

(43) 雨天時道路排水における重金属流出負荷の 小型採水装置を用いた実態評価

村田 洸¹・小松 俊哉^{2*}・姫野 修司²・小池 薫²

¹長岡技術科学大学大学院 (〒940-2188 新潟県長岡市上富岡町1603-1)

現：日東エネルギー株式会社 (〒121-8505 東京都足立区六木1-19-13)

²長岡技術科学大学大学院 (〒940-2188 新潟県長岡市上富岡町1603-1)

* E-mail: koma@vos.nagaokaut.ac.jp

本研究の目的は、降雨開始から降雨終了までに発生する道路排水をより多く採水し、道路排水に含まれる重金属 (Cd, Cr, Pb, Zn, Cu) の流出特性を把握することである。採水に用いられる小型採水装置は、降雨中の道路排水を一定分割することで、コンポジットサンプルでの解析が可能となっている。

コンポジットサンプルの採水は15回成功し、含有する重金属を溶存態、微粒子、懸濁態に分けて測定した結果、微粒子や懸濁態などの粒子形態での流出が多く確認された。総降雨量、先行無降雨時間などの降雨パラメーターと重金属流出負荷量の関係性では、総降雨量によりPb流出負荷量が増大する傾向が確認された。さらに、各重金属の年間流出負荷原単位を算出した結果、Znが最も高い値であった。

Key Words : non-point pollution, stormwater road runoff, heavy metal loads, compact sampler

1. はじめに

わが国では、経済発展とともに、人口、産業、情報の都市集中化が進み、様々な活動の活発化に伴い、発生する汚濁物質も急激に増加してきた。その問題に対応するため、1970年以降に水質規制、公共下水道整備、排水処理施設の整備が急激に進められ、平成19年3月31日時点での全国の下水道処理人口普及率は70.5%となっている。特に東京都における下水道処理人口普及率は、98.7%となっている¹⁾。しかし、このような対策技術をもっても、除去できない汚濁物質が数多く存在している。たとえば、大気中の浮遊物質や粉塵、そしてこれらが降雨に溶解した汚濁物質、都市内を移動する交通等によって排出される排気ガスやごみ、ほこり、タイヤかす、アスファルトかす等により発生する汚濁物質である。これらがノンポイント汚染負荷の一部であり、このような特定できない汚濁負荷がノンポイント汚染源負荷である²⁾。様々な汚濁負荷削減技術の実施により、公共用水域の水質は改善されてきた。しかし、なかなか更なる改善が見られていないのが現状であり、これは、公共用水域に流入する汚濁物質の中で、特定汚染源からのものの比率が低下する一方で、相対的にノンポイント汚染源からの汚濁物質の比率が増加しているためと考えられる。

これらの中で、市街地の路面や屋根等から流出する汚濁負荷量は、都市化の進行に伴って増加する傾向にある。特に、雨天時道路排水として公共用水域へ排出されるノンポイント汚染源は、自動車排ガスを含む道路粉塵、工場やゴミ焼却場からの煤煙等により由来し、一部発ガン性物質である多環芳香族炭化水素類等の微量有害物質や重金属類等が含まれている。そのため、水環境や水域生態系への影響が懸念されている³⁾。

雨天時道路排水に関する研究は多くなされているが、既往の研究では、発生量が膨大であること、さらには非定常な流出をすることから、初期降雨段階 (ファーストフラッシュ) や単独降雨を対象としたものが多く、降雨開始から降雨終了まで採水を行っている研究はほとんどない。しかし、より信頼性の高い水環境への負荷量のデータを得るためには、降雨開始から降雨終了時まで採水を行ったコンポジットサンプルでの調査による正確な観測データが必要と考えられる。しかしながら、降雨開始から降雨終了時まで発生する道路排水の流出量は、非常に膨大なものになることから、全量採水は事実上不可能である。

