

(42) 市街地への多環芳香族炭化水素類の地表面堆積とその降雨時流出

Dry Deposition of PAHs on Urban Area and Their Runoff

尾崎 則篤*, 鴈田孝広**, 福島武彦*, 山口登志子*

Noriatsu OZAKI, Takahiro GANDA, Takehiko FUKUSHIMA, Toshiko YAMAGUCHI

Abstract; Dry deposition of particulate matter, organic carbon and PAHs (Polycyclic Aromatic Hydrocarbons) were measured at two stations in an urban area. While the deposition fluxes of particulate matter and POC were nearly constant, those of PAHs had seasonal variability. The inflow flux into a combined sewage treatment plant at this area was also measured during non-rainy and rainy periods, respectively. Diurnal changes in water discharge, particulate matter and PAHs were observed during each of the non-rainy periods, thereby suggesting diurnal cycle of human activity. The first flush phenomena that is faster runoff of particulate matter and PAHs than water discharge were clearly observed at all the rainy periods. Although their PAHs contents agreed fairly with those of dry deposition, their fluxes were a few times larger than those of dry deposition.

Keywords; Non-Point Pollution, Dry Deposition, Runoff, Polycyclic Aromatic Hydrocarbons(PAHs)

1. はじめに

工場排水, 生活排水からの自然水域への影響は排水基準や下水道整備により減少してきている。一方, ノンポイント汚染源からの汚濁物質に対しては対策が充分講じられているとは言いがたく, 自然水域の汚濁, 汚染原因としての比重が増加している。ノンポイントソースによる水系汚染過程のひとつとして, 降水や晴天時に地表面に堆積した汚染物質の降雨時における水系への流出がある。これらの汚染原因物質には工場・焼却炉の排煙や自動車の排ガスに含まれている有害化学物質がある。それらは大気中を移流・拡散しながら都市域から郊外までの広い範囲で, 地表面に降下し堆積する。こうしたノンポイント汚染源からの負荷は少量で面的に散在しているが, 降雨時には集中的に公共用水域に流出する。また, 微量有害化学物質など汚染物質は排水処理施設では除去が困難なものも多いため, ノンポイントソースからの負荷を軽視する事はできない。そのため, ノンポイント汚染源による環境汚染を防ぐためには, 汚染物質の地表面への堆積や水系への流出, 環境中での化学変化等の動態を解明する必要がある^{1)~6)}。

そこで本研究では, 粉塵, 有機炭素, そして多環芳香族炭化水素類(以下PAHsと略す)を対象とし, 合流式下水道区域における下水処理場への非降雨時流入, 降雨時流入, そして処理区域内の大気降下による地表面堆積量を調査し, それらに基づき大気降下から降雨時流出にかけての動態解析を行った。

2. 調査・分析方法

2.1 大気降下物の調査

図-1に示すSt.1とSt.2の建物の屋上に大気降下物捕集容器を設置し, 大気から降下する粉塵を捕集した。両方の測定点は, 合流式のA下水処理場の処理区域(図-1; 元安川と京橋川に挟まれた区域の全域)を代表する点として選択した。処理区域は広島市の中心部であり交通量が多く, 交通に伴う負荷が主な負荷源であると考えられる。図-1中A点における交通量は8.7万台/日, B点は5.8万台/日であった(平成9年度広島国道工事事務所調査結果, <http://www.cg.moc.go.jp/tosyo/data/datahtm.htm>)。大気降下物捕集容器を図-2に示す。St.1は市街地中心部の2階建屋上, St.2は市街地郊外の3階建屋上である。この捕集容器は前降雨終了後から対象降雨終了後まで連続して設置し, 堆積した粉塵を洗い流しサンプルとした。サンプリング期間と設置日数を表-1に示す。

2.2 下水処理場での調査

A下水処理場で非降雨時の流入下水と降雨時の流入下水を採取した。また, 処理場内でのPAHsの挙動を把握するため, 処理水と汚泥のサンプリングも行った。サンプリング間隔は表-2に示す。また, 本流域内雨水管は, 上流に3箇所ポンプがあり, ある程度以上の雨水流入負荷がある際には超過分を直接放流している。そこで降雨と流入との収支をとるために, 対象降雨の直接放流に関する運転記録をA下水処理場より入手した。

* 広島大学工学部地域環境工学講座 (Dept. of Civil and Environ. Eng., Hiroshima Univ.)

