自動車排ガス起源のベンゾ(a)ピレンの 路面堆積・流出モデルに関する研究

尾崎 平* 和田 安彦**
三浦 浩之*** 中嶋 宜信**

Accumulation and Runoff Simulation Models for Benzo(a)pyrene from Automobile Exhaust Emission

Taira OZAKI, * Yasuhiko WADA, **
Hiroyuki MIURA, *** and Yoshinobu NAKAJIMA **

* Civil and Environmental Engineering, Faculty of Engineering, Kansai University, 3-3-35 Yamate-cho, Suita, Osaka 564-8680, Japan

** Graduate School of Kansai University, 3-3-35 Yamate-cho, Suita, Osaka 564-8680, Japan

*** Faculty of Human Environmental Studies, Hiroshima Shudo University, 1-1-1 Ozukahigashi, Asaminami-ku, Hiroshima 731-3195, Japan

Abstract

The influence of highway runoff on receiving water is considered serious. On the road surface and in side ditches, rubber debris from tires and automobile exhaust emission in the atmosphere and precipitation accumulate. These pollutants are discharged by heavy rainfall to the receiving water. These pollutants contain materials harmful to the human body and the ecosystem. In this study, the authors have investigated the amounts of accumulated pollutants and highway runoff pollutants. The correlation between SS (suspended solid) concentration and benzo(a)pyrene concentration was analyzed, and the mechanisms of highway runoff pollution and accumulation pollution were clarified. Benzo(a)pyrene concentration seemed to correlate with SS concentration. Therefore, the authors have anticipated that benzo(a)pyrene concentration is high in highway runoff and accumulated pollutants based on the runoff and accumulation models of SS. The result obtained using these models almost correspond to the experimental result.

Key words : highway runoff, endocrine-disrupting chemicals, runoff model, runoff characteristics

1. はじめに

近年、下水道整備の推進により家庭、事業場から公共用水域へ流出する汚濁負荷量は減少しているものの、路面、屋根等からの汚濁負荷量の割合は都市化の進展に伴う不透透域の拡大等により増加しつつある¹⁾。都市域での工業活動や走行車両からの排ガス中には人体・水系生態系に影響を与えていると考えられている微量有害性物質等が含まれており、晴天時にはそれらの物質は道路面に堆積し、雨天時には道路排水として水系に流出している。

これに対応して、海外ではノンポイント汚濁負荷流出の制御手法として貯水池を活用する最適管理手法 (BMP) が適用されている。日本国内でも水質の保全・向上のために、ノンポイント汚濁負荷対策の推進、必要性が国土交通省をはじめとする関係省庁において提言され、実践されつつある¹⁾。

このような背景から、道路面から流出する微量有害性物質の調査研究が行われている²⁻⁶⁾。これらの物質は河川等に流出・蓄積するが、まだその研究事例は少ない。そこで、本研究では、微量有害性物質を対象に、晴天時の路面への本研究では、対象幹線道路で路面堆積物調査を行い、路

面堆積及び雨天時の道路面からの流出状況の予測を行った。

対象とした微量有害性物質は自動車排ガス由来の多環芳香族炭化水素(PAHs)に着目し、このうち代表的な物質であるベンゾ(a)ピレン (B(a)P) とした⁷⁾。ベンゾ(a)ピレンは微粒子に吸着し大気に排出され、路面上に堆積し、雨天時に道路排水として流出する。

都市域のノンポイント汚染源において、ベンゾ(a)ピレンの発生量、蓄積量を把握すると共に、蓄積したベンゾ(a)ピレンの流出量を把握する必要がある。

本研究ではノンポイント汚染源の一つである道路排水から流出するベンゾ(a)ピレンを予測することを目的とした。既往研究において道路排水中の多環芳香族炭化水素の調査は行われているが、ある一定の期間内に道路排水を通じて水環境中に排出される多環芳香族炭化水素の量は不明である。また流出水の濃度変化特性も明らかにはされていない。これらを明らかにすることは道路排水のリスク評価に有用な情報となる。

面堆積物に含まれるベンゾ(a)ピレン量を把握した。そのデータを元に路面堆積負荷モデルを構築し、時系列での堆積負荷量を再現した。

次に、道路排水に含まれるベンゾ(a)ピレン濃度を明らか

* 関西大学工学部都市環境工学科 〒564-8680 吹田市山手町3-3-35

** 関西大学大学院工学研究科 〒564-8680 吹田市山手町3-3-35

*** 広島修道大学人間環境学部人間環境学科 731-3195 広島市安佐南区大塚東1-1-1

にするため雨天時道路排水調査を行い、道路排水のベンゾ(a)ピレン濃度の汚濁レベルを明らかにした。そして、得られた結果から、ベンゾ(a)ピレンの流出特性を考慮した路面流出負荷モデルを構築し、独立降雨でのベンゾ(a)ピレンの流出負荷量予測を行った。

