

多摩川における有機汚濁物質の起源と削減に関する研究 (その2) —下水処理場におけるトリハロメタン、TOX生成物質の排出実態及び処理条件との関係 (第1報) —

嶋 津 暉 之 亀 井 正*
(*埼玉工業大学)

要 旨

多摩川流域の6下水処理場を対象として、処理水のTHMFP、TOXFPについて、その排出実態及び処理条件との関係を調査した結果、主に次のことが明らかとなった。

- ① 下水処理水のTHMFPは40~210 $\mu\text{g}/\ell$ の変動を示したが、大半は40~80 $\mu\text{g}/\ell$ に入っており、多摩川の調布堰河川水のTHMFPと同程度のものが多かった。一方、下水処理水のTOXFPは200~1100 $\mu\text{g}/\ell$ の範囲にあって、調布堰河川水のTOXFPの2~4倍の値を示した。
- ② THMFP/TOXFPの比は0.05~0.25と、変動が大きかった。その変動を大きくする要因の一つとして、生成効率の高いブロム系THMFPの存在がある。試料中のBrイオンが高いと、塩素添加により、ブロム系THMFPが多く生成され、THMFPの値が大きくなる。
- ③ TOXFPと相関が高い有機物質の指標は、COD、TOC、E₂₅₄であり、BODとの相関は低かった。これは、難分解性で、且つ溶解性の有機物質がTOXFPの起因物質の中心を占めていることを意味している。また、THMFPはいずれの有機物指標とも相関があまり高くなかった。
- ④ 下水への地下水・雨水の混入率が処理水のTOXFPに影響している傾向がみられたが、TOXFPにはそれだけでは説明できない大きな変動がある。その変動要因として処理条件との関係を検討したが、今回の調査ではその関係を裏付ける十分なデータは得られなかった。

Study on Origin and Reduction of Organic Pollution Substances in Tama-gawa (2)

— Actual Situations of Discharge of Trihalomethane and TOX Formation Substances, and Relationship between Them and Treatment Conditions in Sewage Disposal Plants (First Report) —

Teruyuki Shimazu and Tadashi Kamei *

*Saitama Institute of Technology

Summary

By investigating the actual situations of the discharge of trihalomethane and TOX formation substances, and the relationship between them and treatment conditions in 6 sewage disposal plants in the basin of Tama-gawa, the following results were obtained.

- (1) THMFP in treated sewage water showed a variation of 40 ~210 $\mu\text{g}/\ell$, but most of them were between 40~80 $\mu\text{g}/\ell$ and of similar degree as Denenchofu-seki river water of Tama-gawa. On the other hand, TOXFP in treated sewage water showed a variation of 200~1100 $\mu\text{g}/\ell$, which was 2~4 times as dense as TOXFP of Denenchofu-seki river water.
- (2) The ratio of THMFP to TOXFP turned out to be 0.05~0.25, showing a great variation. One of the factors caused this great variation was THM including bromine, which was easily formed. When the value

of Br ion in the samples was high, a lot of THM including Br was considered to be formed by adding chlorine, and the value of THMFP increased.

(3) The indices of organic substances highly correlated with TOXFP were COD, TOC and E_{254} , while BOD turned out to be lowly correlated. This meant that irresolvable and soluble organic substances formed TOX. It was also found out that THMFP was not highly correlated with any indices of organic substances.

(4) It turned out that the mixing ratio of underground water and rain water into sewage had a tendency to influence TOXFP in treated sewage water, but TOXFP had a great variation that could not be accounted for only by that reason. Although the relationship between TOXFP and the treatment conditions of plants was considered to be a factor causing the great variation, enough data were not obtained in this investigation, to support this hypothesis.

1 はじめに

東京都水辺環境保全計画では、多摩川の田園調布堰（以下、「調布堰」という。）で水道3級の環境基準BOD $3\text{mg}/\ell$ （B類型）の達成をめざし、2000年に水道原水としての水質を確保できるよう、施策を展開することになっている。この水道原水の水質項目として重要なものに、トリハロメタン生成能がある。これは、水道原水として取水された場合、浄水場で加える塩素と反応してトリハロメタンを生成する有機物質の指標である。1993年に、二つの水道水源水質保全法、すなわち、「水道原水水質保全事業の実施に関する法律」と「特定水道利水障害の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」が制定され、水道原水中のトリハロメタン生成能の削減を主目的にして、水道源地域において水質改善事業を促進し、排水規制の強化を進めることになった。このように、水道原水として良好な水質を確保するため、河川水等におけるトリハロメタン生成能の削減が今後の重要な課題となってきている。なお、トリハロメタンは水道浄水場の塩素注入で生成される様々な有機ハロゲン物質の中の一部であるので、トリハロメタン生成能を含めた全有機ハロゲン（TOX）生成能の検討も必要と考えられる。

前報の研究により、多摩川調布堰の河川水においてトリハロメタン生成能、TOX生成能を示す有機物質の主たる排出源は下水処理場と推測されるので、今年度は多摩川流域の下水処理場を対象として、トリハロメタン・TOX生成物質の排出の実態を調査するとともに、それらの排出濃度と各処理場の処理条件との関係について検討を行った。その調査と検討の結果を報告する。

なお、下水処理場においてトリハロメタン等の生成物質を削減していくためには、現在の処理施設の改善と高度処理の導入という二つの角度からの検討が必要である。今回の調査と検討は前者を念頭においたもので、後者については別途、トリハロメタン・TOX生成物質等、有機物質の除去特性を明らかにするため、高度処理技術による除去実験を行った。その結果は（その3）で報告する。

2 方法

(1) 調査対象

多摩川流域の6下水処理場を調査対象とした。そのうち、3処理場は東京都の流域下水処理場、残りの3処理場は市の単独処理場である。市の1処理場は二つの処理施設に分かれているので、調査対象は7施設である。市の3処理場は処理場内部の調査も行ったが、都の3処理場については今回は出口のみの調査である。