** 広島県 (Hiroshima Prefecture)

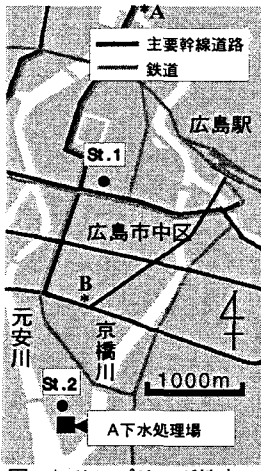


図-1 サンプリング地点

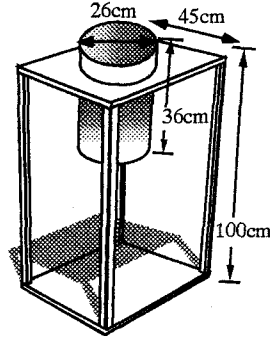


図-2 大気降下物捕集容器

表-1 各サンプリング期間

サンプリング期間	設置日数(日)	期間名
1999.8.3-8.19	16	D1
8.19-9.2	14	D2
9.2-9.17	15	D3
9.27-10.4	15	D4
10.4-10.28	24	D5
10.28-11.15	19	D6
11.15-11.25	10	D7
11.25-2000.1.14	50	D8

表-2 下水処理場でのサンプリング間隔

非降雨時	降雨時
4hr間隔で24hr	採水開始から2hrは15min間隔 (10, 14, 18, 22 その後2hrは30min間隔
2, 6, 翌10時)	その後4hrは1hr間隔

表-3 測定対象PAHsの種類, 略称, 分子量, Kowと定量下限 (Kow:水-オクタール分配係数, 定量下限はCV=20%となる濃度)

正式名称	略称	分子量	log Kow	HPLC定量 下限($\mu\text{g/l}$)
Naphthalene	NAP	128.2	3.3	1.4
Acenaphthylene	ACE	154.2	4.0	1.6
Fluorene	FLU	166.2	4.4	1.0
Phenanthrene	PHE	178.2	4.5	0.9
Anthracene	ANT	178.2	4.5	0.9
Fluoranthene	FLUR	202.3	5.1	1.2
Pyrene	PYR	202.3	4.9	1.3
Benzo(a)anthracene	B(a)A	228.3	5.9	0.9 (B(a)Aと Crysene
Crysene	CHR	228.3	5.9	CHRの和)
Benzo(b)fluoranthene	B(b)F	252.3	5.8	1.1
Benzo(k)fluoranthene	B(k)F	252.3	6.8	2.9
Benzo(a)pyrene	B(a)P	252.3	6.3	1.5
Dibenzo(ah)anthracene	DB(ah)A	278.4	6.0	4.0
Benzo(ghi)perylene	B(ghi)PE	278.4	6.5	2.7
Indeno(123cd)pyrene	IND(123cd)PY	278.4	6.6	3.6

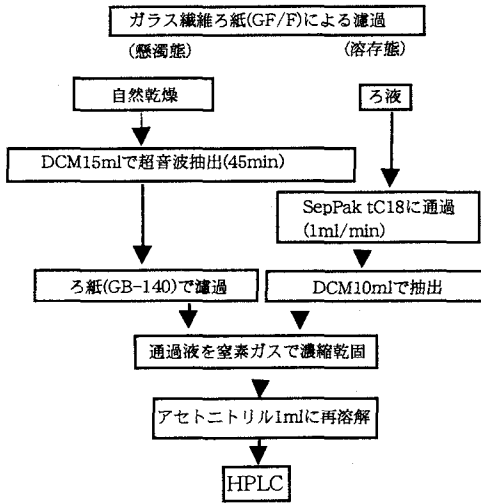


図-3 PAHs分析フロー

A下水処理場の処理区域は広島市の業務, 商業中心地区である中区に存在し, 処理区域面積は510ha, 処理人口は5.8万人, 事業所数は2.0万戸, うち製造業は310戸である。

2.3 分析方法

分析項目は, 堆積粉塵量, SS, POC(粒子状有機炭素), DOC(溶存態有機炭素), PAHs(15種類, 表-3)とした。採取した粉塵および下水処理場での流入水・処理水は, GF/F(孔径 $0.7\mu\text{m}$ Whatman社製)で濾過を行い, 懸濁態と溶存態に分離した。汚泥は凍結乾燥を行い, 乾燥試料とした。

PAHsの分析の前処理を図-3に示す。分析は高速液体クロマトグラフ(LC-10AT, SPD-10AV 島津製作所製)で行った。また, POCはCHNコーダ(MT-5, YANACO製)で, DOCはTOC-5000A(島津製作所)で行った。

