父島の浄水場は粉末活性炭・凝集沈殿処理、母島の浄水場は凝集沈殿処理を行っており、両浄水場とも島内の小河川(沢)をせき止めた貯水池を主な水源としている⁷⁾。父島では①水道原水、②貯水池水(連珠ダムの水道原水取水口付近)及び連珠ダムに流入する③沢水を採水した。連珠ダムは、上流の3つの水源ダム湖と連結し、第一水源、第二水源の沢水及び今回採水した連珠ダムに直接流入する③沢水も当貯水池に流入する。通常、連珠ダムに流入する沢水を水道原水として供給を受け、上流の3つの貯水池からは連珠ダムの水位低下時に水道原水としての供給を受ける。母島では①水道原水、②貯水池水(乳房ダムの水道原水取水口付近)、乳房ダムに流入する③沢水及び貯水池からの水道原水に加えられる④井戸水(水道原水の全量の約20%を占める)^{2, 19, 20)}を採水した。採水時期は、2009年6, 9, 12月、2010年3, 6, 9月である。採水量は、原水が2L、貯水池水及びそれに流入する沢水が1L、井戸水が0.25Lである。また、凝集沈殿処理後の処理水(**Fig. 1**父島④、母島⑤)を原水の消毒副生成物生成能が比較的高い時期²⁾(2010年6, 9月)を選んで、他の試料と同時に凝集沈殿処理後に1L採水した。父島における処理水の採水日の粉末活性炭及び凝集剤(ポリ塩化アルミニウム:以下PAC)の濃

Fig. 2 Procedure for dissolved organic matter fractionation.

度は、2012年6月の日平均でそれぞれ19.8及び371mg·L⁻¹、9月の日平均それぞれ18.5及び203mg·L⁻¹であった。また、6月には降雨にともなうpH調整のためのソーダ灰が53.5mg·L⁻¹加えられた。年間平均値²⁰⁾に比べ6月のPACとソーダ灰の値は最高値に近く、9月は平均値に近かった。また母島における処理水の採水日の凝集沈殿処理のPACの注入率(PACとして)は、2012年6月が230mg·L⁻¹、9月が113mg·L⁻¹であった。年間平均値に比べ²⁰⁾父島と同様6月の値は最高値に近く、9月は平均値に近かった。採水した試料は冷却して当センターに搬送し、着後直ちに公称孔径0.7µmのガラス繊維製ろ紙(Whatman GF/F, 450℃で4時間熱処理)でろ過し(井戸水を除く)、溶存態の試料とした。

2.2 分画方法及び溶存有機炭素(DOC)の測定

非イオン交換樹脂DAX8(スペルコ製)を用いて試料を以下のように親水性画分、疎水性酸及び疎水性中性物質に分画した。

DAX8樹脂は、0.1MNaOH溶液に浸漬した後、上澄み液を捨てる操作を連続5日間行った。次に、24時間ソックスレー抽出洗浄をメタノール、ジエチルエーテル、アセトニトリル、メタノールの順序で行い精製した²¹⁾。

カラム (VARIAN 社製 BOND ELUT RESERVOIR 容量 3 mL) に樹脂 3 mL を充填し、試料の通水前に Milli-Q 水 200 mL で洗浄し、さらに 10 mL の 0.1 MNaOH, 0.1 M HCl で 3 回洗浄した。

試料の DOM の分画の操作を Fig. 2 に示した。水道原水、貯水池水及び沢水の試料 200 mL を HCl で pH 2 とし、カラムに流速 $1 \text{ mL} \cdot \text{min}^{-1}$ で通水し、通過した画分を親水性画分 (親水性成分と疎水性成分が含まれるが、疎水性成分の割合は低い^{10, 14)}) とした¹¹⁾。次に、カラムの下部から上向流で 0.1 MNaOH 10 mL を流速 $0.3 \text{ mL} \cdot \text{min}^{-1}$ で通水し、溶出した画分を疎水性画分²²⁾ とし、Milli-Q 水 (Millipore 社 MilliQ) で 200 mL とした。また、あらかじめブランク水として Milli-Q 水をカラムに通水し、上記同様に親水性画分と疎水性画分を分取し、これらの DOC を測定し、ブランク値 [親水性画分: $0.41 \pm 0.08 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$ ($n=4$), 疎水性画分: $0.33 \pm 0.07 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$ ($n=4$)] を求めた。試料及びブランク水の画分の DOC を TOC 計 (島津製作所 TOC-V_{CPH}) で測定し、試料の親水性画分と疎水性画分の真の DOC は、これらのブランク値を差し引いて求めた。疎水性画分の DOC は、分画前の DOC から親水性画分と疎水性画分の DOC 値を差し引いて求めた。また、各試料及び分画について DOC とともに 260 nm, 光路長 1 cm の紫外吸収を測定した。

処理水も 200 mL を使い、親水性画分については上記と同様に処理した。ただし処理水中の疎水性画分は、浄水処理による除去率が高く、DOM 中の割合が低い¹⁰⁾ため定容量を 50 mL とし、そのうちの 10 mL を DOC の測定に用い [ブランク値: $0.79 \pm 0.02 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$ ($n=4$)], 残液 40 mL を元の定容量に相当する 4 ($200 \cdot 50^{-1}$) 倍量に希釈し、トリハロメタン生成能とハロ酢酸生成能の測定用試料とした。なお、原水と処理水については、消毒副生成物生成能の測定も行うことから試料の量を増やすため、分画を 2 回行って、2 回分の各画分を混合したものを使用した。

2.3 総トリハロメタン生成能 (TTHMFP) と総ハロ酢酸生成能 (THAAFP) の測定

原水及びその画分の試料の一部を採取し、DOC が $1 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$ となるように希釈し、約 400 mL 準備した。6M NaOH 及び 6M HCl で pH を 7.0 ± 0.2 とした。これに 24 時間後の残留塩素濃度が $1 \sim 2 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$ となるように次亜塩素酸ナトリウム $1,000 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$ を 100 mL 当たり 200 ~ 500 μL 添加し、生成したトリハロメタンとハロ酢酸を亜硫酸ナトリウムで残留塩素を除去した後、測定した^{23, 24)}。総トリハロメタン生成能 (TTHMFP) は 4 種類のトリハロメタンの生成能を、ハロ酢酸生成能 (THAAFP) は 9 種類のハロ酢酸の生成能を合計した。また、Milli-Q 水を用いて各画分の生成能のブランク値を求め [TTHMFP のブランク値: 親水性画分 $2.0 \pm 0.3 \mu\text{g} \cdot \text{L}^{-1}$, 疎水性画分 $1.9 \pm 0.3 \mu\text{g} \cdot \text{L}^{-1}$ ($n=4$), THAAFP のブランク値: 親水性画分 $3.2 \pm 0.4 \mu\text{g} \cdot \text{L}^{-1}$, 疎水性画分 $2.0 \pm 0.3 \mu\text{g} \cdot \text{L}^{-1}$ ($n=4$)], 試料の画分の生成能からブランク値を差し引き、モル濃度に換算し、DOCmg (mgC とする) 当たりの TTHMFP と THAAFP を求めた。水中に臭化物イオンが存在すると塩素化により臭素を含んだトリハロメタン、ハロ酢酸を生成し²⁵⁾、存在する臭化物イオンの濃度が総トリハロメタン及び総ハロ酢酸の重量濃度