(2) 調査の方法

各処理場の処理水を採取して、トリハロメタン生成能（THMFP）、TOX生成能（TOXFP）の他に、BOD、COD、TOC、SS、T-N、 $\text{NH}_4\text{-N}$ 、 $\text{N O}_2\text{-N}$ 、 $\text{NO}_3\text{-N}$ 、塩化物イオン（Cl）、硫酸イオン（ SO_4 ）等を分析し、THMFP、TOXFPの排出の実態を把握するとともに、生成能と各水質項目との関係を解析した。

更に、市の3処理場については、ばっ気槽の混合液を採取してMLSS等を分析するとともに、処理水量、空気吹込量等を調査して、生成能と処理条件との関係を検討した。また、A市処理場については自動採水器により

処理水を時間別に24時間採取して、生成能等の時間変化を調べた。

(3) 分析の方法

BOD、COD等の一般的な水質項目はJISに準ずる方法、MLSSは下水試験方法によって分析し、 E_{254} (254nm 紫外部吸光度) は1cmセルで測定した。

THMFPおよびTOXFPの分析は次の手順により行った。

ア 試料のろ過

微生物や浮遊物質を取り除いて試料の長期保存を可能にするため、採取した試料をまずグラスフィルターGFC (孔径 $1.2\mu\text{m}$) で、次にメンブレンフィルター (孔径 $0.45\mu\text{m}$) でろ過して、冷蔵保管し、生成能の分析試料とした。ただし、比較のため、一部の試料については非ろ過試料の生成能も分析した。

イ 塩素化

希釈後の試料のTOCが $2\sim 3\text{mg}/\ell$ となるように、試料を蒸留水で希釈し、希釈した試料のpHが 7 ± 0.2 となるように硫酸 (1+40) とNaOH (0.1N) で調整した。調整後の試料を10mlずつ三つにおけ、それぞれに有効塩素 $2\text{g}/\ell$ のNaClO溶液を段階的に添加して密閉し、 20°C の恒温槽に1時間静置した。NaClO溶液の添加量は、次式により求められる値に0、2、 $4\text{mg}/\ell$ をそれぞれ加えた値とした (試料中の塩素濃度で表示)。

$$\text{NH}_4\text{-N}\times 8.4 + \text{NO}_2\text{-N}\times 5.2 + 5\text{mg}/\ell$$

3段階の試料について1時間後の残留塩素濃度をDPD法で測定し、その結果から遊離塩素が $1\text{mg}/\ell$ 残留する塩素添加濃度を回帰直線により求めた。次に、この値に1、3、 $5\text{mg}/\ell$ 加算した塩素添加濃度に見合う液量のNaClO溶液をpH調整済みの試料40mlにそれぞれ添加して3段階の測定試料をつくり、恒温槽に24時間、静置した。24時間後の測定試料を残留塩素測定試料10mlと生成能測定試料30mlに分け、前者の残留塩素濃度をDPD法によって測定した。なお、DPD法については試料10mlにリン酸緩衝液を0.5ml、DPD試薬を0.1mg加え、静かに振り混ぜ、1分以内に分光光度計により553nmの吸光度を測定し、標準液の吸光度と比較した。

以上の手順の基本的なところは、環境庁水質保全局通達「特定水道利水障害の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の施行について」(平成6年7月14日)を参考にした。

ウ トリハロメタンの測定

24時間後の試料30mlに20%Na₂SO₃溶液10 $\mu\ell$ 、(1+10)リン酸100 $\mu\ell$ を添加して、塩素化等の反応を停止した。この試料10mlを取ってn-ペンタンを2ml加え、密閉した後、約30秒間振り混ぜて静置した。そのn-ペンタン部をバイアルびんに移して、ガスクロマトグラフィにより、トリハロメタンの4成分CHCl₃、CHCl₂Br、CHClBr₂、CHBr₃を測定した。それぞれの測定値に希釈率と水ペンタン比5倍を乗じて、トリハロメタン濃度を求めた。ガスクロマトグラフィの測定条件は次のとおりである。

充填剤DB-5、注入量2 $\mu\ell$ 、注入口 150°C 、検出口 200°C 、カラム： $40\sim 150^\circ\text{C}$ の2段階昇温、注入法：スプリットレス法、キャリアガス量50ml/分

エ TOXの測定

24時間後の反応停止試料20mlを使って三菱化成製のTOX計により、TOX濃度を測定し、その値に希釈率を乗じた。

オ THMFP、TOXFPの計算

24時間後の残留塩素濃度をX軸、トリハロメタン測定値をY軸に取り、回帰直線から残留塩素濃度 $2\text{mg}/\ell$ のトリハロメタン濃度を求め、その値をTHMFPとした。TOXについても同様に残留塩素 $2\text{mg}/\ell$ のTOX濃度をTOXFPとした。

なお、前記の環境庁通達では残留塩素 $1\sim 2\text{mg}/\ell$ のトリハロメタン測定値をTHMFPとすることになっているが、残留塩素 $1\text{mg}/\ell$ と $2\text{mg}/\ell$ とではTHMFPに2割以上の差が生じることもあるので、 $2\text{mg}/\ell$ に統一することにした。

3 結果と考察

(1) 処理水のTHMFPとTOXFPの予備的な検討

ア 非ろ過水とろ過水の生成能

各処理場処理水について非ろ過水のTHMFPとろ過水のTHMFPの関係を図1(1)、TOXFPについての同様の関係を同図(2)に示す。参考のため、非ろ過水のBODとろ過水のBODの関係を同図(3)、CODについての同様の関係を同図(4)に示す。

BODは非ろ過水とろ過水の差が大きく、溶解性成分の割合が3割以下であることが多い。処理水のBODを主に構成しているのは浮遊性成分である。CODは非ろ

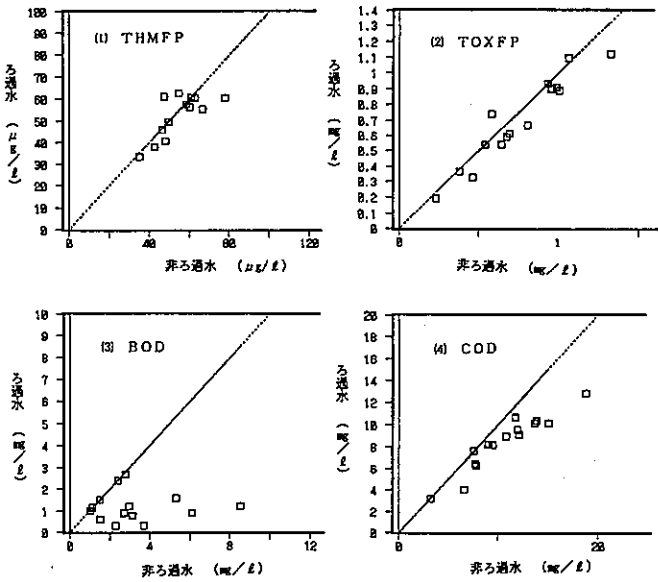


図1 非ろ過水とろ過水の関係

過水とろ過水の差が小さい。溶解性成分の割合が高く、8割以上を占めている。一方、THMFP、TOXFPの場合は非ろ過水とろ過水の差がCODより更に小さく、溶解性成分が概ね9割以上を占めている。