3. 調査結果

3.1 大気降下物

各サンプリング期間における粉塵の堆積フラックスを図-4に示す。D2のSt.2とD4を除くすべてのサンプリングにおいて, 堆積フラックスは $20\sim 40(\text{mg}/(\text{m}^2 \cdot \text{d}))$ 程度で, 季節やサンプリング地点によらず安定している。POCについても時期, 場所による傾向的な違いは見られなかった。D2においてSt.1が他のすべてのサンプリングと比較しても特異的に高いのは, D2の期間内にSt.1近傍において何らかの理由で偶発的に粉塵堆積が大きく生じたのではないかと推察される。D4においてSt.1, 2共に値が低い理由は不明である。しか

し一般的に一年のこの時期に限って粉塵堆積が減少しているとは考えられず、やはり偶発的な現象であろうと考えられる。

次に、各PAHsの粉塵中含有量の傾向を、各PAHsの中央値を代表値とし図-5に示す(降雨水中溶存態負荷量は低分子の2, 3のPAHsでは懸濁態の10%以下程度、それ以外のPAHsでは1%以下程度であったので、ほとんどが粉塵付着態と見なし以降の解析では粉塵付着態を対象とする)。中央値を代表値としたのは、PAHs毎に測定される量のオーダーがかなり異なり、平均値を用いた場合その大きい値に影響されやすいと考えたためである。また、測定毎にPAHsの分布のパターンは類似しており、中央値をみることである程度全体の傾向を代表させられると考えたためである(PAHs等のパターンについては、4.1で述べる)。D1, D2(8~9月初旬)が低く、D6~D8(11月下旬~翌年1月中旬)が高い傾向があり、夏から冬に高くなる傾向が窺える。一般にPAHsの大気中濃度やフラックスは冬季に高くなるといわれており⁷⁸⁾、本研究でも同様の傾向が得られた。D3のSt.2はこの傾向からはずれている。しかしSt.1,2ともにそれ以外は夏から冬にかけてなだらかに上昇していることから、D3のSt.2のサンプリングにおいてのみ何らかの偶発的な現象によってこのような結果が生じたのではないかと考えている。

St.1, 2とで比較すると堆積粉塵フラックス、PAHs含有量共に両者で概ね等しい傾向にある。ただし詳細に見ると堆積粉塵フラックスはSt.2が僅かに高く、一方PAHs含有量はD4以降St.1が高いという傾向がある。St.2はSt.1と比較して市街中心部からはずれているため、むしろ堆積粉塵量は低くなってしかるべきであると推察された、しかしながら実際の傾向は逆であり、その原因は不明であった。

粉塵の堆積量は $30(\text{mg}/(\text{m}^2 \cdot \text{d}))$ 程度であるので月当たり換算すると約 $1(\text{トン}/(\text{km}^2 \cdot \text{month}))$ となる。一方、本研究での対象都市と同程度の規模のいくつかの都市では、仙台市: 1.3~9.7, 大阪市: 1.2~3.2, 北九州市: 1.1~3.9(1996年度調査、月平均値、単位は $\text{トン}/(\text{km}^2 \cdot \text{month})$)と報告されている(国設大気汚染測定所/国設環境大気測定所⁹⁾)。以上の測定は乾性沈着のみの測定であり、一方、本研究では乾性沈着と湿性沈着とを合わせて測定しており厳密には比較できない。しかし例えばMcVeetyとHites¹⁰⁾はスベリオル湖内の島でPAHsについて乾性/湿性沈着とを分けて測定し、乾燥沈着の寄与率は殆どの種類で9割程度であったとしている。粉塵中のPAHsの含有量が乾性沈着、湿性沈着共に等しいとすれば堆積粉塵の乾燥沈着の寄与率も同様に9割程度と考えられる。本研究でも同様に堆積粉塵の主要な寄与は乾性沈着によるとすれば、これら諸都市との比較が可能であると考えられる。両者を比較すると本調査での堆積粉塵量は一般的な都市域と同程度であると考えられる。

3.2 非降雨時における流入下水

非降雨時における合流下水処理場でのサンプリングを、1999年7月13日(非降雨1)、同年9月28日(非降雨2)、同年11月29日(非降雨3)の3回行った。図-6に流入水量とSSの経時変化を示す。流量、SSともに昼間高く、夜間低い傾向にあり、人間生活と密接に関係があることが見受けられる。また、POC、DOCにおいても同様な日変化パターンを得た。図-7にPAHsの経時変化を示す。こちらもやや夜間に低い傾向が見られる。