2. 既往研究と本研究の位置づけ

都市部においては降雨時の屋根・道路などの面的な汚染源からの負荷割合が相対的に高まっており、浅田⁶⁾らは特に降雨初期の道路排水からベンゾ(a)ピレンが、懸濁物質に吸着して高濃度に流出することを報告した。山根⁸⁾らは東京都野川に流入する雨水中の多環芳香族炭化水素の大部分は、側溝流出水中の懸濁物質に吸着したまま河川底質に蓄積すると報告した。ペッ ペンシヤイ⁹⁾らは水環境への道路側溝堆積物の雨天時流出を重要な多環芳香族炭化水素類の重要な汚染経路の一つと捉え、自動車排出物(ディーゼル車, ガソリン車), タイヤおよび舗装材を道路側溝堆積物中の主たる多環芳香族炭化水素類の起源として取り上げ、16成分の多環芳香族炭化水素の組成比をもとにクラスター解析により類型化し、重回帰分析により類型毎の寄与率を求めている。以上のように、道路排水、路面堆積物中の多環芳香族炭化水素類に関する調査は、CODやSSなど一般水質項目と比べるとその数は非常に少なく、懸濁物質に吸着していることは明らかにされているが、定性的な結果が多く、定量的な解析は行われていない。

路面堆積や道路排水の汚濁物質の予測モデルについては、SSなどの懸濁物質を対象に筆者らは数多く研究を行い、論文を発表してきている¹⁰⁻¹³⁾が、多環芳香族炭化水素類の路面堆積、道路排水に関するシミュレーションは、これまでほとんど構築されていない。我々が懸濁物質を対象に構築した路面堆積に関するシミュレーションモデルの特徴は、晴天時は路面などに単位面積当たり毎日同じ負荷量だけ堆積し、堆積した負荷量は1日ごとにある減衰係数で減少すると考え、雨天時にその堆積物はある一定の流出係数に従い、降雨強度に比例し流出する。さらに、降雨による汚濁物質の補給があることを調査より明らかにし、補給を考慮した連続式を構築した¹⁰⁾。本シミュレーションモデルは、BODやSSなどの懸濁物質の負荷量を精度良く再現できる。上述の既往研究から、ベンゾ(a)ピレンが懸濁物質に吸着し流出するという特性を考慮し、ベンゾ(a)ピレンとSS等の懸濁物質との相関を高いことを定量的に証明すれば、我々が構築したSS等の道路排水、路面堆積シミュレーションモデルを基本としてベンゾ(a)ピレンを予測することが可能である。

したがって、本研究では、路面堆積、道路排水の調査を行い、ベンゾ(a)ピレンとSSとの相関関係を定量的に解析し、相関が高いことを明らかにする。さらに、これまで我々が構築したモデルを用いてベンゾ(a)ピレンの路面堆積負荷量及ぶ道路排水負荷量を定量的に把握し、既存モデルにてベンゾ(a)ピレンも予測できることを示す。

3. ベンゾ(a)ピレンの路面堆積・流出特性

3.1 対象地域、対象道路

対象地域は、A市を流れるB川、C川の周辺地域である。

Fig. 1は、調査対象幹線道路と調整池、水路、河川の位置関係と路面堆積物調査地点・雨天時道路排水調査地点を示している。

調査対象道路はA幹線道路であり、この道路の路面堆積物、道路排水をサンプリングした。A幹線道路にはB高速道路が並行して走っている。この両方の道路からの道路排水はC川に直接流入する。

調査対象としたA幹線道路は片側2車線であり、平成13年10月11日に行った交通量調査結果より交通量は24,000台・12h⁻¹ (7:00~19:00)である。大型車(排気量2000cc以上, 車両重量2t以上)混入率はピーク時間帯<7:00~9:00>で20%である。B高速道路の交通量は86,000台・日⁻¹である。

3.2 路面堆積物調査

(1) 調査方法

路面堆積物調査は、Fig.1で示した道路排水調査地点の近傍の幹線道路にて、平成14年5月~平成15年8月の期間で行った。調査回数は合計15回、先行晴天日数は0.5~12.4日である。調査地点の模式図をFig. 2に示す。路肩の堆積物は道路面全体の約9割を占める¹⁴⁾ ことから、路肩のみの堆積物をホウキとブラシにて採取した。調査区間はFig.2に示す通り、道路ますから道路ますまでの51.1mの区間とした。