非ろ過水の場合、冷蔵保全しておいても微生物による分解が徐々に進むので、生成能の測定を採水後、すみや

かに行う必要があるが、実際には手間のかかる生成能の測定まで多少の日数を要することが多い。また、冷凍保存の場合も凍結と再溶解の過程で有機物質の変質が進むことがある。これに対して、ろ過水は、グラスフィルターとメンブレンフィルターでろ過して微生物を取り除いたものであるから、試料の長期保存が可能である。非ろ過水とろ過水の生成能の差は非常に小さく、生成能をもつ物質のほとんどは溶解性成分である。そこで、以下の研究ではろ過水の生成能で対象試料の生成能を表すことにした。

イ 生成能の時間変動

A市処理施設の処理水についてTHMFP (Cl量換算値) とTOXFPの時間変動を調査した結果を図2(1)に示す。また、参考のため、BOD、COD、SSの時間変動を同図(2)、T-N、NH₄-N、NO_x-Nの時間変動を同図(3)、流入水量の時間変動を同図(4)に示す。

この測定例は晴天日におけるものであるが、それでも、同図(4)のとおり、流入水量の時間変動が大きく、最大は最小の2.5倍もある。この流入水量の変動幅は他の処理場でも一般に見られる大きさである。ほとんどの下水処理場は流入水量の調整槽を持たないため、流入水量の時

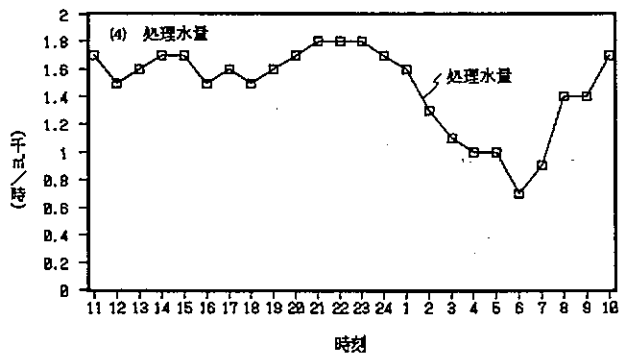
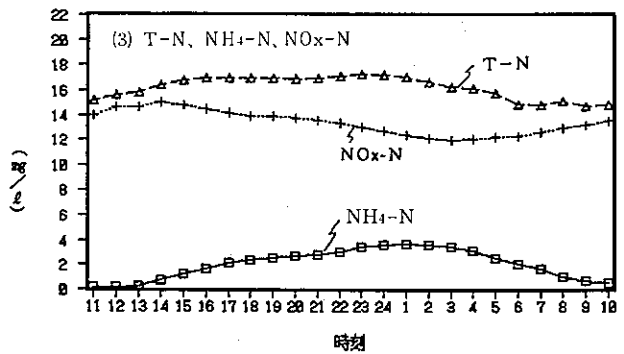
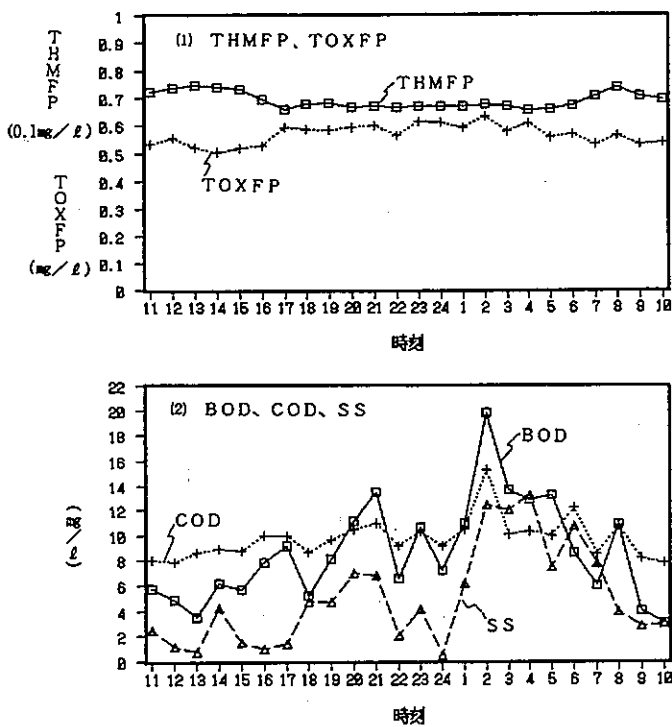