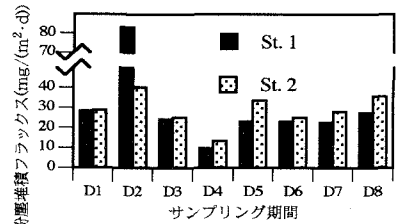


図-4 粉塵堆積フラックス

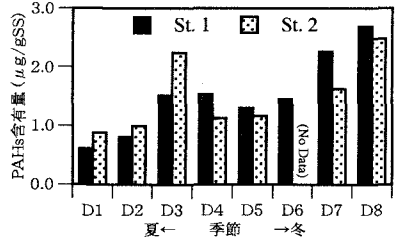


図-5 PAHs含有量 (値は中央値)

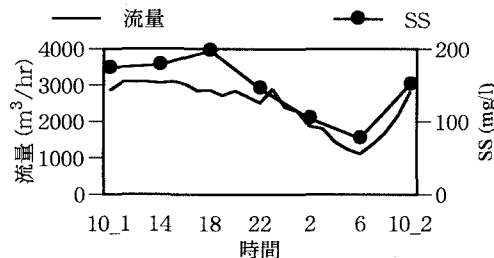


図-6 非降雨時における流入水量とSSの経時変化 (値は各測定の同時時間帯の平均)

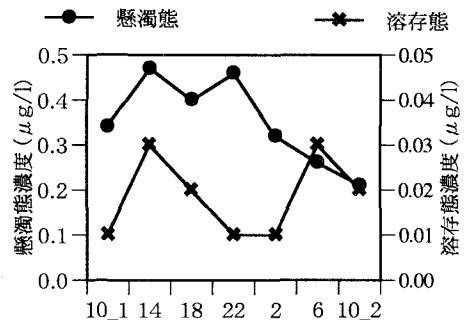


図-7 非降雨時における流入水中PAHsの経時変化 (値は各PAHsの中央値を、各測定を同時時間帯毎に平均したものの)

表-4 サンプリングを行った降雨の状況

	降雨1	降雨2	降雨3	降雨4
サンプリング日	8.17	10.27	11.12	11.15
降雨量(mm)	2.5	28	4.5	12.5
先行晴天日数(日)	16	24	16	2

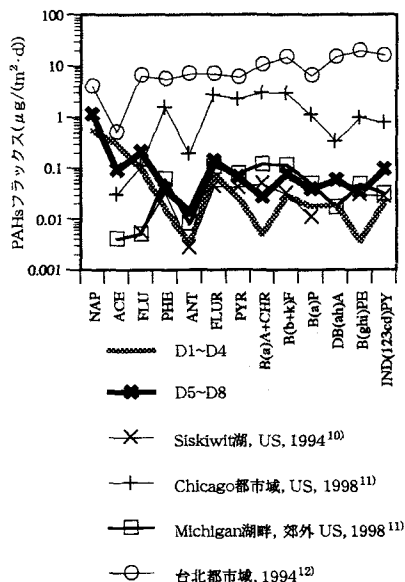


図-9 PAHs堆積フラックスと文献値との比較

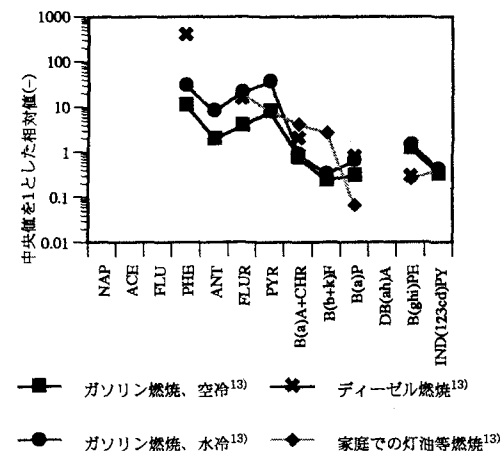


図-10 代表的な燃焼過程におけるPAHs排出量比の例

併せて示した。これを見ると、(1)他の都市と比較して値は低めであること、(2)他の調査結果はPAHs毎のフラックスが比較的一様であるのに対して本調査では低分子の成分が高めであること、(3)D1~4とD5~8とを比較すると後者がやや高く、一方PAHs毎の濃度パターンは類似していること、がわかる。他の都市と比較して低めなのは排ガス規制等の政策が一定の効果をもたらしているためではないだろうか。一方、PAH毎の濃度パターンが異なっているのは、これらの地域での発生源、発生様態と異なる部分があることを示唆している。

そこで、発生源の比較を行うことを目的として、自動車の排煙中と家庭における灯油等燃焼排煙中の濃度パターンの文献値¹³⁾を図-10に示した。いずれも濃度パターンは低分子の成分が高いという点で共通しており、本研究での堆積粉塵中濃度パターンとの類似点ともなっている。一般に粉塵付着態PAHsの含有量パターンは、