そのため、本研究では、独自に開発した採水装置を用いて、降雨開始から降雨終了時まで発生する実道路排水のコンポジットサンプルをより多くの回数採水し、道

路排水中に含まれる重金属類の長期観測を行うことと、各降雨条件の影響を考慮した重金属類の流出挙動を把握し、流出負荷量を明確にすることを目的とした。また、路面からの負荷を明確にするために、現場付近の雨水も同時に採水して測定を行った。

2. 採水および測定方法

(1)道路排水および雨水の採水方法

一降雨の道路排水全量を採水することは、非常に困難なため、装置内に流入してくる道路排水を均等分割し、必要量のみ採水することが可能な採水装置を用いて採水することとした。採水装置は雨水排水管に直接接続・設置し、一定面積から流入する雨天時道路排水の採水を行うことが可能である。採水装置の概要を図-1に示す。採水装置上部から雨天時道路排水が流入してくると、最上部の2mmメッシュスクリーンで夾雑物を除去し、懸濁物除去フィルターにて大よそ200 μ m以上の懸濁物を捕集した後、道路排水が自動間欠送水槽に流入し、一旦貯留される。自動間欠送水槽内で一定量貯まると、下段の底部に50個の穴を開けた分割槽へ一定水量が流れ、1つの流出孔(穴)から流出した排水が最下段の採水タンクに流入する仕組みとなっている。

採水装置は、新潟県長岡市にある河川に架かる橋梁下の既設雨水排水管に設置した。この雨水排水管が受け持つ排水面積は、実際に晴天時および雨天時に着色水を散

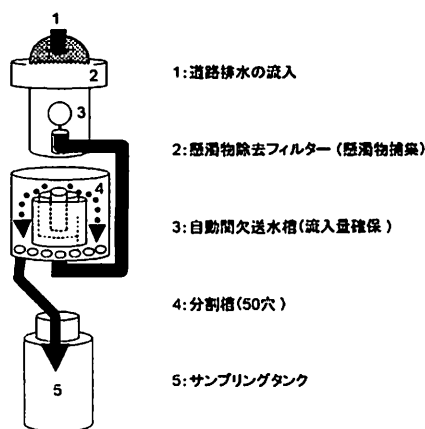


図-1 採水装置の概要

表-1 本装置の分割性能

	流出量士標準偏差 (ml)	変動係数 (-)	分割数 (-)
50分割装置	204 $\pm$ 11 (184~226)	0.06 (0.02~0.12)	50 $\pm$ 3 (44~56)

* ()内はデータの範囲

* 理論流出量は200ml

水し、確認を行った結果、35m²であった。また、降雨量は、本学の課外活動共用施設屋上に設置している雨量計により観測した。

そして、採水装置は、毎回採水前後に、水道水10Lを流入させる分割性能の確認試験を行っており（降雨強度を変動させて採水前後それぞれ5回）、その結果を表-1に示す。平均流出量士標準偏差が204 $\pm$ 11ml（理論流出量200ml）、平均分割数士標準偏差が50 $\pm$ 3、変動係数が0.06であり、安定した分割採水が行われたことが分かる。

また、道路排水の採水と同時に、同時期における雨水を現場付近でプラスチック製バケツを用いて採水を行っている。

(2)道路排水の採水実施時の降雨状況

採水は2008年4月下旬から2008年11月中旬にかけて行い、この期間中、道路排水の継続的な採水に成功したコンポジットサンプル数は15となった。継続的な採水を行うことができた降雨量は213mmであり、この間の全降雨量は979mmであったことから、全降雨量の約22%を採水できたことになる。これを、降雨日数で示した場合には、全降雨日数81日に対して36日分（全降雨日数の44%）に相当する。なお、コンポジットサンプルを採水できなかった場合、その主な原因は、累積の降雨量

