〈論 文〉

TOX 生成能による淀川水系の水質評価

Evaluation of water quality of Yodo River Basin by
total organic halogen formation potential

木 藤 耕 一* 中 西 準 子*
Koichi KITO Junko NAKANISHI

Abstract

The behavior of total organic halogen formation potential (TOXFP) in Yodo River Basin has been investigated and Yodo River water evaluated for the drinking water.

The water quality of Yodo R. is mainly regulated by diffusion and mixing process of three rivers which compose Yodo R.; Uji R., Kizu R. and Katsura R.. TOXFP of Yodo R. ranges from 200 to $600\mu\text{g} \cdot \text{l}^{-1}$.

The pollution load of TOXFP of Katsura R., remaining a stable figure ($1800\text{kg} \cdot \text{d}^{-1}$), is independent of water flow rate. It proves that this river is contaminated by various kind of human activities. A 45% of the load is attributed to municipal sewage treatment plants.

The water pollution at the left bank of Yodo R. is also effected by tributaries which flow through Hirakata city and gives an adverse effect on the drinking water quality.

Considering cancer risk of chloroform and mutagenic activity of drinking water, it is desirable that TOX level of tap water is below $150\mu\text{g} \cdot \text{l}^{-1}$ and TOXFP level of raw water is below $240\mu\text{g} \cdot \text{l}^{-1}$. These levels are satisfied only at Kuzuha water work.

The most effective way to attain better water quality is to improve municipal sewage treatment plants, which leads TOXFP concentration in Yodo R. below $500\mu\text{g} \cdot \text{l}^{-1}$.

Key words: TOXFP, THMFP, chlorination, drinking water, health effect.

1. 緒 論

浄水過程の塩素処理によって、THM を代表とする多種類の有機塩素化合物が生成する事実は広く認識されており、同時にこれらの有する毒性、特に変異原性・発癌性に関しても知見が集積してきている^{1)~3)}。

他方、近年の目まぐるしい都市化の現象は、上流より排出される汚濁負荷が下流の上水源の水質汚濁の原因となるという問題を様々な流域で誘発してきているが、特にその典型である淀川では、従来より汚濁解析が集中的に行われ、重要な成果も報告されてきた^{4)~6)}。しかしながら、その議論上引用される水質指標はBOD, COD 等であり、これらは現在焦点となっている水の安全性に対応できるものではない。

また、THM, THM 生成能の測定方法はかなり確立され、指標の持つ性格はほぼ明らかになってきたもの

の、一部の有機塩素化合物しか同定していないという不安が残っている。

そこでこのような課題を解消するために、TOX および TOX 生成能の検討が行われており、すでに測定方法の開発も行われてきた^{7)~10)}。

本研究は、約一年間にわたり、淀川水系での TOX 生成能の挙動を調査し、水道水源としての淀川の水質を評価することを目的としている。

2. 調査方法

2.1 時 期

調査は1984年8月の予備調査を初めとして、10月以降翌年4月まで3ヵ月ごとに計3回行った。また、下水処理場放流水は1985年5月、6月、1986年11月に調査した。

* 東京大学工学部都市工学科 〒113 東京都文京区本郷7-3-1, Department of Urban Engineering, Tokyo University, 7-3-1 Hongo Bunkyo-ku, Tokyo 113 Japan

2.2 方法

調査範囲は琵琶湖・淀川水系をほぼ網羅するように、約65地点を選定した。採水地点を **Fig. 1**, **Table 1** に示す。

Table 1 Sampling points

No.	Sampling point	No.	Sampling point
1	Lake Biwa (offshore of Chikubusima-island)	16-18	Yodo River (Torikai Ohashi-Bridge)
2	Lake Biwa (Ohmi Ohashi-Bridge)	19-21	Yodo River (Akagawa-Bridge)
3	Katsura River (Togetsukyo-Bridge)	22	Furu River
4	Uji River (Gokobashi-Bridge)	23	Hotani River
5	Kizu River (Gokobashi-Bridge)	24	Yasui River
6	Katsura River (Yamazaki)	25	Toba Treatment Plant
7	Yodo River (Kuzuha)	26	Kishoin Treatment Plant
8	Yodo River (Isojima; Murano)	27	Fusimi Treatment Plant
9	Yodo River (Isojima; Nakamiya)	28	Isida Treatment Plant
10-12	Yodo River (Hirakata Ohashi-Bridge)	29	Rakusei Treatment Plant
13-15	Yodo River (Koya)	30	Hokubu Treatment Plant
		31	Kohri Treatment Plant
		32	Kohzu Treatment Plant