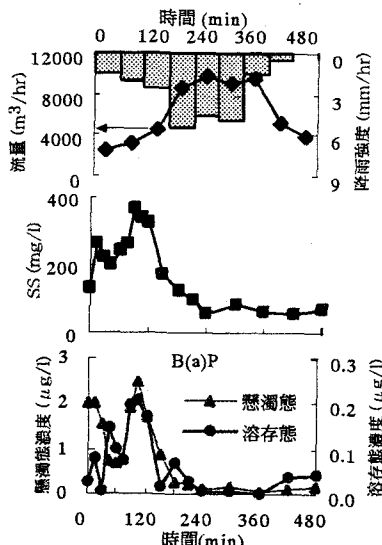


図-8 降雨2における降雨強度と流量、SS、PAHs(B(a)P)の経時変化(時間は採水開始からの経過時間)

3.3 降雨時における流入下水

降雨時におけるサンプリングの降雨条件を表-4に示す。最も降雨が強く、経時変化が明確に見られた降雨2を例として経時変化を示す(図-8)。降雨強度の増加に伴い流量も増加する。

また、SSの経時変化を見ると、流量のピークの前にSSのピークが現れるファーストフラッシュ現象が見られる。有機炭素、PAHs(Benzo(a)pyreneを例示)の経時変化はともにSSと同様の傾向が見られる。降雨によって、晴天時の路面堆積物や管内堆積物等が処理場流入口へ流入したことが原因であると考えられる。

4. 考察

4.1 PAHs含量パターンに基づく起源解析

まず、大気降下フラックスについて、季節変化を含め詳細に検討するために、捕集期間をD1~4(8~10月初旬)とD5~8(10~翌年1月)とに2分し、各々の時期の各PAHsのフラックスの平均値を示した(図-9)。なお、St.1の期間D2、St.2の期間D3は特異値と判断し平均からは外した。本研究と同様の調査が行われた世界の幾つかの都市、郊外域での粉塵の乾性沈着に伴うPAHsフラックスの文献値¹⁰⁾

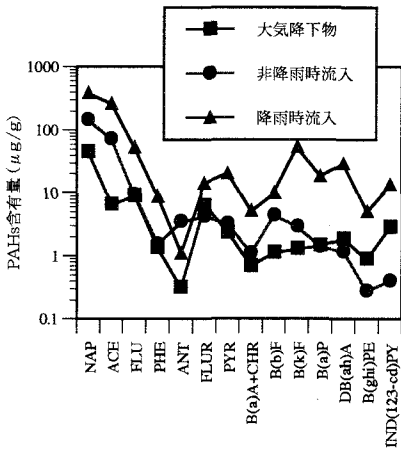


図-11 大気降下物、非降雨時、降雨時の懸濁態PAHs含有量パターンとの比較 (各々全測定の平均値)

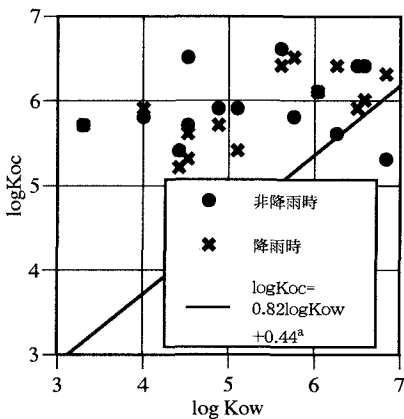


図-12 各PAHsのlog Kowとlog Kocとの関係 (Kow:オクタノール-水分配係数, Koc:有機物(POC)当たりの懸濁態PAHs(μg/kg)/溶解態PAHs濃度(μg/l), a: Schwarzenbachら¹⁶⁾)

その拡散過程で初めは低分子が卓越し、拡散に伴い高分子が卓越してくるといわれている¹⁴⁾。このことから考えると本研究のサンプリングポイントでは、その主要な発生源は石油燃焼によって生じた排煙等であり、またそれら発生源から非常に近い位置にあるといえる。他の都市と異なる濃度パターンが見いだされた理由は、他の都市では工場からの排煙の影響が存在していた、あるいは発生源からやや遠方にサンプリングポイントが位置しその距離のために粒子径によるPAHsの選択性が生じたなどの可能性などがあるが、その原因の詳細は不明であった。なお、他の都市よりも値が低い原因が測定法の違いから生じた違いである可能性については後節で言及する。