表-2 道路排水を採水したサンプルの降雨諸元

採水日 (-)	総降雨量 (mm)	最大降雨強度 (mm/hr)	先行継続降雨時間 (hr)
4月24日 8:11 ~ 4月28日 2:22	10.0	1.5	126
5月5日 15:55 ~ 5月8日 18:09	20.0	6.5	182
5月10日 11:44 ~ 5月11日 8:23	9.5	3.5	53
5月31日 7:23 ~ 5月31日 20:31	16.5	4.0	41
6月3日 9:25 ~ 6月3日 12:30	2.5	1.0	59
6月5日 17:50 ~ 6月5日 24:39	14.0	3.0	52
6月19日 17:53 ~ 6月24日 9:04	4.0	1.0	327
7月4日 6:44 ~ 7月4日 10:10	7.5	3.5	95
7月18日 9:09 ~ 7月21日 23:00	7.0	3.0	91
8月24日 9:09 ~ 8月25日 20:57	19.0	3.0	57
8月28日 16:48 ~ 9月3日 23:04	16.5	3.0	66
10月5日 15:39 ~ 10月7日 4:33	32.0	5.0	171
10月11日 1:32 ~ 10月11日 11:17	21.5	4.0	91
10月31日 23:31 ~ 11月4日 7:28	33.0	8.5	38
11月7日 11:14 ~ 11月10日 18:35	8.0	2.0	82

がサンプリングタンクの容量 (30L) を超えた場合と、降雨強度が高く (およそ 12mm/hr 以上) 自動間欠送水槽から溢水が生じた場合の 2 つである。

表-2 に道路排水の継続採水に成功したサンプルの降雨緒元を示す。1 サンプルの総降雨量は 2.5~33.0mm (平均値:14.7mm, 中央値:14.0mm), 最大降雨強度は 1.0~8.5mm/hr (平均値:3.5mm/hr, 中央値:3.0mm/hr), 先行無降雨時間は 38~327 時間 (平均値:109 時間, 中央値:91 時間) であった。最大降雨強度は, 実時間として 1 時間をもとにした最大値である。また, 表-2 に示した開始日時と終了日時は, 降雨が確認された最初及び最終の時間であり, その間に降雨が中断している期間も含まれる。すなわち, 実際には複数日・複数回数の降雨で発生した道路排水サンプルであることも多い。

一方, 現場付近にて採水した降雨のサンプル数は, 初回のみ失敗したため 14 である。降雨量は大学に設置した雨量計による値であるが, 実降雨の採水量から現場での降雨量を求めたところ, 雨量計による観測値に対して $91 \pm 14\%$ であったことから, 降雨量の測定は正確であったと考えられる。

次に, 降雨パラメーター間の相関を確認したところ, 総降雨量と最大降雨強度で相関係数 $r=0.83$ ($p<0.05$) であり, 高い相関が確認された。一方, 先行無降雨時間と総降雨量, 先行無降雨時間と最大降雨強度においては, 有意な相関が見られなかった (相関係数は, それぞれ -0.15, -0.19)。そこで, 本論文では, 濃度及び負荷量との関係性を検討するのは, 総降雨量及び先行無降雨時間のみとした。

(3) 分析方法

分析項目は, 主に重金属類濃度 (Cd, Cr, Pb, Zn, Cu) であり, 重金属類濃度は, 採水装置により分割され, 採水タンクに貯まった水サンプルおよび懸濁物に分類し, 測定を行った。水サンプルおよび懸濁物は, 降雨終了後に回収した。水サンプルは, 1 μ m のガラス繊維ろ紙を用いてろ過したろ液 (以下: 溶存態) と, ろ紙上に残った微細物質 (>1 μ m) (以下: 微粒子) を分析した。以上の水サンプル及び雨水は, とともに前処理として下水試験法に基づき硝酸分解を行い, ICP 発光分光分析装置 (以下: ICP) にて測定を行った。また, 懸濁物除去フィルターで捕集した懸濁物は, 環境省告示 19 号法 (含有量試験) に従い, 夾雑物を除去後に一定量を風乾し, 2mm メッシュを通過した試料について塩酸による前処理を行い, 水サンプルと同様に ICP にて測定を行った。そして, 懸濁態の含有量測定値と道路排水の全水量 (分割前) をもとに水中濃度に換算した。以下, 懸濁態濃度とする。