採水は水深50cmの点で行い、困難な場合は表流水とした。また全地点の採水を1日で完了させ、試料は分析まで水中保存し、有機物関連指標は未処理のまま分析した。

2.3 天候と流量

宇治川、木津川の流量は御幸橋観測点、桂川は納所観測点、淀川本川は枚方大橋観測点での近畿地方建設局データを用いた。これらの値を **Table 2** に示した。その他の支川に関しては調査当日の1回の測定を用いているため代表性は低い。淀川本川の流量に比較して極端に小さいので、全体の傾向をみるには有効であると考え、これを用いた。わが国では渇水時の基底流量は $1 \text{ m}^3 \cdot \text{s}^{-1} \cdot (100 \text{ km}^2)^{-1}$ の地区が多いので、この値に流域面積を掛け合わせ、人間活動により排出される水量を加えて河川の流量を算出し、上記実測流量と比較したところおおそ一致をみた。

1984年10月調査時は雨天であり、調査当日まで約2週間降雨のない状態が続く、前日に淀川本川枚方大橋では月間最小流量値 $74 \text{ m}^3 \cdot \text{s}^{-1}$ を記録していた。降雨により流量は約 $40 \text{ m}^3 \cdot \text{s}^{-1}$ 増加し、 $115 \text{ m}^3 \cdot \text{s}^{-1}$ となった。1985年1月は晴天であり、淀川水系特有の冬期渇水時に当たっている。本川流量は $80 \sim 90 \text{ m}^3 \cdot \text{s}^{-1}$ で安定してい

Fig. 1 Location of sampling points

Table 2 Water flow rates

($\text{m}^3 \cdot \text{s}^{-1}$)

Date	Uji	Kizu	Katsura	Yodo
Oct.84	70	21	27	115
Jan.85	65	17	21	81
Apr.85	340	97	98	540

る時期であった。同年4月は春季の降雨が続いていたが、前日に枚方大橋で $600 \text{ m}^3 \cdot \text{s}^{-1}$ 、翌日に $500 \text{ m}^3 \cdot \text{s}^{-1}$ を記録した。降雨時のピーク流量を過ぎているとはいえず、大流量での調査となった。

3. 分析方法

3.1 TOX 生成能・THM 生成能の分析方法

採取した検水を $\text{TOC} = 1 \sim 3 \text{ mg} \cdot \text{l}^{-1}$ となるように希釈し、その100mlをバイアル瓶に分取、1 M リン酸緩衝液で pH6.5 に調整後、塩素添加量が $10 \cdot (\text{NH}_4^+ - \text{N}) + 10 \text{ mg} \cdot \text{l}^{-1}$ になるように次亜塩素酸ナトリウム溶液を添加し密栓する。20℃恒温下で24時間放置したのち、塩素添加量の約3倍当量に相当するように亜硫酸

ナトリウム溶液を添加し、脱塩素を行い定量した。24時間放置後の残留塩素量はほぼ $5 \text{ mg} \cdot \text{l}^{-1}$ 以下であった。また、塩素添加量を $200 \text{ mg} \cdot \text{l}^{-1}$ 、放置時間を72時間に変更した場合の定量も行ったが、ここでは結果は表示していない。

TOX は TOX 計で、THM はヘッド・スペース法により GC 測定を行った。TOX はハロゲン含有量を塩素換算した値であるが、 $\mu\text{g} \cdot \text{l}^{-1}$ で表示した。THM も同様に塩素換算値で表わした。

TOX 測定条件

- ・三菱化成製 TOX-10
- ・ O_2 ガス $200 \text{ ml} \cdot \text{min}^{-1}$ 、Ar ガス $250 \text{ ml} \cdot \text{min}^{-1}$
- ・ 850°C 燃焼

THM 測定条件

- ・島津製 GC-3BE 型ガスクロマトグラフ
- ・ECD
- ・カラム DC500, 3 m ガラスカラム

・カラム温度 60°C 、検出器温度 90°C

・ N_2 ガス $60 \text{ ml} \cdot \text{min}^{-1}$

3.2 他項目の分析方法

NH_4^+-N 、 NO_2^--N 、 NO_3^--N 、 $\text{PO}_4^{3-}-\text{P}$ 、 SiO_2-Si をテクニコン・オートアナライザーで、Na, K を原子吸光光度計、TOC を O・I・CORPORATION Model 524C で分析した。 KMnO_4 消費量は上水試験方法に従った。