図2 下水処理水の24時間変化

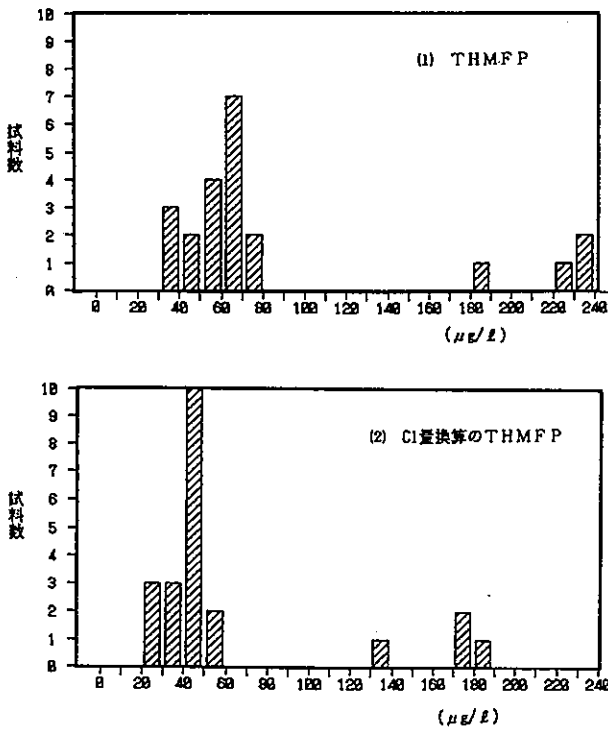


図3 処理水のTHMFPの頻度分布

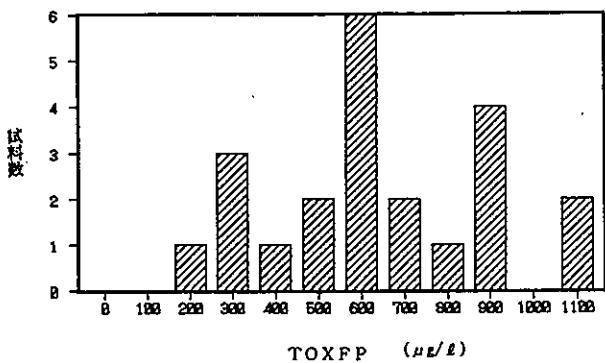


図4 処理水のTOXFPの頻度分布

間変動の影響を受けて処理水質が大きく変動することがある。

この例では変動の大きい水質項目はBODとNH₄-N、次いで、CODであり、T-Nの変動は小さい。BODの変動が大きいのは、夜間を中心に第2沈殿池からのSSの多少の越流があって、その結果、浮遊性成分の割合の高いBODが上昇したことによる。CODの上昇も同様だが、BODと比べて浮遊性成分の割合が低いため、上昇率が小さい。一方、溶解性成分のNH₄-Nの上昇はばっ気槽の硝化能を超えた窒素成分が流出したことを示している。すなわち、各処理施設のばっ気槽の硝化能に

は各時期の処理条件による上限があるので、流入水量および流入窒素濃度が高まると、その硝化能の上限を超える分のほとんどはNH₄-Nの形態で流出する。T-Nの場合はNH₄-Nの硝化と、その硝化で生成されたNO_x-Nの還元(脱窒)という二つの工程を経てT-Nが除去されるが、硝化量に比べて脱窒量が小さいため、T-NにはNH₄-Nほどの変動幅がない。

これに対して、THMFPとTOXFPの変動幅は小さい。変動係数はBODが0.46、NH₄-Nが0.58、CODが0.16、T-Nが0.06で、一方、THMFPの変動係数は0.05、TOXFPのそれは0.06である。ただし、NH₄-Nの変動係数は硝化がよく進む処理施設の場合の値であって、硝化の進行率が低い処理施設の場合は、ベースラインが上がるので、NH₄-Nの変動係数が小さくなる。THMFP、TOXFPの変動係数はT-Nと同程度であるが、BOD、COD、NH₄-Nに比べてかなり小さい。

THMFP、TOXFPの時間変動が小さいのは、溶解性成分がほとんどを占めているので、SS越流の影響がないこと、NH₄-Nとは異なり、除去能が処理水質にそのまま反映しないことを示しているが、THMFPやTOXFPの除去機構は現段階では明らかではない。

このようにTHMFPとTOXFPの時間変動が小さいので、以下の研究ではスポット採水による試料の生成能の測定値で、各処理場処理水の生成能を代表できるものとした。

(2) 処理水のTHMFPとTOXFP

ア THMFPとTOXFPの分布

7処理施設全体についての下処理水(ろ過水)のTHMFP、TOXFPの頻度分布を図3、4に示す。トリハロメタンの値は4成分の合計で示すこととされているが、4成分を構成するClとBrは原子量がそれぞれ35.5と79.9という差があるので、4成分の分子量に大きな差が生じる。分子量は最小のCHCl₃が120、最大のChBr₃が253となり、4成分をそのまま合計することは必ずしも合理的とは言えない。表1の例に示すように、THMFPの値は同じであっても、4成分をCl量に換算して合計すると、20%以上の差が生じる。そこで、図3では(1)に4成分の合計値、(2)に4成分それぞれをCl量に換算して合計した値を示した。なお、TOXはCl量に換算した値で表示されている。

表1 THMFPの4成分の構成例

(単位 $\mu\text{g}/\ell$)

		CHCl_3	CHCl_2Br	CHClBr_2	CHBr_3	計
例1	THMFP	58	18	4	0	80
	Cl量換算値	52	12	2	0	66
例2	THMFP	21	26	26	7	80
	Cl量換算値	19	17	13	3	52

下水処理水のTHMFPは180~240 $\mu\text{g}/\ell$ の値を示すものが一部あるが、8割以上は40~80 $\mu\text{g}/\ell$ (中位数68 $\mu\text{g}/\ell$)に入っている。Cl量に換算したTHMFPの方は、8割以上が30~60 $\mu\text{g}/\ell$ (中位数52 $\mu\text{g}/\ell$)の範囲に入り、残りは140~190 $\mu\text{g}/\ell$ となっている。このように、処理水のTHMFPは一部が大きな偏りを示し、大半は大きなバラツキを示さないのが特徴である。昨年度、多摩川の調布堰河川水のTHMFPを2回測定した結果は60 $\mu\text{g}/\ell$ (Cl量換算値で40 $\mu\text{g}/\ell$)前後であった。これと比較すると、THMFPに関しては下水処理場処理水の多くは調布堰河川水と同程度である。その中位数は調布堰河川水の1.1倍 (Cl量換算値で1.3倍)である。

一方、下水処理水のTOXFPは200~1100 $\mu\text{g}/\ell$ (中位数608 $\mu\text{g}/\ell$)の間をほぼ一様に分布しており、THMFPのように一部がかけ離れて大きな値を示すことがなく、また、大半のデータが2倍程度の範囲におさまることもない。昨年度の調布堰河川水のTOXFP測定値は250 $\mu\text{g}/\ell$ 程度であったから、処理水のTOXFPは調布堰河川水の2~4倍の値 (中位数は2.4倍)を示している。