(2) 分析項目・方法

分析項目は、SS、ベンゾ(a)ピレンとした。路面堆積物に含まれるベンゾ(a)ピレンは粒径の違いにより大きく異なることから分析は粒径毎に行い、試験用網ふるいはJIS Z 8801に規定されたものを使用し、本研究では以下に示す3区分にてベンゾ(a)ピレンの分析を行った。

粒径区分①: 0.850mmに留まるもの

粒径区分②: 0.850mmを通過し、0.250mmに留まるもの

粒径区分③: 0.250mmを通過するもの

Fig. 1 Subject area and location of investigation point

Fig. 2 Outline of investigation point

SSの分析方法は、下水試験方法に従い、ベンゾ(a)ピレンの分析方法は、環境庁¹⁶⁾(現環境省)の外因性内分泌攪乱化学物質調査暫定マニュアル(水質、底質、水生生物)(平成10年10月)の底質分析法に従った。底質分析法は、底質試料をアセトンで抽出後、食塩水を加えてヘキサンで抽出し、ヘキサン相を脱水、濃縮後、フロリジルカラムクロマトグラフィーでクリーンアップしてGC/MS-SIMで測定した。本論文で示す路面堆積物のSSとは、乾式で回収したものをふるいにかけて、粒径区分ごとに分けたあと、いったん水に溶かしてSSを測定したものである。なお、SS($\text{g} \cdot \text{kg}^{-1}$)とベンゾ(a)ピレン($\mu\text{g} \cdot \text{kg}^{-1}$)の分母の単位(kg)とは堆積物量を表し、分子の単位(g, μg)はそれぞれSS負荷量、ベンゾ(a)ピレン負荷量を表す。

3.3 路面堆積物調査結果

(1) 粒度分布

路面堆積物の粒度分布の一例として平成14年5月20日(先行晴天日数:1.2日, 前回降雨量:3.5mm)に行った結果をFig.3に示す。今回、設定した粒径区分毎の堆積物の比率は粒径区分①が10%, 粒径区分②が37%, 粒径区分③が53%である。本対象地域の粒度分布の特徴は採取した堆積物のうち約50%以上が0.250mmのふるいを通過する(粒径区分③)ことから、粒径の小さい堆積物の占める割合が高い。

(2) 粒径別のSSとベンゾ(a)ピレン負荷量

ベンゾ(a)ピレンは粒径の細かいものに吸着しやすいことから粒径区分毎でのベンゾ(a)ピレンおよびSSを分析した。ベンゾ(a)ピレンの分析は8回実施した。先行晴天日数は1~5日であり、粒径が細かいものほどSS、ベンゾ(a)ピレンの負荷量は高い。粒径区分①、②のベンゾ(a)ピレン負荷量は、最も粒径の細かい粒径区分③のベンゾ(a)ピレン負荷量の約0.1~0.5, 0.3~0.6程度である。粒径区分毎のSSとベンゾ(a)ピレンの関係をFig.4に示す。

(3) SS負荷量とベンゾ(a)ピレン負荷量の相関

路面堆積物のベンゾ(a)ピレンは懸濁物質に吸着していることから、路面堆積のSS負荷量とベンゾ(a)ピレン負荷量には相関があると判断し、相関分析を行った。

上述の粒径別の調査結果より、粒径の違いによりSS、ベンゾ(a)ピレン負荷量とも大きく異なることから、粒径別の相関を求めた(Fig.4)。実験結果より、SSとベンゾ(a)ピレンの関係は、SSの増加に伴い、ベンゾ(a)ピレンが指数関数的に増加していくことから、実験式として、Table 1に示す指数関数の相関式を得た。サンプル数はいずれの区分も7~8である。粒径区分①、②については、相関係数が0.8以上と非常に高い相関がある。粒径区分③は、相関係数が0.40と他の区分と比べて低い。粒径区分③は、粒径区分①、②のように見られるSSの増加に伴うベンゾ(a)ピレンの増加は顕著ではなく、SSが増加してベンゾ(a)ピレンは $100 \mu\text{g} \cdot \text{kg}^{-1}$ 前後に収束していく傾向にある。すなわち、本対象区域においては、細かい粒径では、ベンゾ(a)ピレンが $100 \mu\text{g} \cdot \text{kg}^{-1}$ を大きく越えてはSSなどに吸着、付着しないものと考えられる。