($\mu\text{g} \cdot \text{L}^{-1}$) に影響するが、これらをモル濃度 ($\mu\text{mol} \cdot \text{L}^{-1}$) に換算すれば臭化物イオンが存在しても生成するモル濃度の総トリハロメタンと総ハロ酢酸は変化しない^{2, 26, 27)}。なお、水中の臭化物イオン濃度が高くなると塩素化によるモル濃度の総トリハロメタン生成能も高くなるという報告²⁸⁾があるが、小笠原諸島の水道原水試料の臭化物イオン濃度 ($0.20\text{--}0.59 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$)²⁾ではほとんどそのモル濃度が増加するレベル以下である。さらに、これに試料の DOC 値 ($\text{mg} \cdot \text{L}^{-1}$) を乗じ、実際の TTHMFP と THAAFP の存在濃度を考慮した試料 L 当たりの TTHMFP と THAAFP を求めた^{13, 24)}。分画前の処理水は 2 倍に希釈して、TTHMFP と THAAFP を測定した。処理水の分画試料は無希釈で次亜塩素酸ナトリウムを添加し、原水と同様に TTHMFP と THAAFP を測定し、モル濃度に換算した。トリハロメタンはページ&トラップ・GC/MS 法 (島津製作所 QP2010), 総ハロ酢酸は溶媒抽出・GC/MS 法 (日本電子 Jms-Q1000GC K9) で測定した²³⁾。疎水性中性物質の TTHMFP と THAAFP は、分画前の生成能から親水性画分と疎水性画分の生成能の値を差し引いて求めた。

2.4 DOM の分子量分布の測定

ゲルろ過クロマトグラフィー (ウォーターズ 高速液体クロマトグラフ 2596, PDA 検出器 2996) により、沢水、原水及び処理水をろ過して得た溶存態試料の DOM の分子量を推定した。ゲルろ過クロマトグラフィーのカラムは、ガードカラムに Protein-Pak 300SW (高分子量測定用), 次に Protein-Pak 125 A (低分子量測定用) を接続した¹³⁾。移動相としては 0.1M リン酸緩衝液 pH6.8 と 0.1MNaCl を 1:9 で混合したものを使用した。移動相の流速は $0.7 \text{ mL} \cdot \text{min}^{-1}$, 検出波長は 260 nm, 注入するサンプル量は 100 μL とした。今回の DOM の分子量分布の測定は、UV を吸収する DOM を対象としている。湖沼・河川水中において DOM の多くを占める疎水性画分は、ランダムコイル状態として存在すると考えられる^{29, 30)}。このため分子量スタンダードとしては、ランダムコイル状態で存在するポリスチレンスルホン酸ナトリウム (分子量 1,000, 2,000, 3,600, 8,000, 18,000, 35,000, 67,000, 140,000, 200,000, 280,000, 450,000) とスチレンスルホン酸ナトリウム (分子量 184) を使用した。

3. 結果および考察

3.1 沢水、貯水池水及び水道原水の DOM とその組成

沢水、貯水池水及び水道原水の各月の DOM とその組成を Fig. 3-1 に示す。試料の全 DOC の平均と範囲は、父島では沢水: 4.4 ($3.3 \sim 6.8$) $\text{mg} \cdot \text{L}^{-1}$, 貯水池水: 5.8 ($4.3 \sim 7.2$) $\text{mg} \cdot \text{L}^{-1}$, 原水: 5.8 ($4.2 \sim 7.2$) $\text{mg} \cdot \text{L}^{-1}$, 母島では沢水: 3.4 ($1.8 \sim 5.6$) $\text{mg} \cdot \text{L}^{-1}$, 貯水池水: 5.1 ($4.1 \sim 6.2$) $\text{mg} \cdot \text{L}^{-1}$, 原水: 4.1 ($3.3 \sim 5.0$) $\text{mg} \cdot \text{L}^{-1}$, 井戸水: 1.0 ($0.9 \sim 1.3$) $\text{mg} \cdot \text{L}^{-1}$ であった。父島と母島における各試料の各月の全 DOC 濃度変化の傾向が類似しているが、その理由は両島で気象²⁾と植生¹⁾が類似しているためと考えられた。沢水は両島で 3 月が最も高かったが、その理由は、採水日の前日に両島で約 10 mm の雨が降り、流量が増加し、DOM が流出したことが推定された (採水日の最も近くで降雨が 10 mm 以上認められたのは 2010 年

Fig. 3-1 Fraction distributions of dissolved organic matter (DOM) of water samples from mountain stream, reservoir and raw water in the Ogasawara Islands.

HiF: hydrophilic fraction, HoA: hydrophobic acids, HoN: hydrophobic neutrals, DOC: dissolved organic carbon

3月だけであった。)。貯水池水と原水の全DOMの濃度変化の傾向が両島でほぼ一致していたのは、貯水池水を水道原水の取水口付近で採水したためと考えられる。貯水池水と原水の全DOMは、降雨量の多かった父島と母島の2009年9月及び2010年6月及び父島の2009年12月にも高く、これらの月は採水前10日間の降雨（Table 1）が80 mm以上あり、降雨に伴ってDOMが流出し、貯水池へ流入したためと推定された。父島と母島の水道原水の毎月の調査²⁾では藻類総数は特に多くなく、DOMの内部生産由来は少ないと考えられた。これらのことから、父島、母島とも沢水より貯水池水でDOMが高い傾向があるのは、沢水のDOMが貯水池へ流入し、それが貯水池に蓄積したためと考えられた。父島では貯水池水と原水のDOM濃度が同程度であるが、母島では貯水池水より原水の方が約20%低かった。その理由は、原水にDOM濃度の低い井戸水が約20%混合²⁰⁾されているためと考えられる。

各月の試料の疎水性酸と親水性画分の合計は、父島では全DOMの85%以上、母島では81%以上を占めた。父島の親水性画分と疎水性酸の全DOMに占める割合の平均と範囲は、沢水：40（30～58）%，51（39～60）%，貯水池水：42（33～56）%，52（42～65）%，原水：40（31～52）%，50（44～55）%であった。平均では各試料とも親水性画分より疎水性酸の

Table 1 Rainfall (mm) for ten days before sampling day.

