

論文の内容の要旨

論文題目 DYNAMIC BEHAVIOR OF SUSPENDED SOLIDS AND PARTICLE-ASSOCIATED
MICROPOLLUTANTS IN HIGHWAY RUNOFF
(高速道路雨天時流出水における SS および微量汚染物質の挙動)

氏名 アリアル ルパク

面的汚染源は重要な汚染源の一つと考えられている。識別あるいは測定しやすい従来の点的汚染源とは異なり、汚染物質が分散して存在する面的汚染源については、その汚濁現象の特性化や定量化は困難である。そして、この面的汚染源由来の汚濁現象は、降雨と密接な関係があり、断続的で広範囲な地表面汚濁流出として発生する。

多数ある潜在的な面的汚染源の中で、交通量の多い幹線道路や高速道路からの流出水は最も危惧されている汚染源の一つである。道路・高速道路における活発な交通活動に伴って、重金属、炭化水素類といったさまざまな有害な微量汚染物質が環境中に放出される。重金属は自動車本体などの磨耗や浸食によって放出される一方、毒性のある炭化水素類は化石燃料の不完全燃焼によって生成される。また、タイヤ・トレッドの消耗、アスファルトからの浸出、舗装の磨耗粉塵からも顕著な寄与がある。これらの微量汚染物質は粒子に付着して存在する。粒子を含む汚濁流出過程には、複雑な輸送および変換形態を含んでいることが想定される。

本研究では、多数ある汚染物質の内、最も危惧される汚染物質として浮遊懸濁物質 (SS) に伴って存在する重金属、多環芳香族炭化水素類 (PAHs) を取り上げた。SS は最も主要な水質測定項目の一つであり、重金属と PAHs を含む汚濁流出水はさまざまなルートを通して水系に入り、受水域の水棲生物に対して化学的、生物的、生態学的ストレスの観点から悪影響を及ぼしていると考えられる。

スイスの高速道路の雨水排水システム (排水面積 8.4ha) を対象として、現場調査を行った試料を対象に研究を進めた。なお、この高速道路の平均 1 日交通量は 25,300-73,700 台であった。まず、パイロットプラントとして設置された雨水排水の処理施設の流入地点において、流出水の長期的なモニタリングを行った。また、高速道路塵埃を異なる交通量を有する

高速道路の 2 区域から回収した。回収された道路塵埃試料は<45、45-106、106-250、250-400、>400 μm の粒径ごとに分画された。一方、流出水は初期流出水に微量汚染物質が高濃度に存在することを考慮して、約 3mm の初期雨水による流出水に着目した。9 つの降雨について観測を行い、採取した流出水試料を用いて、SS、粒径分布、懸濁態微量汚染物質を測定した。2 つの主要な画分として、微粒子 (<45 μm) および粗粒子 (>45 μm) が粒径分析に用いられた。

本研究では、重金属 (Cr、Ni、Zn、Cu、Pb) および USEPA で指定された 16PAHs を 2 つの主要な微量汚染物質として分析対象とした。懸濁態重金属はマイクロウェーブを用いて希硝酸中で SS から抽出し、ICP/MS を用いて定量した。PAHs はジクロロメタンとメタノール混合液 (5:1) を用いて試料から超音波抽出し、GC/MS の SIM モードを用いて定量化した。

SS、懸濁態重金属、懸濁態 PAHs の雨天時流出挙動を調査した。サンプリングの序盤において流出水の SS 濃度が高い降雨もあれば、サンプリングの中盤や終盤において高濃度のピークが見られる例もあった。これは、高濃度の SS は流出水のどの段階においても見られ、降雨特性 (降雨強度や先行晴天日数) に依存することを示唆している。どの段階においても高い SS 濃度が生じうるということは、その雨天時流出挙動を理解する重要性を示唆している。微量汚染物質において、重金属及び PAHs 濃度は SS 濃度とともに変動することがわかった。これは、重金属及び PAHs が SS に付着して挙動することを示唆している。重金属の濃度は、Cr:4 ~ 36、Zn:94 ~ 512、Cu:7 ~ 79、Pb:5 ~ 50 $\mu\text{g/l}$ の範囲であった。PAHs 濃度は 1 ~ 16 $\mu\text{g/l}$ の範囲であった。PAHs 含有率は重金属含有率よりも変動性が低かった。これらの濃度範囲は、過去に報告されている高速道路や市街地幹線道路の観測値と同程度であった。

流出水の SS 中の重金属は、その濃度が低いときに逆に含有率が高いことがわかった。そして、その含有率の変動範囲は 4 から 5 倍に及ぶことから、この重金属含有率を用いて各重金属間の相関関係を調べた結果、多くの場合、重金属間の決定係数 (R^2) は 0.7 以上であった。これは、重金属の道路塵埃への蓄積傾向は類似していることを示唆している。一方、PAHs 含有率プロファイルは重金属と比較して変動性が低く、その含有率は、3 ~ 107 $\mu\text{g/g}$ の範囲であった。