上述した相関式を用いて路面堆積の堆積物量当たりのSS負荷量($\text{g} \cdot \text{kg}^{-1}$)から堆積物量当たりのベンゾ(a)ピレン負荷量(μg)を粒径区分毎に求めた推定値と実測の堆積物量当たりのベンゾ(a)ピレンを比較し、ベンゾ(a)ピレン負荷量の相関式の妥当性を検討した。妥当性の検証には、実測値と推定値を次式で定義した合致率(E)を用いて評価した。

Fig.3 Particle size distribution of accumulation

Fig.4 Correlation between accumulated load of SS and B(a)P

Table 1 Correlation equation of SS and B(a)P load

Division	Correlation equation	Correlation coefficient, Number
①	$L_{B(a)P} = 1.36 L_{SS}^{0.78}$	$R=0.82$, $N=7$
②	$L_{B(a)P} = 4.58 L_{SS}^{0.57}$	$R=0.91$, $N=8$
③	$L_{B(a)P} = 33.8 L_{SS}^{0.13}$	$R=0.40$, $N=8$

$$E = \left\{ 1 - \sqrt{\frac{\sum (L_{sm} - L_s)^2}{TL}} \right\} \times 100 \quad (1)$$

ここで L_{sm} : 実測負荷量, L_s : 推定負荷量, TL : 総負荷量である。

ベンゾ(a)ピレン負荷量の実測値とSS負荷量を用いた相関式によるベンゾ(a)ピレン負荷量の推定値を比較した結果をFig.5に示す。

ベンゾ(a)ピレン負荷量の実測値と推定値を比較した結果、本推定式は、実測のベンゾ(a)ピレン負荷量が $50 \mu\text{g} \cdot \text{kg}^{-1}$ 以下の場合には、実測値より推定値の方がやや高くなり、逆に実測のベンゾ(a)ピレン負荷量が $50 \mu\text{g} \cdot \text{kg}^{-1}$ 以上の場合には、実測値より推定値の方がやや低くなる。しかし、全体で見ると合致率は0.93と非常に高く、実測値を概ね再現できている。これより、本推定式により路面堆積のSS負荷量からベンゾ(a)ピレン負荷量を推定できると判断した。

3.4 道路排水調査

雨天時に路面堆積物が流出する場合、粒径が細かいほど流出しやすいことを考えると雨天時の道路排水中には高濃度のベンゾ(a)ピレンを含んだ堆積物が公共用水域に流出していると考えられる。本研究では道路排水中のベンゾ(a)ピレン濃度を把握するため、3.1で示したA幹線道路にて実態調査を行った。

なお、路面堆積は、粒径毎に分けて分析を行ったが、流

出する道路排水については、既往研究¹⁵⁾において0.250mm以上(粒径区分①, ②)の粒子は最大でも10%程度であることが示されており、また、今回の調査においても粒径の大きいものはほとんど見られなかったため、粒径を分けずに道路排水全体として調査を実施した。

(1) 調査方法

道路排水調査は、Fig.1で示したA幹線道路の高架橋橋脚部の排水管にて行った。採水間隔はTable 2の要領にて実施した。高架橋からの排水を採水したのは、道路を走行する自動車以外の発生源の影響を極力排除するためである。雨天時道路排水調査は平成13年6月～平成14年12月までの計8回行った。調査対象降雨の特徴をTable 3に示す。

(2) 分析項目、方法

分析項目は、SS、ベンゾ(a)ピレンとした。SSの分析方法は、下水試験方法に従い、ベンゾ(a)ピレンの分析方法は、環境庁¹⁶⁾(現環境省)の外因性内分泌攪乱化学物質調査暫定マニュアル(水質、底質、水生生物)(平成10年10月)の水質分析法に従った。水質分析法は、水質資料をヘキサンで液抽出後、脱水、濃縮してGC/MS-SIMで測定した。

3.5 道路排水調査結果

(1) 雨天時道路排水のSS、ベンゾ(a)ピレン濃度

雨天時道路排水調査結果の一例をFig.6に示す。対象降雨は、総降雨量4.5mm、先行晴天日数7日である。調査期間中の午前6:30～7:30に降雨のピークがあり、ファーストフラッシュを捕捉できている。SSの分析は、採取した全サンプルについて行ったが、ベンゾ(a)ピレンについては、SSの分析結果をもとにピーク、変曲点の分析を行った。調査地点①において7:30以降水質データがないのは、分析をできるだけ流出量がなかったためである。