Island	2009			2010		
	June	Sep.	Dec.	Mar.	June	Sep.
Chichijima	21	95	116	25	148	28
Hahajima	9	87	38	27	174	8

方が高く、月毎にみると2010年9月以外はいずれの試料も疎水性酸の方が高かった。母島の親水性画分と疎水性酸のDOM全体に占める割合の平均と範囲は、沢水：42（28～61）%，46（33～52）%，貯水池水：45（28～52）%，46（38～60）%，原水：44（29～65）%，44（35～52）%であった。各試料の平均は、親水性画分と疎水性酸が同程度であるが、月毎にみると2009年6月、2010年9月はいずれの試料も親水性画分の方が高かった。2010年6月に父島と母島の貯水池水、原水の疎水性酸の割合が最も高いのは、採水日の10日前に両島で150 mm・日⁻¹以上の降雨があり、疎水性酸が多量に流出したためと推定された。父島と母島における各月の沢水、貯水池水及び原水の全DOMに占める親水性画分と疎水性酸の割合は類似していた。今回調査した沢水の疎水性酸の全DOMに占める割合は、琵琶湖北湖に流入する4河川：37～73%¹⁰⁾、霞ヶ浦に流入する4河川：31～43%¹¹⁾と同程度で、熱帯域に位置するブラジルのアマゾン川流域の60%³¹⁾より低かった。水道原水となる他の湖の疎水性酸の全DOMに占める割合は、琵琶湖

北湖：約 25%¹⁰⁾、霞ヶ浦：約 32%¹¹⁾、韓国の雲門湖：36～40%³²⁾で、小笠原諸島の原水に比べて低かった。

一方、今回分画した親水性画分には親水性酸の他、疎水性塩基成分も含まれるが、それらの割合は琵琶湖では 40～48%、1～2%¹⁰⁾、中国の東湖では約 30%、約 5%¹⁴⁾であり、小笠原諸島の水源貯水池の親水性画分の割合は、琵琶湖とは同程度、中国の東湖よりやや高く、親水性画分は大部分親水性酸であるとみなされる。

波長 260 nm の吸光度は、硝酸イオン、臭化物イオン等の影響が無視でき、溶存有機物量と正の相関があることが報告されている^{33, 34)}。福島ら³³⁾は、湖水と流入河川では UV:DOC 比が有意に異なっており、外来性の有機物と内部生産由来の有機物の UV:DOC 比が異なることに起因することを報告している。土壌由来溶存有機物の UV:DOC 比は 23～58 ($\text{mAbs}\cdot\text{cm}^{-1}\cdot\text{mgC}^{-1}\cdot\text{L}$)³⁵⁾、内部生産性由来の有機物の UV:TOC 比は 12 ($\text{mAbs}\cdot\text{cm}^{-1}\cdot\text{mgC}^{-1}\cdot\text{L}$) 程度と報告されている³⁶⁾。そこで父島と母島の沢水、貯水池水及び水道原水の UV:DOC 比を Fig. 3-2 に示した。DOM, 親水性画分, 疎水性酸の比の範囲は、父島では沢水：39～82, 21～44, 40～94, 貯水池水：37～102, 21～55, 46～106, 原水：39～102, 23～32, 40～114, 母島では沢水：21～93, 13～29, 38～140, 貯水池水：33～96, 20～31, 38～

136, 原水：32～89, 23～27, 34～122 であった。各試料及びその画分とも、内部生産由来の UV:DOC 比の目安となる 12 ($\text{mAbs}\cdot\text{cm}^{-1}\cdot\text{mgC}^{-1}\cdot\text{L}$)³⁶⁾ を明らかに上回っていた（小笠原諸島の水道原水の藻類種組成は、本土と変わらなかったためこれを適用できると考える^{2, 19)}）。小笠原諸島の水道原水水質の毎月調査²⁾でも DOM の UV:DOC 比は、父島と母島では 33-91, 29-98 と 12 より明らかに高かった。

沢水、貯水池水及び原水とも疎水性酸が最も UV 吸収能が高く³⁷⁾、次に DOM, 親水性画分の順であった。各試料とも疎水性酸の変動は、親水性画分よりも大きかった。沢水、貯水池水及び原水の UV:DOC 比を比較すると、沢水は貯水池水と原水より低い傾向がみられた。採水月ごとにみると沢水、貯水池水及び原水は、採水日前 10 日間の降雨が 150 mm 以上と多かった 2010 年 6 月に父島、母島とも高く、疎水性酸が多量に流出したためと推定された。2009 年 6 月は母島だけが、9 月は父島だけが高かった。その理由は、貯水池の大きさが父島と母島では極端に異なり、滞留時間が顕著に異なる（父島：5.8 日、母島：215 日）²⁾ ためと推定された。すなわち 2009 年 6 月に母島だけが低いのは、採水 10 日前の雨量がわずかにもかかわらず、4 月からの降雨が 300 mm 以上あり、母島の乳房ダムは滞留時間が長いために、この滞

Fig. 3-2 Ultraviolet absorbance to dissolved organic carbon ratios of total DOM, hydrophilic fraction (HiF) and hydrophobic acids (HoA) of water samples from mountain stream, reservoir and raw water in the Ogasawara Islands.

Fig. 4-1 Formation potentials (per mg of DOC) of total trihalomethane and total haloacetic acid in raw water in the Ogasawara Islands.
DOM: dissolved organic matter, HiF: hydrophilic fraction, HoA: hydrophobic acids

留した水を採水したためと推定された。2009年9月に父島だけ高いのは、父島、母島とも採水日前10日間に90 mm程度の降雨があったが、その降雨のために濁水が貯水池（連珠ダム）に流入し、父島の貯水池の容量が小さく滞留時間が短いために²⁾、濁水の影響を受けた貯水池水を取水したためと推定された。

小笠原諸島の沢水、貯水池水及び水道原水のUV:DOC比は、内部生産由来の目安の12 ($\text{mAbs} \cdot \text{cm}^{-1} \cdot \text{mgC}^{-1} \cdot \text{L}$)³⁶⁾を明らかに上回り、土壌由来のUV:DOC比 ($23 \sim 58 \text{ mAbs} \cdot \text{cm}^{-1} \cdot \text{mgC}^{-1} \cdot \text{L}$)³¹⁾と同程度かそれを上回った。UV:DOC比は琵琶湖や霞ヶ浦が流入河川より湖水の方が低かった³³⁾のに対して、小笠原諸島の貯水池に流入する沢水より貯水池水の方が高い傾向がみられた。以上のことから、UV:DOC比からも小笠原諸島の原水のDOMは、明らかに水源貯水池に流入する沢水由来であることが示唆された。