4. 結果および考察

4.1 水系の TOX 生成能と流量

水系の TOX 生成能は、1984年10月では $76 \mu\text{g} \cdot \text{l}^{-1}$ (琵琶湖・竹生島沖) $\sim 1,236 \mu\text{g} \cdot \text{l}^{-1}$ (淀川本川流入支川・安居川)、1985年1月では $68 \mu\text{g} \cdot \text{l}^{-1}$ (桂川・渡月橋) $\sim 3,260 \mu\text{g} \cdot \text{l}^{-1}$ (淀川本川流入支川・穂谷川)、1985年4月では $112 \mu\text{g} \cdot \text{l}^{-1}$ (竹生島沖) $\sim 2,252 \mu\text{g} \cdot \text{l}^{-1}$ (宇治川流入支川・古川) の範囲にあった。主要地点の測定値を各指標とともに Table 3 に示す。

Table 3 Results of water qualities.

^a Refers to sampling points in Table 1.

Point No.	Date	NH_4^+-H	DIN ($\text{mg} \cdot \text{l}^{-1}$)	Na	SiO_2 -Si	TOC	KMnO_4 cons.	THMF _P	TOXF _P ($\mu\text{g} \cdot \text{l}^{-1}$)
1 ^a	Oct.84	0.03	0.05	13.3	0.46	1.2	7.36	20	76
	Jan.85	0.05	0.20	6.73	0.53	0.8	1.52	16	99
	Apr.85	0.03	0.18	5.61	0.56	2.6	3.36	14	112
2	Oct	0.03	0.06	13.3	1.27	2.7	9.08	36	167
	Jan	0.13	0.58	9.64	1.76	1.6	6.60	33	222
	Apr	0.03	0.20	6.34	0.97	—	8.80	—	—
3	Oct	0.51	1.01	13.3	4.95	4.5	19.1	27	—
	Jan	0.07	0.81	8.80	3.54	0.8	3.04	13	68
	Apr	0.05	0.59	3.62	4.83	0.8	3.68	—	—
4	Oct	0.52	1.04	18.2	2.04	8.3	16.9	65	572
	Jan	0.28	0.84	11.8	1.91	1.5	2.56	29	255
	Apr	0.12	0.52	7.05	1.62	2.0	8.00	30	220
5	Oct	0.28	1.39	14.5	6.24	2.4	10.2	41	217
	Jan	0.25	1.62	12.8	5.28	1.5	3.40	29	182
	Apr	0.07	1.50	6.43	5.59	1.5	8.08	37	226
6	Oct	4.26	5.22	35.1	4.15	13.6	32.7	151	868
	Jan	5.70	7.86	34.1	3.79	5.6	14.1	124	1008
	Apr	0.51	1.62	8.85	4.44	2.8	7.60	30	192
10	Oct	2.87	3.67	31.5	3.43	9.5	31.7	105	618
	Jan	1.71	3.03	22.3	2.84	3.4	8.44	50	354
	Apr	0.18	0.85	7.82	2.61	2.4	10.1	31	170
11	Oct	2.65	3.43	26.6	3.40	9.9	29.6	105	610
	Jan	1.65	2.77	20.4	2.84	3.0	9.80	51	370
	Apr	0.14	0.80	7.56	2.60	2.3	8.48	33	176
12	Oct	1.86	2.73	21.8	3.83	9.3	27.4	92	693
	Jan	1.82	2.89	19.9	3.26	3.5	8.32	62	410
	Apr	0.35	1.37	8.74	3.26	3.8	9.60	56	326

3 川の水質を比較するとき、木津川、宇治川、桂川の順に汚染の度合いが高くなると一般に考えられているが、4 月の場合は必ずしもこの順序に従うものではない。これは調査当日の流量が例外的に大きいことによっている。3 川の平均流量は1955~84年に渡る全平均値でみると、宇治川 $142\text{m}^3 \cdot \text{s}^{-1}$ 、木津川 $30\text{m}^3 \cdot \text{s}^{-1}$ 、桂川 $32\text{m}^3 \cdot \text{s}^{-1}$ であるから、4 月の流量はこの3倍に相当している。

また、10月は全般に水質が悪く、冬期渇水の影響を受けて水質の悪化した1月に比較しても、各測定値は高い値となっている。この10月の調査は、流量低下が続いた後の降雨時での採水となったため、降雨出水の影響(河川内での掃流による効果、雨水吐からの放流)を受け、試水中には懸濁物も多く認められた。従って、測定値は季節的な代表値にはなりにくいと考えられる。