降雨開始直後にSS濃度、ベンゾ(a)ピレン濃度ともに最大値を示し(SS: 540mg・l⁻¹, B(a)P: 1.4μg・l⁻¹)、その後、濃度は低下していく。本結果より、ベンゾ(a)ピレン濃度はSSの流出挙動と同傾向である。

(2) SS濃度とベンゾ(a)ピレン濃度の相関

路面堆積物と同様に、道路排水についてもSS濃度とベンゾ(a)ピレン濃度の相関分析を行った。分析結果をFig.7に示す(N=27検体)。その結果、多少のバラツキはあるが、SS濃度の増加に伴い、ベンゾ(a)ピレン濃度も増加している。道路堆積物と同様に、相関が最も高かったのは、指数関数による近似式であったことから、指数近似を実験式として採用した。相関係数(R)は0.65であり、道路排水中のベンゾ(a)ピレンの推定式を式(2)に示す。

$$C_{B(a)P} = 0.017 C_{SS}^{0.51} \quad (2)$$

ここで、 $C_{B(a)P}$: 道路排水中のベンゾ(a)ピレン濃度、 C_{SS} : 道路排水中のSS濃度である。

(3) 相関式の妥当性の検証

上述した相関式を用いて道路排水のSS濃度からベンゾ(a)ピレン濃度を求め、その妥当性を検証した。妥当性の検証には、路面堆積物の場合と同様に、合致率(E)を用いた。

ベンゾ(a)ピレン濃度の実測値とSS濃度を用いた相関式によるベンゾ(a)ピレン濃度の推定値を比較した結果をFig.8に示す。検証の結果、ベンゾ(a)ピレン濃度の実測値が高い場合、本推定式では、実測値よりやや低くなる傾向にあるが、合致率は0.83と高いため、本推定式により道路排水のSS濃度からベンゾ(a)ピレン濃度を推定できると判断した。

Fig.5 Compared with measured value and estimate about accumulated load of B(a)P

Table 2 Method of sampling

Condition of rainfall	Sampling intervals
The first 30 minutes	5 or 10 minutes
The rainfall abated.	30～60 minutes
The rainfall intensify	5 or 10 minutes

Table 3 Characteristics of rainfall

No.	Rainfall (mm)	Duration (hr)	Maximum rainfall intensity of 10min (mm/hr)	Number of days since the last rainfall (day)	Sampling with first flush	Analysis of B(a)P
1	27.0	2.0	18.0	7	×	×
2	38.0	2.3	45.0	15	×	×
3	23.0	5.8	12.0	7	○	○
4	21.0	2.0	27.0	6	○	○
5	49.5	8.5	24.0	16	○	○
6	19.5	4.8	9.0	1	×	×
7	31.5	10.2	9.0	6	×	×
8	4.5	4.4	4.2	7	○	○

Fig.6 Concentration of SS and B(a)P

4. 路面堆積負荷モデルおよび道路排水負荷モデルの構築

4.1 路面堆積負荷モデルの基本式

路面堆積負荷の予測モデルについては、筆者である和田が地表面堆積モデル式を既に提案している⁸⁾。3章で示したように路面堆積物のSS負荷量とベンゾ(a)ピレン負荷量には相関があることから、筆者らが構築したSS負荷量の路面堆積負荷モデルを基本としてベンゾ(a)ピレン負荷量を予測した。なお、堆積物調査では、より正確にベンゾ(a)ピレン負荷量を把握するために粒径区分毎に負荷量を調べたが、モデルの同定には、単位堆積物量当たりの粒径区分負荷量

($\mu\text{g}/\text{kg}$)の調査結果に粒径区分の堆積物量(kg)を乗じ、各粒径区分の負荷量(μg)を総和した堆積物中の全ベンゾ(a)ピレン負荷量を用いた。モデル式を以下に示す。

(晴天時堆積)

$$P = P_0 \cdot e^{-K \cdot n} + \frac{a(1 - e^{-K \cdot n})}{1 - e^{-K}} \quad (3)$$