したがって、小笠原諸島の沢水、貯水池水及び水道原水のDOMの由来は、ほとんど同一の土壌有機物であり、その土壌有機物の起源は島内の陸上に繁茂する植物であると考えられる。そのDOMの疎水性酸と親水性画分の由来は、それぞれ各試料に各時期33～65%、28～65%含まれ、非降雨時期にも存在することからともに地中の植物分解物の由来が考えられる。しかし、疎水性酸は降雨後のUV:DOC比が高い時期に顕著に多いことから、降雨後には地表の植物分解物及び植物体からの溶出物が大部分を占めることが推定された²⁾。親水性画分の由来は、降雨にともなう増加がみられないことから疎水性酸とは異なりほとんど地中の植物分解物であることが推定された。

3.2 水道原水のTTHMFPとTHAAFP

父島と母島のmgC当たりのTTHMFPとTHAAFPをFig. 4-1に示した。父島のmgC当たりのTTHMFPの平均（範囲）は、原水: $0.27 (0.24 \sim 0.30) \mu\text{mole} \cdot \text{mgC}^{-1}$ 、

親水性画分: $0.24 (0.23 \sim 0.27) \mu\text{mole} \cdot \text{mgC}^{-1}$ 、疎水性酸: $0.26 (0.23 \sim 0.30) \mu\text{mole} \cdot \text{mgC}^{-1}$ であった。母島のmgC当たりのTTHMFPの平均（範囲）は、原水: $0.26 (0.24 \sim 0.28) \mu\text{mole} \cdot \text{mgC}^{-1}$ 、親水性画分: $0.25 (0.23 \sim 0.26) \mu\text{mole} \cdot \text{mgC}^{-1}$ 、疎水性酸: $0.26 (0.24 \sim 0.27) \mu\text{mole} \cdot \text{mgC}^{-1}$ であった。父島、母島とも原水、親水性画分及び疎水性酸のmgC当たりのTTHMFPには、ほとんど違いはみられず、父島と母島との違いもほとんどみられなかった。霞ヶ浦における親水性画分と疎水性酸の値¹³⁾も、小笠原諸島の水道原水の値より低い、それぞれ $0.195 \mu\text{mole} \cdot \text{mgC}^{-1}$ 、 $0.176 \mu\text{mole} \cdot \text{mgC}^{-1}$ であり、両者で濃度の違いはわずかであった。霞ヶ浦における親水性画分と疎水性酸の値より父島、母島とも親水性画分は約1.25倍、疎水性酸は約1.5倍高かった。小原¹²⁾は、mgC当たりの土壌起源のフミン物質と藻類由来の有機物のTTHMFPを比較し、土壌起源のフミン物質による生成能の方が藻類由来の有機物による生成能より高かったことを報告している。今回、小笠原諸島の水道原水と霞ヶ浦のmgC当たりのTTHMFPを比較し、小笠原諸島の水道原水の方が霞ヶ浦より高かったのは、小笠原諸島の水道原水のDOMは、土壌由来のフミン物質が多いのに対して霞ヶ浦では藻類由来のDOMが多い³³⁾ためと推定された。

mgC当たりのDOM、親水性画分及び疎水性酸のTHAAFPの平均値と範囲は、父島の原水: $0.38 (0.31 \sim 0.54)$ 、 $0.24 (0.22 \sim 0.26)$ 、 $0.43 (0.38 \sim 0.66) \mu\text{mole} \cdot \text{mgC}^{-1}$ であり、母島の原水: $0.27 (0.23 \sim 0.29)$ 、 $0.19 (0.17 \sim 0.20)$ 、 $0.35 (0.26 \sim 0.58) \mu\text{mole} \cdot \text{mgC}^{-1}$ であった。原水、親水性画分及び疎水性酸のmgC当たりのTHAAFPは、父島、母島とも疎水性酸、原水、親水性画分の順に高く、UV:DOC比と同様の傾向を示し、TTHMFPと傾向が異なった。親水性画分の濃度がほとんど変わらないのにもかかわらず、疎水性酸の濃度は

Fig. 4-2 Formation potentials (per liter) of total trihalomethane and total haloacetic acid in raw water in the Ogasawara Islands.

HiF: hydrophilic fraction, HoA: hydrophobic acids, HoN: hydrophobic neutrals

TTHMFP: total trihalomethane formation potential, THAAFP: total haloacetic acid formation potential

変化が大きかった。採水日前 10 日間の降雨量の最も多かった 2010 年 6 月に DOM と疎水性酸の画分が最高値を示したのは、採水直前の降雨にともなうフミン物質の流出のためと推定される。THAAFP は TTHMFP より疎水性酸の影響を強く受けていると推定された。TTHMFP における親水性画分と疎水性酸の寄与率の差が小さく、THAAFP におけるそれらの寄与率の差が大きいのは、Lu ら¹⁷⁾の河川水の塩素処理の結果と一致した。

次に実際の存在濃度を考慮した父島と母島の L 当たりの TTHMFP と THAAFP とその組成を Fig. 4-2 に示した。DOM の TTHMFP の平均 (範囲) は、父島: 1.65 (1.07 ~ 2.15) $\mu\text{mole}\cdot\text{L}^{-1}$ 、母島: 1.10 (0.86 ~ 1.33) $\mu\text{mole}\cdot\text{L}^{-1}$ であった。父島、母島とも各月の試料の TTHMFP 全体の 77% 以上を疎水性酸と親水性画分の合計が占めた。TTHMFP に占める親水性画分と疎水性酸の寄与は、父島では 35 (25 ~ 43) % 及び 52 (43 ~ 57) % であり、親水性画分より疎水性酸の方が高かったが、母島では 41 (27 ~ 63) % 及び 44 (34 ~ 50) % であり、親水性画分と疎水性酸がほぼ同程度であった。

DOM の THAAFP の平均 (範囲) は、父島: 2.39 (1.41 ~ 3.86) $\mu\text{mole}\cdot\text{L}^{-1}$ 、母島: 1.17 (0.77 ~ 1.86) $\mu\text{mole}\cdot\text{L}^{-1}$ であり、各月の試料の親水性画分と疎水性酸の合計は、父島では THAAFP 全体の 80% 以上、母島では 76% 以上を占めた。父島の THAAFP 全体における親水性画分と疎水性酸の寄与は、23 (14 ~ 39) % 及び 59 (46 ~ 67) % であり、疎水性酸の平均が親水性画分より 2 倍以上高かった。母島では親水性画分と疎水性酸の THAAFP 全体における寄与は、31 (15 ~ 43) % 及び 61 (34 ~ 78) % であり、疎水性酸の平均が親水性画分より約 2 倍高く、月毎にみると 2010 年 9 月は親水性画分の方が疎水性酸より高かったものの、全体的には母島も父島と同様に疎水性酸の方が高い傾向にあるといえる。