以上のように, 溶存態, 微粒子, 懸濁態の濃度をそれ

ぞれ求めた。そして, それらの合計濃度を重金属類の全濃度とした。なお, 19号法等における重金属の溶解の限界から, 全濃度とは必ずしも適切な表現とは言えないが, 概ね含有量に近い値を示すと考えられるため, 本研究では全濃度と表記することにした。

3. 結果と考察

(1) 道路排水中と雨水中の重金属類濃度の比較

道路排水コンポジットサンプル (15 サンプル) と雨水 (14 サンプル) に含まれる重金属類の全濃度の平均値と標準偏差を表-3 に示す。まず, 大まかな濃度レベルの把握のために本研究で採水された雨水の濃度を既存の研究^{4)~7)}と比較したところ, Pb 以外は同レベルであったのに対して, Pb 濃度が僅かに高い傾向にあった。次に, 本研究において, 雨水と道路排水に含まれる重金属濃度を比較した結果, Cd は道路排水でのみ検出され, 他の重金属も雨水に比べ高い濃度で検出された。ただし, 道路排水で Cd が検出されたのは, 6 月 19 日~24 日のサンプルと 7 月 4 日のサンプルの 2 回のみである。

Cr, Pb, Zn, Cu はそれぞれ雨水より 5.7 倍, 2.9 倍, 3.4 倍, 4.7 倍高い値で道路排水中に含まれており, Pb と Zn が水質環境基準値を上回っていた。Pb に関して, 比較的雨水にも含まれ, 道路排水中の濃度のおよそ 3 分の 1 程度であることが報告されており⁴⁾, 本研究においても同様の結果となった。すなわち, Pb は雨水に対する比が最も低く, 他の重金属よりも降雨の影響が強いと考えられる。しかし, 全ての重金属において道路排水中の重金属濃度が雨水より高いことから, 自動車交通などによる路面への負荷が現れていることが明らかとなった。

(2) 道路排水に含まれる重金属類の存在割合

道路排水 (15 サンプル) に含まれる重金属類の平均存在割合を表-4 に示す。Cd, Cr, Zn および Cu は, 懸濁態にて高い存在割合が確認された。特に, Cd は懸濁態でのみ検出された。一方, Pb は微粒子に多く含まれていた。また, 溶存態, および微粒子+懸濁態 (粒子状) で存在割合を比較したところ, 全ての重金属におい

表-3 道路排水と雨水に含まれる重金属類全濃度の平均値と標準偏差 (mg/L)

	Cd	Cr	Pb	Zn	Cu
道路排水 (N=15)	0.00022 ± 0.00008	0.007 ± 0.011	0.023 ± 0.014	0.110 ± 0.115	0.021 ± 0.022
雨水 (N=14)	<0.0002 -	0.001 ± 0.001	0.008 ± 0.003	0.033 ± 0.022	0.004 ± 0.003
道路排水/雨水 (比)	-	5.7	2.9	3.4	4.7
水質環境基準値	0.01	0.05*	0.01	0.03	-

*六価クロムの基準値

て、微粒子+懸濁態の粒子状物質に多く含まれることがわかった。しかし、PbとCuは、溶存態の存在割合が相対的には高かった。

平均値は以上のような結果であったが、各サンプルの形態割合を確認したところ、平均値と大きく異なる結果を示しているサンプルもあった。それは、降雨の降り方や先行無降雨時間などの様々な要因が各形態濃度に寄与