(雨天時流出)

$$Q_P = C_R \cdot (P \cdot A)^{m_R} \cdot r \quad (4)$$

(連続式)

$$P(n) = P(n-1) - Q_P / A + S \cdot R^{mr} \quad (5)$$

ここに、 P ；路面堆積負荷量 ($\text{g} \cdot \text{m}^{-2}$, $\mu\text{g} \cdot \text{m}^{-2}$)、 P_0 ；先行降雨による残存路面堆積負荷量 ($\text{g} \cdot \text{m}^{-2}$, $\mu\text{g} \cdot \text{m}^{-2}$)、 a ；単位面積当たりの汚濁負荷発生量 ($\text{g} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{d}^{-1}$, $\mu\text{g} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{d}^{-1}$)、 K ；路面堆積負荷量減衰係数、 n ；前回降雨からの経過日数 (d)、 Q_P ；路面流出負荷量 ($\text{g} \cdot \text{d}^{-1}$, $\mu\text{g} \cdot \text{d}^{-1}$)、 A ；対象面積 (161.25m^2)、 r ；降雨量 ($\text{mm} \cdot \text{d}^{-1}$)、 C_R ；負荷流出係数 ($1 \cdot \text{mm}^{-1}$)、 m_R ；運動式の係数、 S ；補給負荷係数 ($\text{g} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{mm}^{-1}$, $\mu\text{g} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{mm}^{-1}$)、 mr ；べき乗数である。なお、負荷量の単位は、SSはグラム(g)、ベンゾ(a)ピレンはマイクログラム(μg)を用いている。

4.2 路面堆積負荷モデルの係数の同定

上述の式を用いて、2002年4月1日から、12月31日までの期間を対象にSSとB(a)P堆積負荷量のシミュレーションを行った。SS負荷量のシミュレーション結果をFig.9に、ベンゾ(a)ピレン負荷量のシミュレーション結果をFig.10に示す。SS負荷量算出式の同定は、汚濁負荷発生量(a)については、実測堆積物量とSS負荷量との関係から決定し、補給負荷係数及びべき乗数は、先行晴天日数が1.0日未満時の調査結果と、式(5)における補給項なしの場合の解析値との差から決定した。その他の変数は堆積負荷量の変動を表現できるようにカーブフィッティングにより決定した。

ベンゾ(a)ピレン堆積モデルは前述のとおり堆積SS負荷量と相関が見られるため、汚濁負荷発生量以外をSS堆積モデルと同じとした。ベンゾ(a)ピレンの汚濁負荷発生量は、ベンゾ(a)ピレンとSSの単位面積当たりの堆積負荷量の実測結果より相関式(Fig.11)を求め、算出した。

(1) 妥当性評価

モデルの妥当性は、式(1)で示した合致率により評価した。SS負荷量予測の合致率は路面堆積の実測値とシミュレーション値を用い、B(a)P負荷量予測の合致率はSS負荷量から推定式により求めたベンゾ(a)ピレン負荷量とシミュレーション値を用いて算出した。SSとベンゾ(a)ピレン負荷シミュレーションの合致率はそれぞれ83.0%、72.9%である。シミュレーション期間が長いことを考慮すれば、本モデルにより対象道路での路面堆積負荷量を再現できている。

(2) 考察

実測値およびシミュレーション値から、対象道路の堆積負荷量では、SS負荷量は $4.5\text{mg} \cdot \text{m}^{-2}$ 、B(a)P負荷量では $3.8\mu\text{g} \cdot \text{m}^{-2}$ で頭打ちとなり、それ以上堆積することはない(上限値)。また、降雨により路面上の汚濁物質が流出したあと、5~6日で再び負荷量は上限値に戻る。

Fig.7 Correlation between runoff concentration of SS and B(a)P

Fig.8 Compared with measured value and estimate about runoff concentration of B(a)P

Fig. 9 Daily change of accumulated load and the result of simulation (SS)

Fig. 10 Daily change of accumulated load and the result of simulation (B(a)P)

4.3 道路排水負荷モデルの基本式

道路排水の予測モデルについては、道路排水のSS濃度とベンゾ(a)ピレン濃度に高い相関があることから、SS濃度の道路排水負荷モデルを基本としてベンゾ(a)ピレン濃度を予測する。モデル式を以下に示す。

(運動式)

$$L = k \cdot (P \cdot A)^m \cdot Q^n \quad (6)$$

(連続式)

$$\frac{dP}{dt} = -L \quad (7)$$

ここで、 L ；流出負荷量($\mu\text{g} \cdot \text{sec}^{-1}$)、 k ；負荷流出係数($1 \cdot \text{m}^3$)、 P ；残存負荷量($\mu\text{g} \cdot \text{m}^2$)、 A ；対象面積(161.25m^2)、 Q ；流出水量($\text{m}^3 \cdot \text{sec}^{-1}$)、 m 、 n ；べき乗数である。

本モデルは残存負荷量と流量の関数にて、流出負荷量を表現するものであり、流出初期におけるファーストフラッシュ現象や流出低減期における流出負荷量の減少を表現できる。

残存負荷量は、前章で示した路面堆積負荷モデルの結果を用いる。道路路面流出水量は、斜面流の流出を再現できるkinematic wave法を用いた。計算時間間隔は道路排水調査中に観測している5分間降雨量に合わせ300secとした。