水質はその時点での流量に大きく影響されているので、その出現頻度を求め、調査結果がどのような確率で生起するかを考えた。

1983, 84年の枚方大橋での流量データを基礎に Weibull plot を使い、各調査日の流量の出現頻度を超過確率で表現した¹¹⁾。その結果、10月が75~97%, 1月が88%, 4月が3~7%となる。10月は低水あるいは渇水、1月は低水、4月は洪水あるいは豊水流量に対応することとなる。ここでは残念ながら、平水流量時のデータが得られなかったが、水道水質を評価する時、低水流量時の結果を解析することは、むしろ好ましいともいえる。

4.2 流程方向の水質変化と取水点水質

各調査ごとに流程方向の TOX 生成能を Fig. 2 に表した。3 川合流点の右岸は桂川の水質を、左岸は宇治川の水質を表している。3 川合流後は混合拡散現象を伴い、左岸水質は増加傾向、右岸水質は減少傾向を示し、左岸はさらに流入中小支川の影響を受け悪化する。このため合流後10km 付近の枚方大橋で左右両岸の水質が逆転する。この典型的な例が渇水期の1月に強く現れている。

10月は枚方大橋下流で水質の全般的な低減が観測されているが、これは本川下流の淀川大堰閉鎖によって滞水域が広がり、河川の一部がプール化されたため、懸濁物の沈殿効果が促進されたものと考えられる。しかし、これを定常的な自浄作用とみなすことは難しいと思われる。

また、4月は前述の通り、3 川、本川ともに流量が大きく、このため全体的変化に乏しい。特に桂川では京都市内で排出される汚濁負荷の希釈効果が大きく、有機物指標では宇治・木津両河川と同レベルの水質と

Fig. 2 Level of TOXFP in Yodo River; — left, —·— right. sampling points are shown in Table 1

なっている。ただし、 NH_4^+-N では依然右岸が高く、人為汚染の影響が大きい。Table 3 をみればわかる通り、桂川は上流の渡月橋から3 川合流直前の山崎にかけて、すべての指標において大きな上昇が認められ、特に1月は著しい水質の悪化がみられる。この汚染源としては京都市内の工場排水、家庭排水、また、下水処理場放流水と推察される。

次に主要な上水の取水点の1月の水質を Table 4 に示した。取水点での TOX 生成能は $220 \sim 603 \mu\text{g} \cdot \text{l}^{-1}$ であり、全測定値で最小を示した桂川渡月橋の3~9倍となっている。Fig. 2 で明らかなように、枚方大橋下流の木津取水点(寝屋川市)で最大値をとった。また楠葉(大阪市)、磯島(枚方市)の取水点に対し、各3 川の寄与率を Na, SiO_2 から計算すると、楠葉で宇治川58%, 木津川42%, 桂川0%, 磯島でそれぞれ54%, 16%, 30%となり、下流の取水点ほど桂川の寄与率が

Table 4 Raw water qualities at water works (Jan.85)

Water works	NH ₄ ⁺ -N	DIN (mg · l ⁻¹)	Na	SiO ₂ -Si	TOC	KMnO ₄ cons.	THMFP (μg · l ⁻¹)	TOXFP
Kuzuha (Osaka city)	0.46	1.34	12.3	3.34	1.6	1.16	34	220
Murano (Osaka pre.)	0.89	1.78	15.9	2.47	2.2	5.72	43	289
Nakamiya (Hirakata city)	1.58	2.65	20.5	3.01	4.1	8.08	72	474
Koya (Neyagawa city)	2.06	3.32	22.3	3.48	3.4	7.92	60	603

高くなっている。

4.3 負荷量

Fig. 3 には DIN (無機性窒素の総和), Na, TOX 生成能の負荷量を示した。上段は合流直前の 3 川の各負荷, および 3 川合流後に流入する左岸支川の負荷の合計である。下段は淀川枚方大橋での負荷を表している。絶対量を比較すると, DIN, Na, TOX 生成能のいずれにおいても, 他 2 川に比べて桂川の負荷量は調査日や流量によらず安定している。TOX 生成能で約 $1.8t \cdot d^{-1}$, Na で約 $70t \cdot d^{-1}$, DIN で約 $13t \cdot d^{-1}$ を示している。

Fig. 3 Mass balances of DIN, Na, TOXFP

すでに Table 2 に示した通り, 水質の方は宇治川, 木津川の変動は小さく, 桂川は変動が激しい。このことは宇治川, 木津川の負荷が基本的に自然要因で流量に比例して増加するのに対し, 桂川が人為要因であって流量によらぬためである。Table 5 に示した下水処理場についての結果などを用いて, 桂川の TOX 生成能 $1,800kg \cdot d^{-1}$ の負荷の内訳を考えると, 大雑把に上流からの寄与が $200kg \cdot d^{-1}$, 鳥羽処理場 $700kg \cdot d^{-1}$, 吉祥院処理場, 洛西浄化センターがそれぞれ $100kg \cdot d^{-1}$, $10kg \cdot d^{-1}$ で, 残り約 $800kg \cdot d^{-1}$ が下水道未整備地区の負荷, 都市の面負荷, および雨天時排出負荷の残留物などと考えられる。