季節によるPAHs降下フラックス量の違いについては、1)季節毎に発生源が異なること、2)粉塵に付着したPAHsは大気中で時間と共に揮発していき、その揮発性が季節毎に異なること、3)光変換性が季節毎に異なること、などが原因として考えられている⁸⁾。本研究の結果について考えてみると、1)については、夏は主に自動車の排ガス、冬はそれに加えて石油ストーブ等の使用があると考えられる。自動車排ガス、家庭での灯油の燃焼は、その含有PAHsパターンは類似しており(図-10)、夏は自動車排ガスからの負荷が主で、冬はそれに暖房排ガスの負荷が加わったとしても本研究のようなパターンになると考えられる。2)については、その揮発性は低分子成分が卓越すると考えられるが⁷⁾、本研究で夏に多く揮発することがその低含有量の原因であるとすれば夏と冬でPAHsパターンが異なってくるはずであるが、本研究ではその傾向は見られない。それゆえ揮発性が季節性の主因とは考えられない。3)については、PAHsの光変換は実環境中では気温や照度の増加に伴い上昇すること、またPAHs毎の違いは顕著ではないという点が明らかにされている¹⁵⁾。気温が高く照度が高い方が変換が多く生じるとすれば本研究のような傾向になり得るし、本研究で夏と冬の濃度パターンが同傾向であるという結果も生じうる。両方の点で本研究の結果とは矛盾せず、光変換性も季節性の主因の一つであろうと推察される。これらから1)and/or3)が本研究における季節性の原因であると考えられる。

負荷、流入形態毎の比較を行うことを目的として、大気降下物、非降雨時流入懸濁態および降雨時流入懸濁態のPAHsの含有量を比較した(図-11)。いずれもパターンとしては類似していることが分かる。降雨時流入が大気降下物と同じ形状であるのは、降雨時流入の発生源が大気降下物であるためと理解することもできよう。降雨時流入の発生源については次節で更に考察したい。

また、非降雨時流入水もこれらと同じであるということは、発生源がこれらと共通であることを示唆している。そこでそのPAHs発生源を考えてみると、本対象区域が業務、工業中心地区であり、また合流式であることから、オフィスからの流入、または、散水などを通しての路面負荷などが考えられる。PAHs含有パターンが大気降下物に類似しているということは特に路面からの寄与の可能性を示唆しているのではないだろうか。これらの発生源については今後更なる考察が必要になるであろう。

懸濁態と溶解態とで吸着平衡に達しているかを知ることを目的として、非降雨時及び降雨時流入水について、 $Koc = \text{POC 当りの懸濁態 PAHs 量}(\mu\text{g/g}) / \text{溶解態 PAHs 濃度}(\mu\text{g/ml})$ を計算し、水-オクタノール分配係数Kowとの関係を示した(図-12)。Kocの計算に際しては、非降雨時、降雨時ともに、各種類のPAHsごとに、全測定した懸濁態PAHs量、溶解態PAHs量の平均値を計算し、その両者に対する比とした。Schwarzenbachら¹⁶⁾による、様々な化学物質の水と懸濁物との吸着平衡実験に基づくKowとKocとの回帰式を合わせて示し

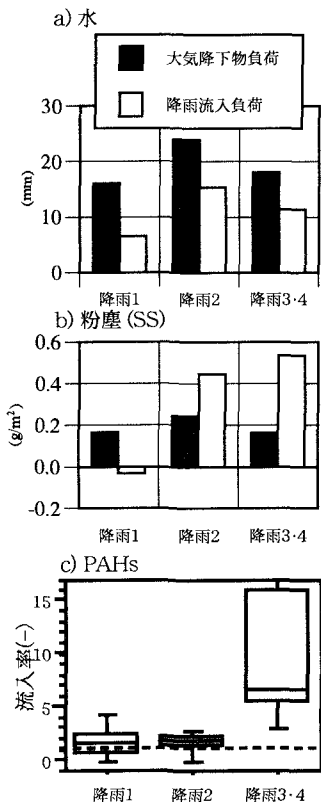


図-13 大気降下物と雨天時流出負荷
(PAHsのみ流入率を箱ひげ図で示した。破線は流入率1)

た。筆者らの実験値と、回帰式とを比較すると、殆どで回帰式よりもかなり高い値を示している。これらから、PAHsの発生源の段階では物質によらず懸濁態が主要な負荷源であり、その発生源の状態がかなりの程度維持され平衡からは遠い状態にあることを意味している。