表-4 各重金属の各形態における平均存在割合

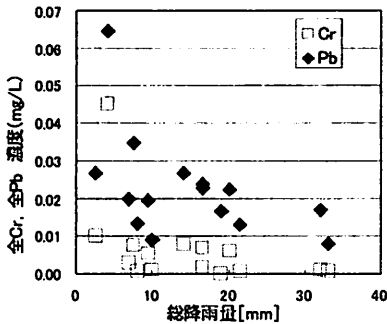
	Cd	Cr	Pb	Zn	Cu
溶存態	0	9	32	21	34
	-	±21	±10	±24	±18
微粒子	0	29	41	35	27
	-	±24	±14	±22	±14
懸濁態	100	62	27	44	39
	0	±25	±18	±23	±20

上段: 平均存在割合(%)
下段: 標準偏差(%)

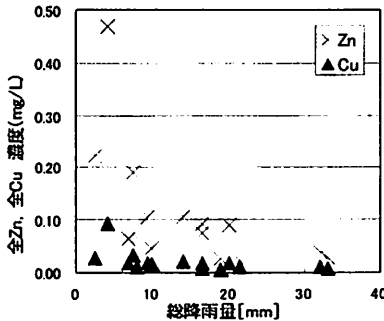
表-5 総降雨量と各存在形態濃度との相関係数 (r 値)

	全濃度	溶存態濃度	微粒子濃度	懸濁態濃度	微粒子+懸濁態濃度
Cd	-0.44	-	-	-0.44	-
Cr	-0.45	-0.28	-0.49	-0.38	-0.44
Pb	-0.50	-0.32	-0.60*	-0.32	-0.49
Zn	-0.59*	-0.31	-0.51*	-0.41	-0.57*
Cu	-0.51	-0.55*	-0.54*	-0.42	-0.51

*: p<0.05



(a) 全 Cr、全 Pb



(b) 全 Zn、全 Cu

図-2 総降雨量と重金属類の全濃度との関係

していることが考えられる。そのため、一様の傾向を示さなかったと考えられる。

また、既存の研究⁹⁾では、0.5μm以下を溶存態、0.5μm～75μmを微粒子、75μm～2000μmを懸濁態としており、本研究とは各形態の定義が若干異なるが、比較したところ、どちらの研究においても粒子形態（微粒子+懸濁態）での流出が多く見られた。既存の研究では、高速道路からの排水を採水対象としているが、本研究も同様の傾向が見られていることから、自動車交通などによって発生する路面上堆積物の影響を強く受けていることが考えられた。

(3)道路排水に含まれる重金属類濃度の特性

降雨諸元として総降雨量、先行無降雨時間を用い、それぞれの重金属の各形態濃度との関係性を検討した。

a) 総降雨量と重金属類濃度との関係

表-5に総降雨量と各存在形態濃度との相関係数を示す。総降雨量と重金属類の全濃度との関係では、全ての重金属において総降雨量が多いと濃度が低くなる傾向が見られた。特に、全Zn濃度は総降雨量との相関係数rが-0.59 (p<0.05)であり、有意性も確認された。総降雨量と重金属類の全濃度の関係を図-2に示す（検出が僅かであったCdを除く）。総降雨量と全濃度の関係は、単調減少する指数関数のような傾向をもつように見受けられる。すなわち、総降雨量が増大すると、濃度が低下するが、次第に一定濃度に近づくようになっていく。また、Pb、Zn、Cuは、全濃度だけでなく、微粒子、および微粒子+懸濁態濃度でも同様の傾向が見られたことから、粒子形状の物質は総降雨量が少ない時にも流出することがわかった。こうした濃度特性は、粒子状物質は流出開始時の段階でも流出するという汚濁物質の時間変化を観測している既存の研究⁹⁾と類似の傾向を示している。

b) 先行無降雨時間と重金属類濃度との関係

表-6に総降雨量と先行無降雨時間との相関係数を示す。全ての重金属において、先行無降雨時間と、全濃度、懸濁態濃度、微粒子+懸濁態濃度のいずれとも有意な正の相関を示したことが分かる。しかし、先行無降雨時間の値として327時間（約13日）の値だけが突出していた。この値により相関係数が高くなる可能性があるため、これを除き、各重金属類の全濃度と先行無降雨時間の相関係数を確認したところ、Cd: -0.13, Cr: -0.14, Pb: -0.07, Zn: -0.07, Cu: 0.00であり、全く相関がなかった。