イ THMFPとTOXFPとの関係

下水処理水のTHMFP (Cl量換算値)とTOXFPの関係を図5に示す。上述のように、TOXFPは最小値に対して約5倍の範囲でほぼ一様にばらつくのに対して、THMFPは4データを除けば、2倍程度の範囲におさまっており、TOXFPが上昇しても、THMFPが増加しない傾向がみられる。THMFP/TOXFPは概ね0.05~0.20 (Cl量に換算しなければ、0.05~0.25)の範囲にあるが、一方、昨年度の調布堰河川水のTHMFP/TOXFPは0.2程度であり、下水処理水の大半は河川水に比べてこの比が小さい。

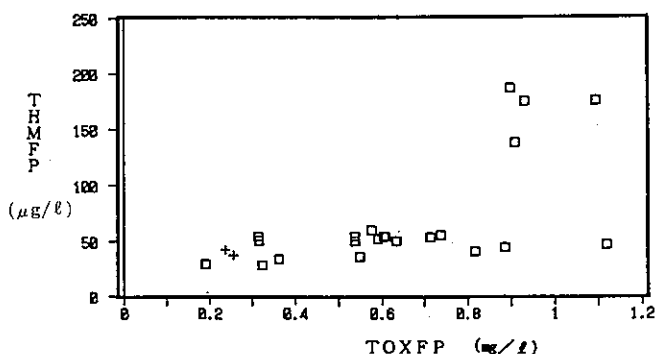


図5 処理水のTOXFPとTHMFPの関係 (THMFPはCl量換算値、+は調布堰河川水を示す)

このようなTHMFPとTOXFPの関係を引き起こす要因としてブrom系トリハロメタンの存在がある。試料にBrイオンが含まれている場合、塩素(Cl_2)を添加すると、Brイオンは Br_2 となり、ブrom系トリハロメタン、すなわち、 CHCl_2Br 、 CHClBr_2 、 CHBr_3 を生成する。 Br_2 によるブrom系トリハロメタンの生成効率は非常に高く、 Cl_2 に比べてはるかにトリハロメタンを生成しやすい。したがって、試料中のBrイオン濃度が高いと、THMFPが大きくなると推測される。

そこで、ブrom系THMFP/THMFPとTHMFP/TOXFPの関係をみたのが図6である。多少のばらつきがあるが、THMFP中のブrom系の割合が高まると、THMFP/TOXFPが上昇する傾向がみられる。前出の図3において、THMFPのうちの4データがかけ離れて高い値を示していたのは、ブrom系の割合が高く、同時にTOXFPの高い条件が重なったからであると説明することができる。

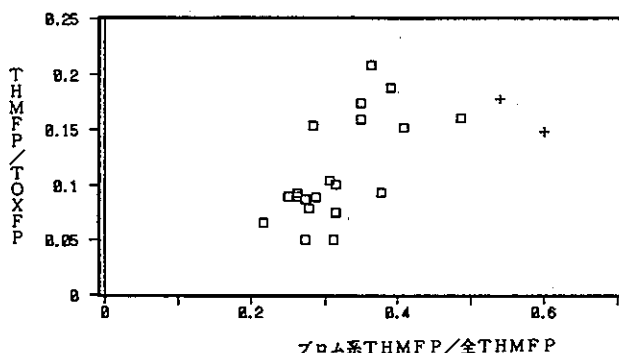


図6 ブrom系THMFPとTHMFP/TOXFPの関係 (THMFPはCl量換算値、+は調布堰河川水を示す)

(3) 有機物質の水質項目と生成能との関係

下水処理水におけるTHMFP (Cl量換算値) とBODとの関係を図7(1)、CODとの関係を同図(2)、TOCとの関係を同図(3)、E₂₅₄との関係を同図(4)に示す。同様にTOXFPと各水質項目との関係を図8(1)~(4)に示す。それぞれの相関係数を表2に示す。

THMFPはいずれの有機物質の水質項目とも相関が高くない。BODとは相関がほとんどなく、COD、TOC、E₂₅₄とは、右上がりの傾向がみられるが、しかし、相関はあまり高くない。これは前述のBrイオンの影響がある他に、THMFPを生成する有機物質の割合が下水処理水ごとに変動することを示している。

一方、TOXFPはBOD以外の水質項目とは相関が高い。BODは微生物によって分解されやすい生分解性有機物質を表す指標であるから、BODとの相関が低いということは、主に難分解性有機物質がTOXFPを生成することを示している。そのことは、難分解性有機物質の指標とされるE₂₅₄とTOXFPの相関係数が高いことから裏付けられる。下水処理場での処理が順調に行われていれば、CODもTOCもその大半は難分解性有機物質で構成されているから、その結果として、CODやTOCとTOXFPとの相関も高くなっている。

THMFPはBrイオンの濃度や下水処理水それぞれの有機物質の構成によって左右される。排出先の河川におけるBrイオン濃度は他のBr排出源の多寡に影響されるし、河川水による希釈も行われるから、下水処理水と同じではない。また、有機物質の構成も河川を流下する過程での分解で変化することが予想される。これらの点を考慮すると、下水処理水起因の有機物質が排出地点と下流での取水地点で異なるTHMFPを示すことが予想される。このことはTHMFPの排出規制を行うことの合理性について疑問を投げるものである。むしろ、Brイオンの濃度や有機物質の構成の影響が小さく、THMFPをも含むTOXFPで規制する方が合理的なように思われる。

表2 THMFP (Cl量換算値)、TOXFPと各水質項目との相関係数

	BOD		COD		TOC		E ₂₅₄
	ろ過水	非ろ過水	ろ過水	非ろ過水	ろ過水	非ろ過水	
THMFP	0.03	0.16	0.44	0.50	0.61	0.45	0.43
TOXFP	0.01	0.17	0.89	0.88	0.83	0.63	0.86