4.4 道路排水負荷モデルの係数の同定

平成13年11月に調査した総降雨量1.5mm、先行晴天日数16日の降雨と平成14年12月に調査した総降雨量4.5mm、先行晴天日数7日の降雨を対象に解析を行った。ベンゾ(a)ピレン流出シミュレーション結果をFig.12に示す。流出モデルの各係数について、堆積負荷べき乗数(m)は既往研究の値をもとに道路排水調査結果による累加降雨量と流出濃度の関係から設定し、負荷流出係数(k)と流量べき乗数(n)は実測流量と実測流出負荷量の関係から合致率が最大となるように設定した。

ベンゾ(a)ピレンの道路排水負荷モデルのパラメータを式(8)に示す。

$$L = 0.003 \cdot (P \cdot A)^{1.0} \cdot Q^{1.5} \quad (8)$$

4.5 道路排水負荷モデルの妥当性評価と考察

(1) 妥当性

モデルの妥当性は、式(1)で示した合致率により評価した。平成13年11月、平成14年12月のそれぞれの合致率は、75.1%、77.6%である。いずれの降雨においても実測をほぼ再現できており、平成14年12月の降雨では、ピーク時の実測値も再現できている。したがって、本モデル式はベンゾ(a)ピレンの流出挙動も表現できる。

(2) 考察

本シミュレーション結果より、流出初期および降雨ピーク時にベンゾ(a)ピレンの流出負荷量も多くなり、降雨が弱まると流出負荷量も減少し、収束する。道路排水の負荷量は式(8)に示したように路面負荷堆積量(残存負荷量)と流出水量に大きく起因するため、流出負荷量を抑制するためには、路面清掃などによる堆積負荷量を軽減させることと流出初期および降雨ピーク時の流出水を貯留する等、公共用水域に流出させないことが重要である。

6. まとめ

本研究では、路面堆積、道路排水の調査を行い、SSとベ

Fig. 11 Correlation between accumulated load of SS and B(a)P

Fig.12 Result of simulation for amount of runoff pollutants of Benzo(a)pyrene

ンゾ(a)ピレン濃度の堆積、流出特性の把握、およびそれらの相関関係を定量的に解析した。また、SSとベンゾ(a)ピレン濃度の相関が高いことから、SSを基本とした既存モデルを用いてベンゾ(a)ピレンの予測を行った。以下に得られた知見を示す。

- 1) 路面堆積物の粒径別の調査から、粒径が細かいものほどSS、ベンゾ(a)ピレンの負荷量が多い。粒径区分①(0.850mmのふるいに留まるもの)、粒径区分②(0.850mmのふるいを通り、0.250mmに留まるもの)のベンゾ(a)ピレン負荷量は、最も粒径の細かい粒径区分③(0.250mmのふるいを通り、0.075mmに留まるもの)のベンゾ(a)ピレン負荷量の約0.1~0.5、0.3~0.6程度である。
- 2) 路面堆積物のSSとベンゾ(a)ピレン負荷量の相関分析を粒径区分ごとに行った結果、粒径区分①、②は相関係数が0.8以上と高いが、粒径区分③の相関係数は低

く、SSが増加してベンゾ(a)ピレンは $100\mu\text{g}\cdot\text{kg}^{-1}$ 前後に収束していく傾向にある。

3) 道路排水は、流出量ピーク時にSS濃度、ベンゾ(a)ピレン濃度ともに最大値を示し(SS; $540\text{mg}\cdot\text{l}^{-1}$, B(a)P; $1.4\mu\text{g}\cdot\text{l}^{-1}$)、その後、濃度は低下していく。また、ベンゾ(a)ピレン濃度はSSの流出挙動と同傾向である。

4) 道路排水のSSとベンゾ(a)ピレン濃度の相関分析を行った結果、SS濃度の増加に伴い、ベンゾ(a)ピレン濃度も増加しており、相関係数は0.65であり、相関はある。

5) SSの道路排水、路面堆積負荷モデルを基本とし、ベンゾ(a)ピレンの予測を行った結果、路面堆積負荷モデル、道路排水負荷モデルとも、概ね実測を再現できることを明らかにした。