SS 全体だけでなく、懸濁物の粒径ごとの汚染物質濃度の相違を理解することは、汚濁物流出現象が粒径に依存することから汚染物質制御の観点から重要である。2 つの主要な画分である微粒子 (<45 μm) 及び粗粒子 (>45 μm) とその PAHs の流出挙動を 4 降雨において調査し

た。5分画 (<20、20-45、45-106、106-250、>250 μm) した試料の詳細調査も 11月14日の降雨を対象に実施した。その結果、微粒子と粗粒子では、その流出挙動が異なり、全 SS 濃度及び流速とともにそれらの画分 SS 濃度が変動することがわかった。定量的に相関関係を導いて、粒子の流出挙動の説明を試みた。全 SS 濃度の増加に対して、微粒子画分は飽和型の式に従って変化することがわかった。一方、粗粒子画分は全 SS 濃度の増加に伴って累乗的に増加し、 $Y=mX^n$ で表現された (m 、 n : 定数)。

微粒子と粗粒子の PAHs 濃度の時間変化は、それぞれの粒子画分 SS 濃度変化と類似する傾向を示した。また、微粒子の PAHs 含有率は粗粒子と比べてより変動が少なかった。一降雨平均の微粒子 PAHs 含有率は各降雨間でほぼ変化は少なかったものの、粗粒子では、4 倍程度まで変動があった。

汚染対策の観点から汚染物質の流出挙動を予測することは、重要な課題である。代表的な堆積負荷流出モデルである Sartor and Boyd モデルの式 ($P=P_0 \cdot \exp(-kQ)$ 、 P : 地表面堆積負荷量、 P_0 : 初期地表面堆積負荷量、 k : 負荷流出係数、 Q : 累積雨水流出量) を用いて、全 SS および分画された SS の負荷挙動を調べた。初期堆積負荷量とある累積流出量時点での堆積負荷量の差 ($P_0 - P$) が流出負荷量となるが、全 SS および粗粒子の SS 流出負荷量はこのモデルを用いることでうまく説明することが可能であった。一方、微粒子では、累積雨水流出量に対して線形的に増加する傾向が見られ、累積雨水量が増加してくると流出負荷量を過大評価する可能性が示唆された。したがって、微粒子流出負荷量の予測にはこのモデルの適用性は低いと判断された。

2つの道路塵埃および流出試料を用いて、重金属と PAHs のプロファイルとの関係を調べた。流出水試料の重金属プロファイルは微粒子堆積塵埃のそれと類似していたが、流出水試料よりも塵埃の PAHs 含有率が高めの傾向にあった。しかしながら、含有率はともに、10~50 $\mu\text{g/g}$ と同程度の範囲であった。微粒子塵埃 (<50, 50-125, and 125-250 μm) の PAHs プロファイルは、<50 μm 画分において流出試料よりも B(a)An が高い含有割合だったことを除けば、類似していた。それに対して、250-400 μm の画分は、流出試料よりも Ipy と B(ghi)Pe が高含有割合であるという異なる特徴を有していた。一回の降雨期間中では、粒径分布や試料を回収した時間が異なるにもかかわらず、PAHs プロファイルは非常に類似していた。異なる降雨間のプロファイルを比較すると、降雨ごとにプロファイルが異なる傾向が見られた。

PAH 成分の組成に関しては、全ての降雨において 4 環 PAHs の寄与が大きく、ついで 5、6、3 環であった。寄与の大きな 4 環の PAH に属する各 PAH 成分が全て似たような割合を持つ降雨もあれば、その内の特定の成分だけが低い割合を持つ降雨もあった。一降雨間での PAHs プロファイルが類似し、異なる降雨間のプロファイルが異なることは、道路塵埃堆積期間中の温度や湿度といった気象条件によって PAH 成分ごとの蓄積傾向が変化して、その結果として流出水の PAH プロファイルに影響を及ぼしている可能性が示唆された。

高速道路の雨水排水システムにおける SS 流出挙動の調査結果は、過去の調査事例報告内容と整合性のあるものであった。本研究においては、さらに粒径分布に着目して懸濁態微量汚染物質流出の調査を行い、微粒子と粗粒子それぞれに堆積負荷流出モデルによる解析した。そして、負荷量推定に重要となる負荷流出係数を粗粒子画分については算定できるものの、微粒子については降雨ごとに大きく変化することが明らかとなった。特に初期雨水において汚染物質濃度や負荷量の変動が数倍の範囲で起こり、高速道路の雨天時流出水において、汚濁負荷量の観測や予測、汚染物質管理の観点からは、非定常な流出挙動を理解することが必要不可欠であることが結論づけられる。