4.2 降雨流入負荷量の把握

本研究で測定した4回の降雨に対して降雨流入負荷量と、同じ降雨時及びそれに先行する非降雨期間の大気降下物負荷量との比較を行なった。大気降下物負荷量は各降雨に先立つ採取期間の、処理区域内の全堆積物とした。計算としては二カ所の測定点(St. 1, 2)の単位面積当たりの負荷量の平均値に下水処理区域面積を乗じた。また降雨流入負荷量は、降雨時中各時間帯の(下水道流入口での流入量+直接放流量-非降雨流入量)を計算し、その全降雨時間帯の総和とした。PAHsなど含有物の直接放流量の算定に際しては、放流水中の含有濃度が下水道流入口でのそれに等しいとした。非降雨流入量として差し引く値は、各々の降雨時調査に最も近い時期の非降雨時の流入量調査の、同じ時間帯での負荷量とした。また降雨流入負荷/大気降下物負荷を「流入率」と定義した。本対象区域では懸濁態の寄与が卓越していたので、懸濁態のみの結果を示す。また、降雨3と4は時期が近接していたのでひとつの降雨として一括して計算した。

図-13に結果を示した。PAHsに関しては各PAHに対して大気降下物負荷と降雨流入負荷を求め、流入率を計算したが、すべてを示すことは煩雑になるため、その全PAHsの流入率の分布を箱ひげ図で示した。水の流入率が1以下であるのと比較して、SS、PAHsの流入率は降雨1のSSを除いて1よりも大きいことが分かる。その原因として、1)管内堆積物が降雨時に流入した、2)地表面堆積負荷量を過小評価した、の2点を考えた。

1)について考える。非降雨時と降雨時とでPAHs含量パターンが類似していることはこの推論を支持していると考えられる。しかし一方、含量で比較してみると降雨時の方が非降雨時よりも明らかに高い(図-11)。非降雨時の管内堆積物が懸濁物として流入しているのであれば、その懸濁態当たりのPAHs含有量は非降雨時のそれに近くなるはずであるが、そのような流入パターンにはなっていない。このことから管内堆積が降雨時流入の主要な負荷である可能性は低いと考えられる。

2)について、容器の問題から検討する。本研究のPAHsフラックスは他と比較してかなり小さい(図-9)。そこで測定法を比較すると、主な違いは、採取容器であった。すなわち、筆者らは縁の深い容器で全量を捕集しようとしたがMcVeetyとHites¹⁰⁾、Franzら¹¹⁾およびSheuら¹²⁾は捕集容器の底面にグリースを塗布したものをを用いている。筆者らと、それらの結果とで比較すると、PAHs堆積フラックスは、Chicago、台北市の方が筆者らの調査より中～高分子では10~100倍以上高い(図-9)。本研究で用いた容器がPAHsを捕集するに十分ではなく結果として2)のような事情が生じた可能性もある。しかし一方粉塵フラックスについては、前述のように全国の他の都市と比較しても大きな違いはなく、またChicago、台北市の結果とも大きな違いはなかった(2~5倍程度)。粉塵フラックスから見る限り捕集容器にそれほど問題があるとは考えられない。

粉塵フラックスとしては正確な値を出す一方でPAHsフラックスを過小に見積もる可能性としては、微細な粉塵を捕集し切れていないという事が考えられる。微細な粉塵は粉塵重量に対する寄与は小さいが、一方PAHs含量は高いと考えられるからである。しかしながら微細粉塵には粗大粒子と比較して高分子が多く付着していると言われており¹³⁾、そうであるとすれば筆者らは高分子を主に捕集し損ねているはずである。しかし晴天時堆積と降雨時流入とを比較してみるとPAHsパターンには違いは見られず(図-12)、また高分子の流入率のみが大幅に1を上回ったという結果を得ているわけでもない。微細粉塵を捕集していないことが地表面堆積の過小評価の原因であるとは考えにくい。

一方、自動車等から排出された排ガスで高く巻きあがることなく地表面にそのまま付着したり、また、タイヤ、アスファルトの破片などが同様に高く巻きあがることなく地表面に沈着する、ということが生じていたと

すれば、2)のような現象が生じると考えられる。非降雨時のPAHsの高い流入負荷についても、そのようにして沈着した固形物が、散水等によって管内に流入してくることによって生じているのではないか。そのためにPAHs含量パターンが大気降下物や、降雨時の負荷とも似てきたのではないかと推察される。

5. まとめ

都市域合流式下水道区域を対象に、粉塵、有機炭素、PAHsの大気降下による地表面堆積、非降雨時流入、降雨時流入量を調査することから、PAHsの動態解析を行った。主要な結論を以下に示す。