4.4 TOX 生成能と他指標の相関

TOX 生成能と各指標, 特に有機物関連指標との間で相関を調べた。使用するデータ群を全測定値とすると, 中小支川の高い値により相関係数は見掛け上著しく高くなるため, 淀川本川での測定値に限定することにした。相関係数を Table 6, TOX 生成能と各指標との比 (回帰直線の傾き) を Table 7 に示した。

10月は測定値が広範に分布するため, 他月と比較して高相関を示している。がしかし, 月ごとにみれば TOC, KMnO₄消費量との相関は変動しており, 同様に回帰式の傾きも変化している。この変動の原因としては, これらの有機物指標による測定値の偏差が小さく, TOX 生成能の変化量に必ずしも連動しないことが挙げられ, またこの背景には, 本川流量の大小といった物理的要因や TOC, KMnO₄消費量の測定精度の低さも関連していると考えられる。TOX 生成能と THM 生成能との関係を Fig. 4 に示したが, THM 生成能との相関は安定的であり, 淀川本川の場合, THM 生成能は TOX 生成能のおよそ 15% に相当することが分かる。図中に示した全データを用いる時, 相関係数は 0.9126 であった。

4.5 水道水源としての水質の評価と改善策

水道水源としての淀川の水質は, 最低値は最も水量の多い宇治川の水質で規定され, 最高値は宇治川・木

Table 5 Effluent water qualities in municipal sewage treatment plants ; Toba has two effluent points ;
* west, ** east

Municipal sewage treatment plants		Date	NH ₄ ⁺ -N	DIN (mg · l ⁻¹)	Na	SiO ₂ -Si	TOC	KMnO ₄ cons.	TOXFP (μg · l ⁻¹)
Toba	Kyoto	Jun.85	10.4	12.0	74.3	6.18	10.8	54.4	761*
		Nov.86	15.0	—	—	—	16.9	—	1,712**
			11.0	—	—	—	11.9	—	876*
Kishoin	-city	Jun.85	11.9	18.7	106	7.47	12.9	48.4	727
		Nov.86	11.4	—	—	—	15.4	—	976
Fusimi		Jun.85	2.78	7.36	77.6	8.73	17.6	48.8	1,105
Isida		Jun.85	0.25	9.68	146	4.83	10.2	23.2	796
Hokubu Kohri	Hirakata -city	May.85	11.9	17.2	49.5	6.38	8.3	25.5	796
		May.85	21.3	22.4	40.0	5.34	9.6	32.6	1,312
Kohzu	Katano -city	May.85	30.5	30.6	50.8	16.6	26.0	67.2	2,114

Fig. 4 Relationship between TOXFP and THMFP

津川の水と桂川や淀川左岸の支川の汚水がどの程度混合するかで規定されている。

TOX 生成能でみると、宇治川の水質は年間を通して $200\mu\text{g}\cdot\text{l}^{-1}$ 近辺である。つまり淀川の TOX 生成能はこれ以下にはならない。通常の大河川の上流部の水質は TOX 生成能で $100\mu\text{g}\cdot\text{l}^{-1}$ 以下であるが、宇治川は琵琶湖から流れるため、すでに 2 倍以上の $200\mu\text{g}\cdot\text{l}^{-1}$ になっていることがまず淀川の水質悪化の要因である。

一方、桂川の水質は宇治川・木津川の数倍高いが、これに関しては、すでに述べたように京都市内の下水

Table 6 Coefficients of correlations between TOXFP and other organic index

	Date	TOC	n	KMnO ₄	n	THMFP	n
TOXFP	Oct.84	0.9693	24	0.8937	24	0.9542	24
	Jan.85	0.7669	22	0.6634	22	0.8014	23
	Apr.85	0.4578	23	-0.0604	22	0.7595	23

Table 7 Slope values of liner regression curves

Date	TOXFP	TOXFP	THMFP
	TOC (-)	KMnO ₄ (-)	TOXFP (-)
Oct.84	0.060	0.020	0.152
Jan.85	0.107	0.031	0.081
Apr.85	0.036	-0.002	0.136