父島と母島の水道原水の L 当たりの TTHMFP と THAAFP に共通した傾向は、次の通りであった。2010 年 6 月に TTHMFP と THAAFP 並びにそれらへの疎水性酸の寄与は最高値を示し、これらは mgC 当たりの THAAFP と同様、採水日前 10 日間の降雨量の最も多かった時期と一致した。これらの最高値は、降雨にともなう疎水性酸の多量の流出によるものと推定された。このような傾向は、毎月における原水の DOC、消毒副生成物生成能等の調査²⁾と同様で、降雨時または降雨直後の消毒副生成物生成能が顕著に高く、降雨時の浄水処理に特に注意を要することを示している。TTHMFP とその分画の寄与率は、DOM とその分画の割合とほぼ一致し、TTHMFP が主に疎水性酸と親水性画分に由来することを示した。その理由として、小笠原村の水道原水の DOM の疎水性酸と親水性画分は、mgC 当たりの THMFP が同程度であったことから、疎水性酸と親水性画分に同程度の TTHMFP の前駆体が含まれていることが推定された。THMFP は主に疎水性酸に由来することが多く報告³⁸⁻⁴⁰⁾されているが、近年主に親水性酸に由来するという報告^{13, 41, 42)}もみられる。THAAFP における疎水性酸の寄与率は、TTHMFP における疎水性酸の寄与率より高く、THAAFP が第一に疎水性酸、次に親水性画分に由来することを示した。その理由として、mgC 当たりの THAAFP は疎水性酸の方が親水性画分よりほとんど 2 倍以上高かったことから、THAAFP の前駆体は疎水性酸の方が親水性画分より多いことが推定された。中国の天津市の地表水やタイのバンコク市における水処理プラントの原水では、今回の調査と類似して疎水性物質がハロ酢生成能の主たる前駆体であることが報告されている^{41, 43)}。

3.3 浄水処理の効果

2003 年 8 月と 2004 年 1 月に小笠原村の浄水場の処理

Table 2 Water treatment in water purification plants in the Ogasawara Islands.

	Item	Unit	Chichijima			Hahajima		
			raw water	treat. water	removal	raw water	treat. water	removal
June	DOC	mg·L ⁻¹	7.18	1.79	75%	4.80	1.40	71%
	HiF ¹⁾	mg·L ⁻¹	2.23	0.81	64%	1.40	0.68	51%
	HoA ²⁾	mg·L ⁻¹	3.93	0.66	83%	2.50	0.45	82%
	TTHM ³⁾	μmol·L ⁻¹	2.15	0.35	84%	1.33	0.31	77%
	HiF	μmol·L ⁻¹	0.54	0.18	66%	0.36	0.14	61%
	HoA	μmol·L ⁻¹	1.18	0.12	90%	0.67	0.10	85%
	THAA ⁴⁾	μmol·L ⁻¹	3.86	0.17	96%	1.85	0.18	90%
	HiF	μmol·L ⁻¹	0.53	0.08	85%	0.27	0.08	70%
	HoA	μmol·L ⁻¹	2.58	0.06	98%	1.45	0.05	96%
Sep.	DOC	mg·L ⁻¹	4.84	1.83	62%	3.43	2.15	37%
	HiF	mg·L ⁻¹	2.51	1.07	57%	2.21	1.25	43%
	HoA	mg·L ⁻¹	2.07	0.60	71%	1.17	0.67	43%
	TTHM	μmol·L ⁻¹	1.34	0.22	84%	0.93	0.52	44%
	HiF	μmol·L ⁻¹	0.64	0.12	81%	0.59	0.24	60%
	HoA	μmol·L ⁻¹	0.55	0.05	91%	0.32	0.16	50%
	THAA	μmol·L ⁻¹	1.48	0.24	84%	0.91	0.26	71%
	HiF	μmol·L ⁻¹	0.58	0.12	79%	0.39	0.15	61%
	HoA	μmol·L ⁻¹	0.68	0.07	90%	0.30	0.11	65%

1) HiF:hydrophilic fraction, 2) HoA:hydrophobic acids

3) Total Trihalomethane formation potential, 4) Total haloacetic acid formation potential

Fig. 5 Fraction distributions of dissolved organic matter (DOM) of raw water and treated water collected in two water purification plants in the Ogasawara Islands.

HiF: hydrophilic fractions, HoA: hydrophobic acids, HoN: hydrophobic neutrals

Raw.: raw water, Treated.: treated water

過程における消毒副生成物などの化学物質の挙動を調査し¹⁹⁾、DOMの減少が明らかに見られたのは凝集沈殿処理だけであったので、今回、凝集沈殿処理によるDOMとその画分並びにTTHMFPとTHAAFPへの影響を検討した。父島と母島の浄水場における2010年6月と9月の採水当日の浄水処理効果(DOM、TTHMFP及びTHAAFPの除去率)をTable 2に、原水と処理水のDOM、TTHMFP及びTHAAFPの親水性画分、疎水性酸及び疎水性中性物質の割合または寄与率をFig. 5に示した。

父島と母島の浄水場のDOM、TTHMFP及びTHAAFPの除去率(Table 2)を比較すると、6月ではDOM:75及び71%、TTHMFP:84及び77%、THAAFP:96及び90%、9月ではDOM:62及び37%、TTHMFP:84及び44%、THAAFP:84及び71%で、いずれも父島の方が母島より除去率が高かった。その理由は、父島では活性炭処理と凝集沈殿処理が行われているのに対して、母島は凝集沈殿処理だけであるためと考えられた。

父島の浄水場の処理水における原水からのDOM、TTHMFP及びTHAAFPの除去率は、6月:75、84及び96%、9月:62、84及び84%で、浄水処理は良好であった⁴⁴⁾。父島の浄水場における親水性画分と疎水性酸の除去率の内訳をみると、親水性画分と疎水性酸の除去率は、6月ではDOM:64及び83%、TTHMFP:66及び90%、THAAFP:85及び98%で、9月ではDOM:57及び71%、TTHMFP:81及び91%、THAAFP:79及び90%で、すべての親水性画分は疎水性酸より除去率が低かった。このためFig. 5に示すように6、9月とも処理水では原水に比べてDOM、TTHMFP及びTHAAFPに占める疎水性酸の割合または寄与率が減少し、親水性画分の寄与率が増加しており、親水性画分の寄与率が最も高かった。