- 1) 地表面堆積ではその粉塵及びPOCの堆積フラックスは場所や季節によらず一定であり、粉塵の堆積フラックスは20~40(mg/(m²・d))であった。
- 2) 堆積したPAHsのSS中含量、堆積フラックスは夏期に低く、冬期に高くなるという傾向が得られた。
- 3) 降雨時流入調査において、SS、有機炭素、PAHsのファーストフラッシュ現象が確認された。
- 4) 降雨時流入負荷量は地表面堆積負荷量に比べ多く、その違いは地表面のごく近傍で発生した負荷が高く巻きあがることなく地表面に堆積したことに由来するものではないかと推測された。

本研究によって都市域における地表面堆積、合流式下水道流入における非降雨時、降雨時流入の特徴、及び発生源に関していくつかの知見が得られた。しかし、地表面堆積とその降雨時流入については十分に収支を取るには至らなかった。その原因は地表面のごく近傍に負荷があるためではないかと推測されたが、地表面そのものの堆積状況を正確に把握することは困難であり、その点をどのような方法で明らかにしていくかが今後の課題といえよう。

本研究は日本生命財団の平成11年度一般研究助成を受けた。記して感謝の意を表します。

参考文献

- 1) 和田安彦, 三浦浩之: 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, No. 559/VII-2, pp. 61-71, 1997.
- 2) 山田義行: 降雨時における高速道路路面からの排水に関する調査・研究, 土木学会第52回年次学術講演会, pp. 14-15, 1997.
- 3) 浅田素之, 大垣眞一郎: 都市域における降雨初期雨水排水中のベンゼン(a)の挙動, 水環境学会誌, Vol. 19, No. 11, pp.904-909, 1996.
- 4) 高島英二郎, 田中宏明, 中村栄一: 手賀沼流入河川における汚濁負荷量の流出特性および年間負荷量の把握, 水環境学会誌, Vol.18. No. 4, pp. 297-306, 1995.
- 5) 市木敦之, 大西敏之, 山田淳: 集水域における下水道整備進捗に伴う琵琶湖流入汚濁負荷量の変化, 水環境学会誌, Vol. 19, No. 2, pp. 109-120, 1996.
- 6) 尾崎則篤, 平位直也, 鷹田孝広, 山口登志子, 福島武彦: 有害化学物質の市街地への晴天時堆積とその雨天時流出, 環境工学研究論文集, Vol. 35, pp. 145-152, 1998.
- 7) Panther, B. C., Hooper, M. A. and Tapper, N. J.: A comparison of air particulate matter and associated polycyclic aromatic hydrocarbons in some tropical and temperate urban environments, Atmos. Environ., 33, pp. 4087-4099, 1999.
- 8) Smith, D. J. T. and Harrison, R. M.: Concentration, trends and vehicle source profile of polynuclear aromatic hydrocarbons in the U. K. atmosphere, Atmos. Environ., 30, pp. 2513-2525, 1996.
- 9) 環境庁大気保全局大気規制課, 平成8年度国設大気測定網(NASN)測定結果, 1997.
- 10) McVeety, B. D. and Hites, R. A.: Atmospheric deposition of polycyclic aromatic hydrocarbons to water surfaces: a mass balance approach, Atmos. Environ., 22, pp. 511-536, 1988.
- 11) Franz, T. P., Eisenreich, S. J. and Hosen, T. M.: Dry deposition of particulate polychlorinated biphenyls and polycyclic aromatic hydrocarbons to Lake Michigan, Environ. Sci. Technol., 32, pp. 3681-3688, 1998.
- 12) Sheu, H., Lee, W., Su, C., Chao, H. and Fan, Y.: Dry deposition of polycyclic aromatic hydrocarbons in ambient air, J. Environ. Eng., pp. 1101-1109, 1996.
- 13) Baek, S. O., Field, R. A., Goldstone, M. E., Kirk, P. W., Lester, J. N. and Perry, R.: A review of atmospheric polycyclic aromatic hydrocarbons: Sources, fate and behavior, Water, Air, and Soil pollut., 60, pp. 279-300, 1991.
- 14) Offenberg, J. H. and Baker, J. E.: Aerosol size distributions of polycyclic aromatic hydrocarbons in urban and over-water atmospheres, Environ. Sci., Technol., 33, pp. 3324-3331, 1999.
- 15) 尾崎則篤, 上野浩平, 山口登志子, 福島武彦: 都市地表面上における多環芳香族炭化水素類の光変換性, 環境工学研究論文集, Vol. 36, pp. 73-80, 1999.
- 16) Schwarzenbach, R. P., Gschwend, R. M. and Imboden, D. M.: Environmental Organic Chemistry, John Wiley Sons, 1993.