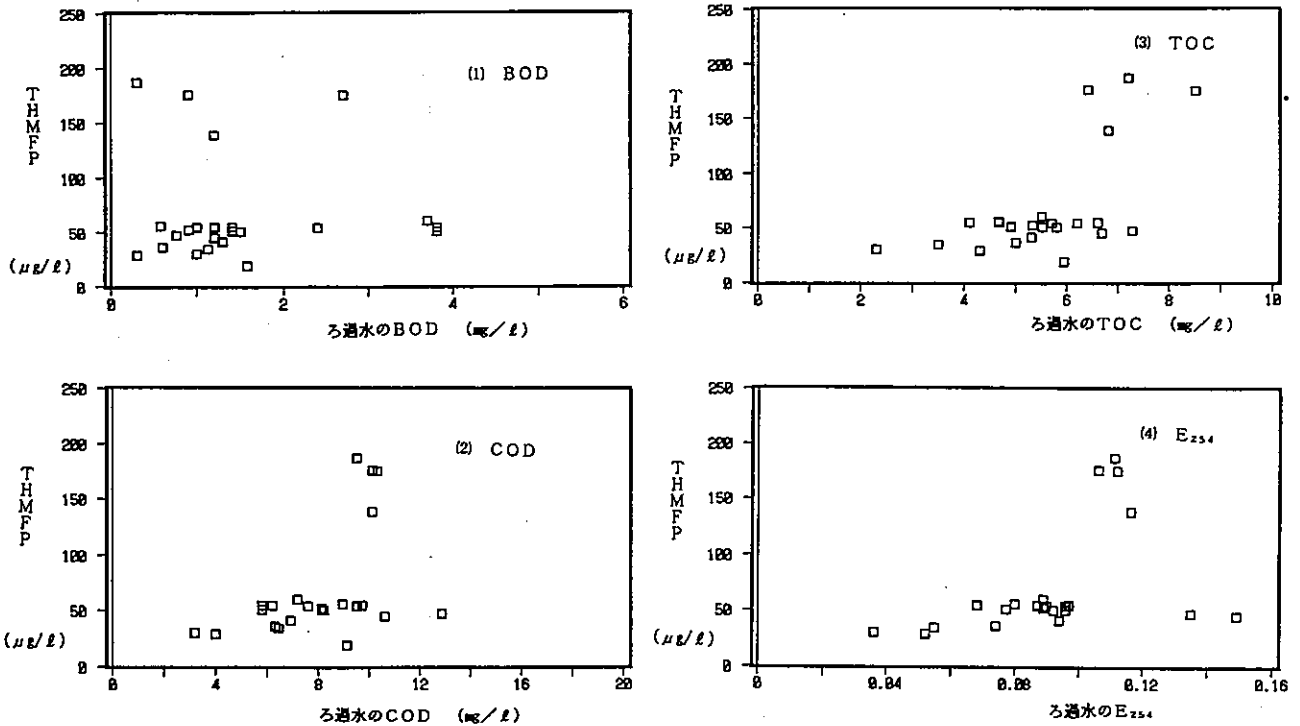


図7 各水質項目とTHMFP (Cl量換算値) の関係

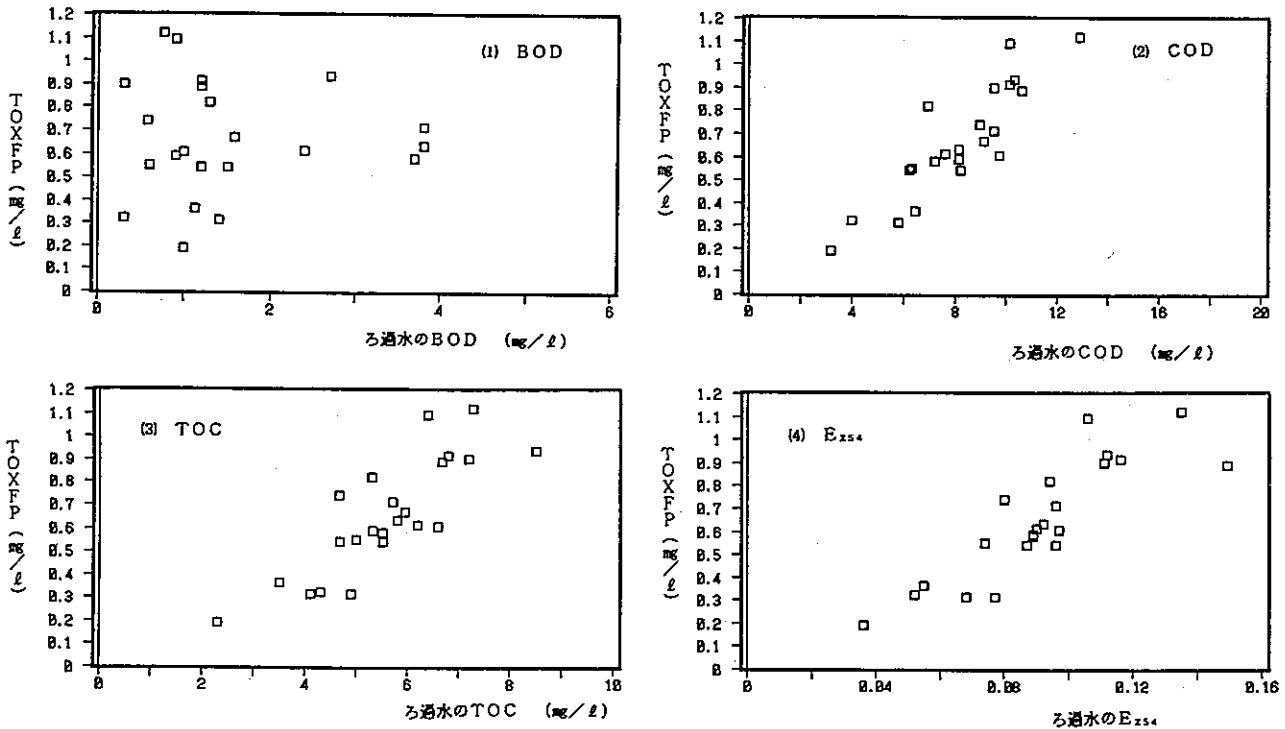


図8 処理水の各水質項目とTOXFPの関係

(4) 生成能と処理条件との関係

ア 雨水や地下水の混入率の影響

前述のように、下水処理水のTOXFP、THMFPは最小と最大で約5倍の差があった。次に、下水処理水においてこのように大きな差が生じる原因を検討してみる。

下水処理水においてTOXFPやTHMFPを示す有機物質の起源は次の三通りが考えられる。

- ① 流入下水にもともと含まれているもの
- ② 流入下水中の有機物質が下水処理場での生物分解によりTOXFP等の起因物質に変質したもの
- ③ 活性汚泥微生物の内生呼吸による代謝で排出されるもの