処理場放流水の寄与が大きい。

従って、3 川合流後の淀川本川における上水水質を評価するためには、流下過程での横方向拡散について検討を行う必要がある。我々はこの点に関する研究も行ったが、この報告は別に予定している。

1986 年 1 月の場合には、枚方大橋では左右両岸の差が認められなくなり、 $400\mu\text{g}\cdot\text{l}^{-1}$ になっている。本川左岸流入支川は非常に汚濁しているが、流量が少ないために負荷量はさほど大きくはない。しかし、左岸に取水点が位置している一方で左岸から汚水が流入しているため、やはり渇水期の水道水質に与えている影響は看過できない。1 月の場合、木屋取水点で $600\mu\text{g}\cdot\text{l}^{-1}$ に急増しているのはこの理由に基づいている。極めて流量が多く、桂川の影響がほとんど認められなかった 1985 年 4 月においても、磯島より下流で支川の影響が認められる。

中西・鈴木等¹⁰⁾の結果によれば、利根川水系において、前塩素一急速汚過の処理法の場合、浄水の TOX の収束値は原水の TOX 生成能の0.6～1 倍であった。原水が汚濁している場合、この値は小さくなることが分かっているので、淀川の場合0.6だとすれば、淀川水系の水道水の TOX 値は120～360 $\mu\text{g}\cdot\text{l}^{-1}$ の範囲と推定できる。1986年7月27日の浄水の TOX 測定結果は、枚方市(中宮浄水場)225 $\mu\text{g}\cdot\text{l}^{-1}$ 、大阪市(柴島浄水場)185 $\mu\text{g}\cdot\text{l}^{-1}$ で上記の範囲であった。TOX の値の大きさから健康への影響を直接評価するための情報は今のところ得られていない。しかし、少なくとも以下の3つのことが明らかになっている。TOX の約15%は THM 類であり(浄水場での配水より給水栓水の方が高いことが考慮されている)、それらには発癌性が認められること¹²⁾、さらに THM とほぼ同量程度のクロロ酢酸やクロラールが含まれており¹³⁾、クロロ酢酸には変異原性がなくクロラールには弱い変異原性があると考えられていること¹⁴⁾、最後に特に不揮発成分にかなり強い変異原性が認められることである³⁾。変異原性試験にかけられている TOX の量は、水道水中に含まれている TOX の30～40%である。この中に THM やクロラール・クロロ酢酸が全く含まれていないとすると、7割、クロロ酢酸がかなり含まれているとすれば、5割にはリスク評価の何らかの手掛かりが得られている。残りについてはなんの手掛かりもない。こういう限界を踏まえた上で、以下リスクの評価を試みる。

著者等の計算では、クロロホルムの発癌リスクは25 $\mu\text{g}\cdot\text{l}^{-1}$ で 10^{-5} であり¹⁵⁾、他の THM もクロロホルムと同じと考えている。THM の濃度は、クロロホルムの濃度に換算して20～60 $\mu\text{g}\cdot\text{l}^{-1}$ であるから、その発癌リスクは $(0.8\sim2.4)\cdot10^{-5}$ になる。

一方大月・本木の研究により、処理直後の浄水の TOX の値と変異原性強度との間には直線関係が存在することが分かっている¹⁶⁾。淀川水系について上記の関係は確かめられておらず、かつ TOX と変異原性が同時に測定された結果もただ一回しかないが、それを元に計算すると、TOX100 $\mu\text{g}\cdot\text{l}^{-1}$ は TA100を用いた Ames test で560net rev. $\cdot\text{l}^{-1}$ となり、陽性対照に用いられた AF2 の15ng に相当する。従って、変異原性強度を AF2 換算値で表せば、淀川水系の水道水 1 l の変異原性は18～54ng に相当する。人の摂取量に換算すれば 1 人 1 日当り、この 2 倍量になる。

THM だけを考慮しても、 10^{-5} にリスクを抑えるには、浄水の TOX は145 $\mu\text{g}\cdot\text{l}^{-1}$ 以下で、TOX 生成能は240 $\mu\text{g}\cdot\text{l}^{-1}$ 以下でなければならない。この値は宇治川の水質に近く、常時この値を満足できる浄水場は、最上流にある楠葉浄水場ぐらいである。たとえ桂川や支川

の水質が非常に浄化されても、その他の浄水場においては240 $\mu\text{g}\cdot\text{l}^{-1}$ 以下に保つことは難しいと思われ、淀川水系においては、塩素を大量に投入する現在の浄水法を再検討することが最優先の課題であると考えられる。