母島の浄水場の処理水における原水からのDOM、TTHMFP及びTHAAFPの除去率は、6月では71、77及び90%で良好であった。DOMの除去率の内訳をみると、親水性画分と疎水性酸の除去率は、51及び82%、TTHMFPでは61及び85%、THAAFPでは70及び96%で、いずれも親水性画分は疎水性酸より除去率が低かった。このため父島と同様6月ではDOM、TTHMFP及びTHAAFPに占める割合あるいは寄与率は、原水では親水性画分より疎水性酸が高かったが、処理水では疎水性酸より親水性画分が高かった(Fig. 5)。父島と同様の結果であり、凝集沈殿処理と活性炭処理は、親水性物質の除去が困難なことが報告されている^{8,9,45)}ことから、疎水性酸に比べて、親水性画分が除去されにくいためと考えられた。

しかし、9月ではDOM、TTHMFP及びTHAAFPの除去率が37、44及び71%で、DOMとTTHMFPの除去率はやや不良であった⁴⁴⁾。9月の除去率の内訳をみると、親水性画分と疎水性酸の除去率がDOM:43及び43%、TTHMFP:60及び50%、THAAFP:61及び65%と同程度か、親水性画分の方が高かった。母島の9月の原水の組成(Fig. 5)をみると、同島の6月と父島の6、9月の原水と異なり、DOMとTTHMFPでは親水性画分の割合または寄与率が疎水性酸より2倍近く高く(DOM:64及び34%、TTHMFP:63及び34%)、処理水の親水性画分についても同様に疎水性酸より高かった。その理由

は、原水から親水性画分の割合または寄与率が高く、また浄水処理で親水性画分を除去しにくいため、全DOMとTTHMFPの除去率も低くなったと考えられた。

小笠原村の浄水処理過程の調査(2003-2004年)においてTHAAFPの除去率が、TTHMFPの除去率より高いという結果が得られている¹⁹⁾。その理由は、今回の調査によって原水のTTHMFPとTHAAFPの測定でTHAAFPにおける疎水性酸の寄与がTTHMFPにおけるそれより大きいことが明らかとなったことから、活性炭処理と凝集沈殿処理において親水性画分より疎水性酸が除去されやすいことの反映と考えられた。したがって、小笠原諸島の浄水処理では、THAAFPよりも除去されにくいTTHMFPの除去処理が可能な浄水処理方法の導入によって、さらなる消毒副生成物の低減化がはかられると考えられた。Kimら¹⁸⁾は韓国ソウル市の水処理プラントの浄水処理過程(前塩素、凝集、沈殿、ろ過)におけるDOM、TTHMFPとTHAAFP等の挙動について調査した。その結果、TTHMFPは親水性画分より疎水性酸が高く寄与したが、THAAFPでは疎水性酸より親水性画分が強く寄与した。処理過程では親水性画分より疎水性酸の減少が顕著で、TTHMFPよりTHAAFPの除去が重要であった。浄水処理で親水性画分より疎水性酸が除去され易いのは小笠原村の試料の傾向と同様であったが、TTHMFPとTHAAFP画分の寄与率の傾向(TTHMFPよりTHAAFPの除去の重要性)は反対となり、その原因は前駆物質の違いが推定される。

3.4 ゲルろ過クロマトグラフィーによるDOM分子量の推定

各採取時期の父島と母島の沢水と原水のゲルクロマトグラムには、そのすべてで溶出時間(ET)が28.4~28.8分にピークがみられた。また、沢水では父島は2009年6、12月、2010年3、6月、母島は2009年12月、2010年3及び6月に、原水では父島は2009年6、9及び12月、2010年3及び6月、母島は2009年6及び9月、2010年6月に、ET 16.3~16.5分に小さなピークがみられた。ET 16.3~16.5のピーク面積は、全試料にみられたET 28.4~28.8分のピーク面積の10%以下であった。また、父島と母島の6月と9月の処理水は、いずれもET 29.5分と30.4~30.8分の2峰性のピークがみられた。一例としてFig. 6に父島の2012年6月の沢水、原水及び処理水のクロマトを示す。分子量標準物質MW1100~6390において分子量の常用対数は、ETと直線関係にあった(Fig. 7)。これから試料の重量平均分子量を算出すると、沢水と原水のすべての試料にみられたET 28.4~28.8のピークの重量平均分子量は1220~1390 g·mol⁻¹、処理水のET 29.5~30.8分のピークの重量平均分子量は、630~970 g·mol⁻¹と推定された。また、分子量標準物質とETの直線関係の範囲外であったが、一部の試料にみられた16.3~16.5分のピークの重量平均分子量は、約200,000 g·mol⁻¹と推定された。なお、クロマトの約38.5分(スチレンスルホン酸ナトリウムの溶出時間の近く)に負のピークがみられたが、サンプルのイオン強度とpHを調整しなかったためと推定される。

小笠原村の水道原水と処理水DOMの主成分の重量平均分子量は、韓国の雲門湖:1010~1110 g·mol⁻¹³²⁾、アメリカのFryxell湖:1080 g·mol⁻¹²⁹⁾、Missouri川:1160

Fig. 6 Gel-filtration chromatograms of dissolved organic matter (DOM) from water samples in June, 2010 of mountain stream flowing into the Renju Dam of the Chichijima Island, and raw and treated water in water purification on the island.

$\text{g} \cdot \text{mol}^{-1}$ ⁴⁶⁾よりやや大きく、霞ヶ浦： $760 \text{ g} \cdot \text{mol}^{-1}$ ¹³⁾より2倍近く大きかった。小笠原村の浄水場処理水 DOM の重量平均分子量 ($630 \sim 970 \text{ g} \cdot \text{mol}^{-1}$) は、原水の重量平均分子量 ($1220 \sim 1390 \text{ g} \cdot \text{mol}^{-1}$) より小さく、この DOM は主に処理水の画分で最大であった親水性画分と推定された。霞ヶ浦の DOM、疎水性酸及び親水性画分の重量平均分子量は、760, 990 及び $600 \text{ g} \cdot \text{mol}^{-1}$ ¹³⁾であり、親水性画分が最小であった。また、韓国ソウル市の水処理プラントの浄水処理過程¹⁸⁾では処理水の DOM の分子量が原水に比べ減少する傾向がみられ、小笠原村の浄水場処理水と同様の傾向を示した。

4. まとめ及び結論

小笠原村の水道原水、貯水池水、沢水 (2009 年 6, 9, 12 月, 2010 年 3, 6, 9 月採取) 及び浄水場の処理水 (2010 年 6, 9 月採取) の DOM を親水性画分、疎水性酸及び疎水性中性物質に分画した。

1. 父島と母島の沢水、貯水池水及び水道原水の DOM は、疎水性酸と親水性画分が主成分であった。これらの試料の DOM 組成と UV : DOC 比から、水道原水の DOM は沢水由来であることが示唆された。

2. 水道原水の親水性画分と疎水性酸の mgC 当たりの TTHMFP と THAAFP を測定した後、実際の存在濃度を考慮した L 当たりのそれらの生成能を算出した。TTHMFP への各画分の寄与率は、DOM とその各画分の割合とほぼ一致した。THAAFP における疎水性酸の寄与率は、TTHMFP への疎水性酸の寄与率より高かった。

Fig. 7 Calibration curve of standards in gel-chromatography.