このうち、①と②は各下水処理場の流入条件によって左右される。家庭排水以外の事業場排水の種類と流入量によっても変わってくるし、また、下水管への地下水の混入度や雨天時における雨水排水の混入率によっても変わる。地下水や雨水排水の混入率が高まると、処理の状況とは関係なく、処理水のTOXFP等の濃度が低下する。

このうち、事業場排水の流入状況は把握することが困難であるが、地下水や雨水の混入率は処理水のClイオン

濃度で推測することができる。下水のClイオン濃度は雨水や地下水に比べてかなり高いので、雨水や地下水の混入率が上昇すると、Clイオン濃度が低下する傾向がある。

図9に処理水のClイオンとTOXFPとの関係を示す。両者の関係は右上がりの傾向がみられ、地下水や雨水の混入率が処理水のTOXFPに影響することを示唆している。しかし、同じClイオン濃度でも、TOXFPに3倍程度の差がみられており、TOXFPの変動の理由を雨水や地下水の混入率だけで説明することはできない。

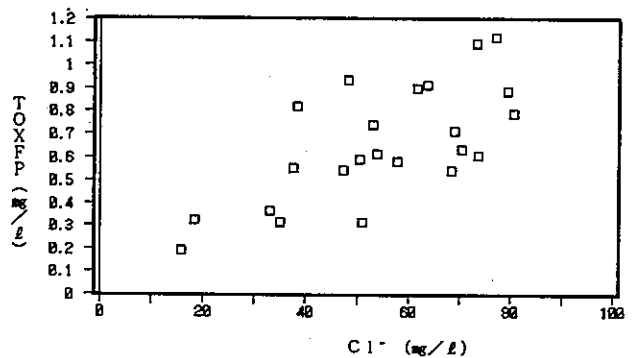


図9 処理水のCl⁻とTOXFPの関係

イ ばっ気槽の処理条件との関係

図10に各処理施設のばっ気槽の滞留時間と処理水のTOXFPとの関係、図11にばっ気槽の滞留時間×MLSSと処理水のTOXFPとの関係を示す。ばっ気槽の滞留時間と滞留時間×MLSSは活性汚泥処理の進行度を示す指標である。通常はばっ気槽の滞留時間が長いほど、処理がよく行われるが、処理の状況はばっ気槽の活性汚泥濃度にも左右されるから、活性汚泥濃度を表すMLSSも含めて、ばっ気槽の滞留時間×MLSSで処理の進行度をみた方が合理的である。そこで、この二つの指標とTOXFPとの関係をみたわけであるが、両図ともばらつきが大きい。まだデータ数が少ないが、現段階では相関関係は全くみられない。

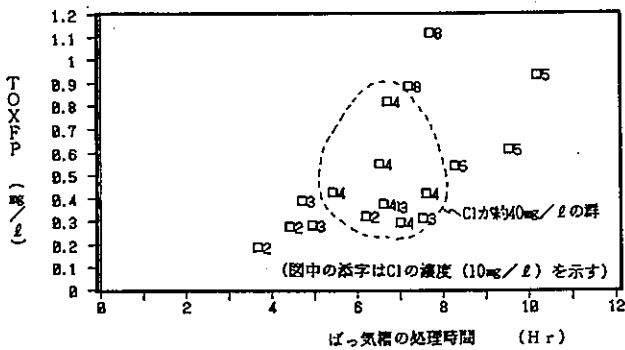


図10 処理時間と処理水TOXFPの関係

前述のように、TOXFP等の起因物質は①～③の三通りが考えられる。流入下水に含まれる①のTOXFP等の起因物質は処理の過程で汚泥に移行したり、生物分解を受けて非起因物質や無機物質に変わっていく。そして、生物分解で生じる②のTOXFP等起因物質も、生成後、更なる生物分解で非起因物質や無機物質に変わっていく。これらの点で、①と②の起因物質は活性汚泥処理が一定以上進むと、減少していくものと考えられる。一方、②の起因物質は活性汚泥微生物の内生呼吸による代謝で排出されるものであるから、活性汚泥処理が進行するほど、逆に上昇すると考えられる。したがって、活性汚泥処理の進行は処理水のTOXFP等の起因物質に対して低下と上昇の両面の作用をすることが予想される。

しかし、図10、11の結果ではこの両面の影響度を知ることができなかった。もっと多くの処理場調査データを積み重ねるとともに、室内の活性汚泥処理実験で①、②、

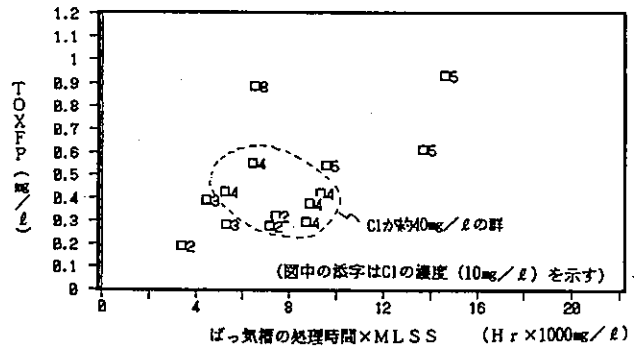


図11 処理時間×MLSSと処理水TOXFPの関係

③のTOXFP等起因物質の動向を調べる必要がある。

なお、処理条件の指標として、この他にばっ気槽の溶存酸素濃度、PH、空気吹込量も取り上げたが、処理水のTOXFP等との間には特段の関係はみられなかった。また、水温との関係もなく、処理水の生成能に季節的な変化はなかった。

ウ 硝化、脱窒との関係

図12に処理水の溶解性ケルゲール窒素(NH₄-N+溶解性有機態N)とTOXFPとの関係、図13に処理水の溶解性T-NとTOXFPとの関係を示す。前者は硝化との関係を知るため、処理水に残留している非硝化型窒素、Kj-Nを硝化進行度のマイナスの指標として、後者は脱窒との関係を知るため、溶解性T-Nを脱窒進行度のマイナスの指標として取り上げたものである。ばらつきは大きい、両図とも多少、右上がりの傾向がみられる。