本研究では、路面堆積物のサンプル数が少ない、道路排水の推定式は実測値が高濃度の場合、やや過小評価になるなどの課題はあるが、SSの道路排水、路面堆積負荷モデルを基本として、ベンゾ(a)ピレンの予測も可能であることを明らかにした。今回明らかにした流出・堆積特性や本モデルを用いたシミュレーションは、道路排水のリスク評価や流出対策計画策定に有用な情報となる。

今後の課題は、今回SSとベンゾ(a)ピレンとの関係から評価を行ったが、道路交通状況などが異なれば、相関式が変わる可能性があるため、交通状況の異なる地点において、SSとベンゾ(a)ピレンの関係を明らかにし、交通状況なども考慮したSSとベンゾ(a)ピレンの関係を明らかにする必要がある。今後の方向として、本モデルを用いた流出対策手法の評価から効果的な流出対策計画の検討を行い、リスク評価についても検討を進める必要がある。

謝 辞

最後に、本論文を進めるに当たり、種々の面からお世話になった方々に心からお礼を申し上げます。本研究は平成13年度の文部科学省科学研究費補助金 特定領域研究(A)(2)「都市排水に起因する内分泌かく乱物質汚染のリスク低減の研究」、および平成14年度の文部科学省科学研究費補助金 特定領域研究(2)「都市雨天時排水に起因する内分泌攪乱物質汚染リスクとその低減方法の研究」補助を受けて行ったものである。また、調査及び分析にあたっては関西大学工学部環境システム研究室の中野裕之君をはじめ、学生の協力を得た。ここに記して感謝の意を表します。

(原稿受付 2003年 2月12日)

(原稿受理 2003年10月31日)

参 考 文 献

- 1) 植松龍二(2002)都市のノンポイント汚濁負荷削減対策, 第5回日本水環境学会シンポジウム講演集, 157-160.
- 2) 中嶋宜信, 三浦浩之, 和田安彦(2002)雨天時道路排水が流入する小河川における汚濁物質の堆積と雨天時流出, 下水道研究発表会, 39, 440-442.
- 3) 三浦浩之, 和田安彦, 尾崎平, 中嶋宜信(2003)雨天時道路排水の流出水系での汚濁物質の挙動, 用水と廃水, 45(8), 779-785.
- 4) 木村定勝, 新矢将尚, 李炳撤, 清水芳久, 松井三郎(2001)道路排水の排水処理に関する研究, 土木学会第56回年次学術講演集, 401-402.
- 5) 河原長美, 小野芳郎, 古川和佳子(2002)路面上の多環芳香族化合物の流出, 第36回日本水環境学会年会講演集, 319.
- 6) 浅田素之, 大垣眞一郎(1996)都市域における降雨初期雨水排水中のベンゾ(a)ピレンの挙動, 水環境学会誌, 19(12), 66-71.
- 7) 村橋毅(2001)ディーゼルおよびガソリン車排出粒子中の内分泌かく乱物質の一斉分析, 自動車研究, 23(3), 18-21.
- 8) 山根晶子, 長島一郎, 泉川碩雄, 岡田光正, 村上昭彦(1993)野川流域における石油系炭化水素の雨天時流出, 水環境学会誌, 16(4), 251-260.
- 9) ベッ ペンシャイ, 中島典之, 古米弘明(2002)自動車排出物, タイヤおよび道路舗装材のPAHsプロファイルとそれらの側溝堆積物中PAHsへの寄与, 環境科学会誌, 6, 433-442.
- 10) 和田安彦, 三浦浩之(1997)都市域ノンポイント汚染源負荷の堆積・流出挙動モデルと流出制御に関する研究, 土木学会論文集, 559, VII-2, 61-71.
- 11) 和田安彦, 三浦浩之, 長谷川健司(1990)都市域の堆積汚泥の含有負荷特性とその定量化(1), 下水道協会誌, 309, 38-46.
- 12) 和田安彦, 三浦浩之, 長谷川健司(1990)都市域の堆積汚泥の含有負荷特性とその定量化(2), 下水道協会誌, 310, 74-81.
- 13) 和田安彦, 三浦浩之(1986)分流式下水道の雨天時流出に伴う汚濁負荷流出モデルとその適用, 土木学会論文集, 369, II-5, 287-293.
- 14) 和田安彦, 田内和三(1984)用途地域別路面堆積負荷の定量と特性, 用水と排水, 26, 35-42.
- 15) Furumai H., Balmer H. and Boller M. (2002): Dynamic behavior of suspended pollutants and particle size distribution in highway runoff, *Water Science & Technology*, 46, 413-418.
- 16) 環境庁(1998)外因性内分泌攪乱化学物質調査暫定マニュアル(水質, 底質, 水生生物).