3. 父島の活性炭・凝集沈殿処理水と母島の凝集沈殿処理水の DOM, TTHMFP 及び THAAFP の各画分の割合または寄与率は、すべて親水性画分が最も高かった。原水中 DOM の親水性物質の除去が十分可能である浄水処理法の採用により、処理水中の DOM を減少させ、浄水中的消毒副生成物のさらなる低減化が可能と考えられた。

4. 沢水と原水の子な DOM の重量平均分子量はともに $1220 \sim 1390 \text{ g} \cdot \text{mol}^{-1}$ であり、原水の DOM は貯水池に流入する沢水の DOM に由来することが明らかとなった。処理水の DOM の重量平均分子量は、 $630 \sim 970 \text{ g} \cdot \text{mol}^{-1}$ と推定された。

謝 辞

本研究に協力いただいた小笠原村建設水道課 千葉勇人氏、小笠原村母島支所 大塚宏幸氏、東京都福祉保健局長健康安全部水道行政担当課の方々に感謝します。

(原稿受付 2013 年 5 月 28 日)

(原稿受理 2014 年 2 月 20 日)

参 考 文 献

- 1) 環境省 (2009) 小笠原国立公園、指定書及び公園計画書、平成 21 年 11 月 12 日。
- 2) 栃本博, 小杉有希, 小西浩之, 猪又明子, 武藤千恵子, 栗田雅行, 矢口久美子, 千葉勇人, 大塚宏幸 (2010) 小笠原諸島の水道原水の水質—消毒副生成物生成能を中心として, 水環境学会誌, **33**, 181-191.
- 3) 厚生労働省 (2010) 水道水質データベース, <http://www.jwwa.or.jp/mizu/list.html> (2013 年 5 月時点)。
- 4) 栃本博, 小杉有希, 小輪瀬勉, 矢口久美子 (2008) 島しょ水道水中の有機ハロゲン化消毒副生成物, 東京健安研七報, **59**, 261-269.
- 5) 栃本博, 小杉有希, 小西浩之, 矢口久美子, 千葉勇人, 大塚宏幸 (2009) 小笠原諸島の水道水中の有機ハロゲン化消毒副生成物, 第 18 回環境化学討論会, つくば, pp536-537.
- 6) 芳賀秀寿, 三村秀一, 西垣進, 黒瀬博行, 笹野英雄 (1983) 小笠原村簡易水道のトリハロメタン低減化対策, 水道公論, **19** (6), 53-61.
- 7) 東京都福祉保健局長健康安全部 (2012) 東京都の水道, 平成 23 年版。
- 8) Sharp, E. L., Jarvis, P., Parsons, S. A. and Jefferson, B. (2006) Impact of fractional character on the coagulation of NOM, *Colloids and Surfaces, A*, **286**, 104-111.
- 9) Lee, S., Cho, J., Shin, H., Son, B. and Chae, S. (2003) Investigation of NOM size, structure and functionality (SSF) : impact on water treatment process with respect to disinfection by-products formation, *J. Water Supply: Res. and Technol. -Aqua*, **52**, 555-564.