以上我々は、TOX および TOX 生成能という水質指標を用いて議論してきたが、どこでも TOX が測定できる訳ではないので、KMnO₄消費量との関連について言及したい。4.4で述べたように、TOX 生成能と KMnO₄消費量との間にきれいな相関が成立する訳ではないが、非常に大雑把に捉えると、リスク評価の点から要請された TOX 生成能240 $\mu\text{g}\cdot\text{l}^{-1}$ という基準値は KMnO₄消費量では4～5 $\text{mg}\cdot\text{l}^{-1}$ に相当する。

4.6 水質改善の可能性

次に、原水の水質改善の可能性について考える。

琵琶湖の北湖については、TOX 生成能は100 $\mu\text{g}\cdot\text{l}^{-1}$ に近いが、南湖では150～200 $\mu\text{g}\cdot\text{l}^{-1}$ まで上がり、宇治川の洗堰から3川合流地点までの間にはあまり上昇しない。木津川も合流地点までの間には、さほど上昇しないので、琵琶湖の水質が変わらないとすれば、桂川と淀川左岸の支川の水質改善の可能性が残されている。桂川流域の下水道普及率は、1982年現在では人口の63%、淀川左岸流域では35%である。未普及区の下水処理対策をとることは極めて重要ではあるが、下水道を普及させるには非常に時間がかかり、10年以内での劇的な効果を期待することはできない。しかし、現存する下水処理場の水質は、Table 5 に示したごとく通常の下処理場に比べて非常に悪く、処理を改善することによって、少なくとも桂川流域で600 $\text{kg}\cdot\text{d}^{-1}$ 、33%の負荷を減らすことができる。淀川左岸流域では20 $\text{kg}\cdot\text{d}^{-1}$ 、36%減らすことができる。これによって、TOX 生成能で200～600 $\mu\text{g}\cdot\text{l}^{-1}$ と推定されていた淀川の水質は、200～500 $\mu\text{g}\cdot\text{l}^{-1}$ の範囲になる。現在この地区には、いくつかの流域下水道計画があり、すでに着工されているが、それらの効果については次報に予定している。

原水の取水位置を変えることは一般に難しいが、枚方市だけは取水位置の変更が望まれる。枚方市の取水位置は、枚方市の下水処理場放流水が大量に流入している利根川の下流にある。これを1 km 上流の大阪府村野浄水場の磯島取水口からの分水という形にすれば、他の水利権者に何の損害も与えることなく、良質の水が得られる。ちなみに、1984年1月における TOX 生成能は村野浄水場289 $\mu\text{g}\cdot\text{l}^{-1}$ 、中宮浄水場(枚方市)474 $\mu\text{g}\cdot\text{l}^{-1}$ であった。

5. ま と め

琵琶湖・淀川水系を TOX 生成能を中心として調査分析した結果、次のようなことが明らかになった。

- (1) 宇治川・木津川・桂川の 3 川のうちでは、桂川の負荷量が流量によらず最も安定しており、桂川の TOX 生成能の負荷量のうち約 45% は下水処理場由来している。
- (2) 淀川の水質は宇治・木津・桂の 3 川の混合希釈過程で主として決定されているが、上水取水口の集中する淀川本川の水質悪化の原因に、左岸流入支川の汚濁も荷担している。支川の影響は枚方大橋付近およびその下流で顕著である。
- (3) 淀川本川において、THM 生成能は TOX 生成能の約 15% に相当する。
- (4) 人体の健康への影響を考慮すると、浄水の TOX は $145\mu\text{g}\cdot\text{l}^{-1}$ 、原水の TOX 生成能は $240\mu\text{g}\cdot\text{l}^{-1}$ 以下が望ましい。この基準を満足しているのは、最上流の大阪市楠葉浄水場のみである。
- (5) 水質改善の可能性として下水処理場における処理改善が挙げられ、これにより淀川本川の TOX 生成能は $500\mu\text{g}\cdot\text{l}^{-1}$ 以下にすることができると考えられる。枚方市の場合は上水の取水位置を変更することが望ましい。
- (6) 汚水の流入を完全に防止しても、淀川水系の TOX 生成能を $240\mu\text{g}\cdot\text{l}^{-1}$ 以下に維持することは困難であり、浄水場での塩素処理法の見直しが同時に望まれる。

本研究は、琵琶湖・淀川汚染総合調査団を中心に展開した研究の一部である。調査団主メンバーは、中南元・山田国広（阪大）、石田紀夫（京大）、五百井正樹・北田忠義・建部渉・串部宏之（大阪市大）、讃岐田訓（神戸大）である。THM の測定は中南・石田両氏、 KMnO_4 消費量・ NH_4^+-N 以下無機イオンの測定は大阪市大の各氏、変異原性試験は讃岐田氏によるものである。紙面を借りて感謝の意を表したい。