以上の傾向は偶然の結果かもしれないが、もし因果関係があるとすれば、次のようなことが考えられる。

下水(第1沈殿池出口)のTOXFPを測定したところ、処理水200~1100μg/lよりも1桁高く、2000~11000μg/lの範囲にあった(7データ)。上述の①の起因物質は活性汚泥処理により、かなり除去されている。その除去の中身は生物分解と汚泥への移行であるから、下水中のTOXFP起因物質は微生物に分解されやすい有機物質によっても構成されている。ところが、処理が進むと、②と③の起因物質も加わって、TOXFP起因物質は微生物によって分解されにくい有機物質が中心を占めるようになる。しかし、難分解性有機物質にはほとんど分解不能なものから、時間をかければ或る種の細菌に

より分解できるものもあるから、処理の条件によっては TOXFP がより小さくなっていくことが考えられる。

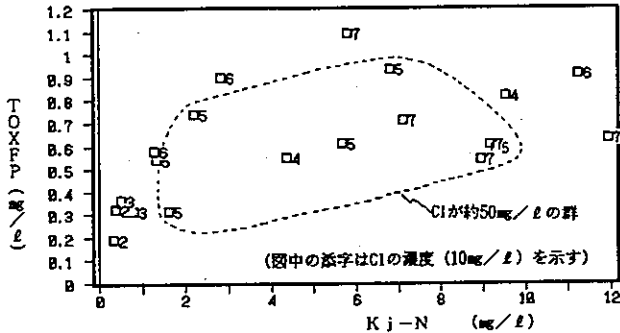


図12 処理水のケルダール窒素とTOXFPの関係

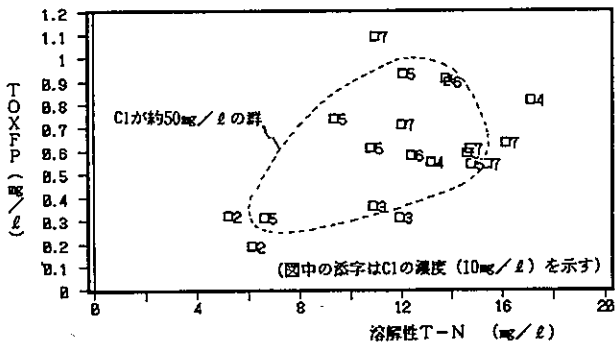


図13 処理水の溶解性T-NとTOXFPの関係

この TOXFP の分解細菌が増殖できる条件として硝化や脱窒が関係する可能性がある。まず、硝化菌の増殖速度は BOD 酸化菌 (BOD 起因物質を酸化する細菌) の 1/5 程度で、ずっと遅く、硝化が進む処理施設の場合は、増殖速度が遅い有機物分解細菌も増殖が可能になっていることが考えられる。もしこの種の細菌が TOXFP 起因物質の分解に関与するとすれば、硝化の進行度が処理水の TOXFP に関係する可能性がある。

次に、脱窒とは、有機物酸化菌が酸素供与体として溶存酸素の代わりに NO_x-N 中の酸素を使う現象であるが、この場合、酸化菌の代謝機構が変化して、一部の難分解性有機物質も分解できるようになることが知られている²⁾。この点で、脱窒の進行が処理水の TOXFP の低下に寄与する可能性がある。

以上はあくまで可能性として述べたものであり、今後、

各処理施設のデータを積み重ねて、実際にそのような関係がみられるかどうかを確認していく必要がある。

4 おわりに

多摩川流域の 6 下水処理場を対象として、処理水の THMFP、TOXFP の排出実態および処理条件との関係を調査した結果、次の諸点が明らかとなった。

① 処理水の非ろ過水とろ過水の THMFP および TOXFP の差は非常に小さく、これらの生成能をもつ有機物質のほとんどは溶解性成分である。

② 処理水の THMFP 及び TOXFP は時間変動が小さいので、スポット採水による試料の生成能で、各処理場処理水の生成能を表すことができる。

③ 下水処理水の THMFP は大半が 40~80μg/L に入っており、多摩川の調布堰河川水の THMFP 60μg/L 前後と同程度のものが多い。一方、下水処理水の TOXFP は 200~1100μg/L の範囲にあって、調布堰河川水の TOXFP 250μg/L 前後の 2~4 倍の値を示した。

④ THMFP/TOXFP の比は 0.05~0.25 と、変動が大きかった。その変動を大きくする要因の一つとして、生成効率の高いブロム系 THMFP の存在がある。試料中の Br イオンが高いと、塩素添加により、ブロム系 THMFP が多く生成され、THMFP の値が大きくなる。

⑤ TOXFP と相関が高い有機物質の指標は、COD、TOC、E₂₅₄ であり、BOD との相関は低かった。これは、難分解性で、且つ溶解性の有機物質が TOXFP の起因物質の中心を占めていることを意味している。また、THMFP はいずれの有機物指標とも相関があまり高くなかった。

⑥ 下水への地下水・雨水の混入率が処理水の TOXFP に影響している傾向がみられたが、TOXFP にはそれだけでは説明できない大きな変動がある。

⑦ 処理水の TOXFP を変動させる要因として、各処理場の処理時間、活性汚泥濃度、硝化や脱窒の進行度等を取り上げたが、今回の調査ではこれらの要因との関係を裏付ける十分なデータは得られなかった。

今後は以上の調査・解析の結果を基礎にして、下水処理場の調査を続けるとともに、活性汚泥の室内実験を行って、下水処理場における THM 生成物質、TOX 生成物質の除去と生成の機構を明らかにしていきたい。

参考文献

- 1) 鳴津暉之ら：多摩川における有機汚濁物質の起源と削減に関する研究（その1），東京都環境科学研究所年報1994，p.161～172.
- 2) E.J.Bouwer, et al. : Transformation of Halogenated Organic Compounds under Denitrification Conditions, Appl. Environ. Microbiol. 45 (4), p.1295～1299 (1983).