- 10) 今井章雄, 福島武彦, 松重一夫, 井上隆信, 石橋敏昌 (1998) 琵琶湖湖水および流入河川水中の溶存有機物の分画, 陸水学雑誌, **59**, 53-68.
- 11) Imai, A., Fukushima, T., Matsushige, K. and Kim, Y. H. (2001) Fractionation and characterization of dissolved organic matter in shallow eutrophic lake, Its inflowing rivers, and other organic matter sources, *Water Res.*, **35**, 4019-4028.
- 12) 小原慎弥, 上原隆志, 木村圭一郎, 吉田哲郎, 藤原翔平, 水口裕尊, 布施泰朗, 山田悦 (2009) 琵琶湖水におけるトリハロメタン前駆物質としてのフミン物質と藻類由来有機物の動態解析, 分析化学, **58**, 231-240.
- 13) Imai, A., Matsushige, K. and Nagai, T. (2003) Trihalomethane formation potential of dissolve organic matter in a shallow eutrophic lake, *Water Res.*, **37**, 4284-4294.
- 14) Wei, Q., Feng, C., Wang, D., Shi, B., Zhang, L., Wei, Q. and Tang, H. (2008) Seasonal variations of chemical and physical characteristics of dissolved organic matter and trihalomethane precursors in a reservoir: a case study, *J. Hazard Mater.*, **150**, 257-264.
- 15) Lin, Y. Z., Yin, J., Zhao, K., and Wang, J. H. (2010) Investigation of DOM and THMFP in two reservoir waters of Changchun (China), *Environ. Prog. & Sustain. Energy*, **29**, 292-296.
- 16) 徐育子, 越後信哉, 伊藤慎彦, 古澤彰太 (2008) ハロ酢酸生成能からみた親水性溶存有機化合物の重要性, 59回全国水道研究発表会, pp534-535.
- 17) Lu, J., Zhang, T., Ma, J. and Chen, Z. (2009) Evaluation of disinfection by-products formation during chlorination and chloramination of dissolved natural organic matter fractions isolated from a filtered river water, *J. Hazard Mater.*, **162**, 140-145.
- 18) Kim, H. C. and Yu, M. J. (2005) Characterization of natural organic matter in conventional water treatment processes for selection of treatment processes focused of DBPs control, *Water Res.*, **39**, 4779-4789.
- 19) 栃本博, 小杉有希, 猪又明子, 矢口久美子 (2007) 小笠原諸島の浄水場の処理過程におけるハロ酢酸とトリハロメタンの挙動, 水環境学会誌, **30**, 387-395.
- 20) 小笠原村役場建設水道課 (2009-2010) 小笠原村役場 父島母島簡易水道管理月報.
- 21) Thurman, E. M. and Malcolm, R. L. (1981) Preparative isolation of aquatic humic substances., *Environ. Sci. Technol.*, **15**, 463-466.
- 22) 福島武彦, 石橋敏昌, 今井章雄, 尾崎則篤, 西井祥則 (2000) 広島湾における溶存有機物の動態, 水環境学会誌, **23**, 360-366.
- 23) 日本水道協会 (2010) 上水試験方法, 2011年版, 日本水道協会, 東京.
- 24) 松重一夫, 今井章雄 (1998) 水中溶存有機物分画成分のトリハロメタン生成能測定法, 国立環境研究所特別研究報告, **138**, 47-48.
- 25) Clark, R. M., Thunau, R. C., Sivaganesen, M. and Ringhand, P. (2001) Predicting the formation of chlorinated and brominated by-products, *J. Environ. Eng.*, **127**, 493-501.
- 26) Cowman, G. A. and Singer, P. C. (1996) Effect of bromide ion on haloacetic acid speciation resulting from chlorination and chloramination of aquatic humic substances, *Environ. Sci. Technol.*, **30**, 16-24.
- 27) 森田昌敏, 今井章雄, 松重一夫, 高村典子, 佐野友春, 相崎守弘, 細見正明, 金庸桓, 中島俊之 (2001) 湖沼において増大する難分解性有機物の発生原因と影響評価に関する研究, 国立環境研究所特別研究報告, SR-36-2001.
- 28) Nobukawa, T. and Sanukida, S. (2001) Effect of bromide ions on genotoxicity of halogenated by-products from chlorination of humic acid in water, *Water Res.*, **35**, 4293-4298.
- 29) Chin, Y. P., Aiken, G. and O'Loughlin, E. (1994) Molecular weight, polydispersity, and spectroscopic properties of aquatic humic substances, *Environ. Sci. Technol.*, **28**, 1853-1858.
- 30) O'Loughlin, E. and Chin, Y. P. (2001) Effect of detector wavelength on the determination of the molecular weight of humic substances by high-pressure size exclusion chromatography, *Water Res.*, **35** (1), 333-338.
- 31) Ertel, J. R., Hedges, J. I., Devol, A. H. and Richey, J. E. (1986) Dissolved humic substances of the Amazon River system, *Limnol. Oceanogr.*, **31**, 739-754.
- 32) 金庸桓, 李淳和, 今井章雄, 松重一夫 (2003) 雲門湖水中の溶存有機物の特性, 水環境学会誌, **26**, 861-867.
- 33) 福島武彦, 今井章雄, 松重一夫, 井上隆信, 小澤秀明 (1997) 湖水溶存有機物の紫外外部吸光度: DOC比の特性とその水質管理への利用, 水環境学会誌, **20**, 397-403.
- 34) Ogura, N. and Hanya, T. (1968) Ultraviolet absorbance as an index of the Pollution of sea water., *J. Water Poll. Control Fed.*, **40**, 464-467.
- 35) Buffle, J., Delandoety, P., Zumstein, J. and Haerdi, W. (1982) Analysis and characterization of natural organic matters in freshwaters. I. Study of analytical techniques, *Schweiz. Z. Hydrol.*, **44**, 325-362.
- 36) Fukushima, T., Park, J., Imai, A. and Matsushige, K. (1996) Dissolved organic carbon in a eutrophic lake; dynamics, biodegradability and origin, *Aquatic Science*, **58** (2), 139-157.
- 37) 石渡良志, 米林甲陽, 宮島徹編著 (2008) 環境中の腐植物質—その特徴と研究法— (日本腐植物質学会監修), p127-132, 三共出版, 東京.
- 38) Lamsal, R., Montreuil, K. R., Kent, F. C., Walsh, M. E. and Gagnon G. A. (2012) Characterization and removal of natural organic matter by an integrated membrane system, *Desalination*, **303**, 12-16.
- 39) Zhang, Q., Kuang, W. F., Liu, L. Y., Li, K., Wong, K. H., Chow, A. T. and Wong, P. K. (2009) Trihalomethane, haloacetnitrile, and chloral hydrate formation potentials of organic fractions from sub-tropical forest soil, *J. Hazard Mater.*, **172**, 880-887.
- 40) Chow, A. T., Guo, F., Gao S. and Breuer, R. S. (2006) Size and XAD fractionations of trihalomethane precursors from soils, *Chemosphere*, **62**, 1636-1646.
- 41) Liu, Y., Wang, Q., Zhang, S., Lu, J. and Yue, S. (2011) NOM reactivity with chlorine in low SUVA water, *J. Water Supply: Res. Technol. -Aqua*, **60** (4), 231-239.
- 42) Marhaba, T. F. and Van, D. (2000) The variation of mass and disinfection by-product formation potential of dissolved organic matter fractions along a conventional surface water treatment plant, *J. Hazard Mater.*, **74**, 133-147.
- 43) Kanokkantarapong, V., Marhaba, T. F., Wattanachira, S., Panyapinyophol, B. and Pavasant, P. (2006) Interaction between organic species in the formation of haloacetic acids following disinfection, *J. Environ. Sci. Health Part A*, **41**, 1223-1248.
- 44) 厚生科学研究費補助金生活安全総合研究事業 (2001) 水道における化学物質の毒性, 挙動及び低減化に関する研究, 平成12年度研究報告書, pp349-385.
- 45) 伊藤慎彦, 越後信哉 (2008) 水の消毒副生成物, pp252-259, 技報堂出版, 東京.
- 46) Zhou, Q., Cabaniss, S. E. and Maurice, P. A. (2000) Considerations in the use of high pressure size exclusion chromatography (HPSEC) for determining molecular weights of aquatic humic substance, *Water Res.*, **34**, 3505-3514.

[論 文 要 旨]

小笠原諸島の水道原水，貯水池水，沢水及び浄水場の処理水の溶存有機物（DOM）を親水性画分，疎水性酸及び疎水性中性物質に分画した。父島と母島の沢水，貯水池水及び水道原水中のDOMは，疎水性酸と親水性画分が主成分であった。総トリハロメタン生成能（TTHMFP）とそれに対する分画の寄与率は，DOMとその分画の割合とほぼ一致した。総ハロ酢酸生成能（THAAFP）への疎水性酸の寄与率は，TTHMFPへのその寄与率より高かった。父島の活性炭・凝集沈殿処理水と母島の凝集沈殿処理水のTTHMFP及びTHAAFPに対するDOMの各分画の割合または寄与率は，すべて親水性画分が最も高かった。原水中DOMの親水性物質の除去に有効な浄水処理法の採用により，処理水中のDOMを減少させ，浄水中の消毒副生成物のさらなる低減化が可能と考えられた。沢水と原水の主なDOMの重量平均分子量は，ともに1220～1390 g・mol⁻¹と推定され，原水のDOMは貯水池に流入する沢水のDOMに由来することが明らかとなった。処理水のDOMの重量平均分子量は，630～970 g・mol⁻¹であり，浄水処理によって低分子化していることが推定された。

キーワード：溶存有機物；親水性；疎水性；トリハロメタン生成能；ハロ酢酸生成能；分子量；水道原水；処理水；小笠原諸島