（原稿受理 昭和 62 年 9 月 1 日）

文 献

- 1) W.E. Coleman, J.W. Munch, W.H. Kaylor, R.P. Streicher, H.P. Ringhand, and J.R. Meier (1984) Gas Chromatography/Mass Spectrophysics Analysis of Mutagenic Extracts of Aqueous Chlorinated Humic Acid. A Comparison of the Byproducts to Drinking Water Contaminants, *Environ. Sci. Technol.*, **18**, 674-681.
- 2) R.J. Bull, M. Robinson, J.R. Meier, and J. Stober (1982) Use of Biological Assay System to Assess the Relative Carcinogenic Hazards of Disinfection Byproducts, *Environmental Health Perspectives*, **46**, 215-227.
- 3) J.C. Loper, D.R. Lang, R.S. Schoeny, B.B. Richmond, P.M. Gallagher, C.C. Smith (1978) Residue Organic Mixtures from Drinking Water show In Vitro Mutagenic and Transforming Activity, *Journal of Toxicology and Environmental Health*, **4**, 919-938.
- 4) 三瀬貞, 玉井義弘 (1973) 淀川水系における河川水質からみた汚濁負荷量の変動, 水道協会雑誌, **467**, 2-15.
- 5) 淀川水質協議会 (1970) 淀川水系の渇水期における原水水質と浄水処理, 水道協会雑誌, **435**, 13-38.
- 6) 南部祥一 (1960) 河川水中の自浄作用と汚染度分布に関する研究 学位論文.
- 7) Stephan J. Freischacker, and Stephen J. Randtke (1983) Formation of organic chlorine in public water supplies, *J. Am. Water Works Assoc.*, **75**, 132-138.
- 8) 浦野紘平, 三谷真人, 芳賀伸之 (1983) 水中の全有機ハロゲン量及び揮発性ハロゲン量の測定方法, 水道協会雑誌, **586**, 29-41.
- 9) 伊藤和広, 相沢貴子, 羽布津博明, 真柄泰基 (1984) 河川水の全有機ハロゲン (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, **599**, 14-21.
- 10) 鈴木規之 (1985) TOX Potential の指標化に関する研究, 東京大学修士論文.
- 11) 土木学会 (1985) 水理公式集.
- 12) IARC monograph (1979) On the evaluation of the carcinogenic risk of chemicals to man, chloroform and carbon tetrachloride, **20**, 401-427.
- 13) 大丸健之助, 大田耽三, 松原英隆 (1985) 塩素処理水中の不揮発性有機ハロゲン化合物について, 第 19 回水質汚濁学会講演集, 207.
- 14) L. Waskell (1978) A Study of the Mutagenicity of Anesthetics and their Metabolites, *Mutation Res.*, **57**, 141-153.
- 15) 中西準子 (1986) 飲み水と発がん性 公害研究, **15**, 22-29.
- 16) 大月孝之, 本木唯夫 (1986) 変異原性指標による飲料水の評価に関する研究, 東京大学卒業論文.

TOX 生成能による淀川水系の水質評価

木藤 耕一* 中西 準子*

* 東京大学工学部都市工学科

〈水質汚濁研究 Vol.10 No.12 (1987) pp.749~756〉

本研究は淀川水系での TOX 生成能の挙動を調査し、水道水源としての水質評価を行ったものである。淀川の水質は主に宇治・木津・桂川の混合拡散で決定されており、TOX 生成能は $200\sim 600\mu\text{g}\cdot\text{l}^{-1}$ であった。人為汚染の著しい桂川の負荷量が流量によらず安定しており、 $1,800\text{kg}\cdot\text{d}^{-1}$ であった。この負荷量の45%は下水処理場に由来している。淀川左岸の水質汚濁には桂川の他に左岸流入汚濁支川も原因しており、浄水水質に影響を与えている。

淀川において THM 生成能は TOX 生成能の15%であった。クロロホルムの発癌リスクと水道水の変異原性強度を考慮するとき、浄水の TOX は $145\mu\text{g}\cdot\text{l}^{-1}$ 、原水の TOX 生成能は $240\mu\text{g}\cdot\text{l}^{-1}$ 以下が望ましい。水質改善には下水処理の処理改善が最も効果があり、淀川の TOX 生成能を $500\mu\text{g}\cdot\text{l}^{-1}$ 以下に抑えることが可能である。同時に浄水場での塩素処理の見直しも必要である。