以上のように一様の関係性は確認できなかったが、

表-6 先行無降雨時間と各存在形態濃度との相関係数 (r 値)

	全濃度	溶存態濃度	微粒子濃度	懸濁態濃度	微粒子+懸濁態濃度
Cd	0.72*	-	-	0.72*	-
Cr	0.76*	0.46	0.28	0.79*	0.76*
Pb	0.68*	0.27	0.04	0.80*	0.70*
Zn	0.67*	0.50	0.01	0.74*	0.83*
Cu	0.77*	0.71*	0.42	0.76*	0.74*

*:p<0.05

先行無降雨時間が突出していたサンプル(採水日:6月19日~24日)については、各重金属の全濃度および懸濁態濃度が全て最大値を示しており、先行無降雨時間中の堆積物が、総降雨量4.0mmと少ない降雨量で流出した可能性が考えられる。この結果から、先行無降雨時間の長さにより堆積物量が増加する可能性も示唆された。

本来ならば、先行無降雨時間が長ければ、堆積物が路上に蓄積し、降雨時には一気に流れ濃度が高くなると考えられたが、今回は、上記のサンプルを除いては先行無降雨時間に伴った濃度の増加は明確には表れなかった。これは、採水地点である河川の橋梁付近は風が強いことが影響していると考えられる。先行無降雨時間の間に、橋梁付近で自然に発生する風や、自動車通行時に発生する風などにより、堆積物が飛散していたため、明確な関係が見られなかったと思われる。

(4)道路排水に含まれる重金属類の負荷特性

a) 重金属類の流出負荷量の算出

降雨諸元として総降雨量、先行無降雨時間を用い、それぞれの重金属の各形態流出負荷との関係性を検討した。まず、各採水サンプルにおける重金属類の単位面積当たりの流出負荷量は次式(1a)を用いて算出した。ここで、濃度とはコンポジットサンプルにおける各態濃度または全濃度である。

流出負荷量 [mg/m²]=

$$\frac{\text{濃度 [mg/L]} \times 10^3 \times \text{総降雨量 [mm]} \times 10^{-1} \times \text{排水面積 [m}^2\text{]}}{\text{排水面積 [m}^2\text{]}} \dots (1a)$$

b) 総降雨量と重金属類の流出負荷量との関係

表-7に総降雨量と各重金属の各形態負荷との相関係数を示す。また、図-3に総降雨量と各重金属の単位面積当たりの全流出負荷量を示す(Cdを除く)。単位面積当たりの全流出負荷量では、Pbのみが直線的に増大する傾向があり、相関係数 $r=0.67$ で有意性($p<0.05$)も確認された。一方、他の重金属については、Zn、Cuの溶存態負荷など一部を除いては有意な正の相関がみられなかった。また、微粒子+懸濁態でも、Pbが有意($p<0.05$)に増大する傾向があり、相関係数 $r=0.52$ であった。そのため、Pbは溶存態や粒子形態(微粒子+懸濁態)に関わらず、総降雨量の増大に伴い流出するこ

表-7 総降雨量と各存在形態の流出負荷量との相関係数 (r 値)

	全負荷	溶存態負荷	微粒子負荷	懸濁態負荷	微粒子+懸濁態負荷
Cd	-0.35	-	-	-0.35	-
Cr	-0.16	0.18	0.03	-0.25	-0.19
Pb	0.67*	0.78*	0.49*	0.25	0.52*
Zn	0.07	0.71*	0.07	-0.29	-0.22
Cu	0.34	0.84*	0.45*	-0.31	-0.07

*:p<0.05

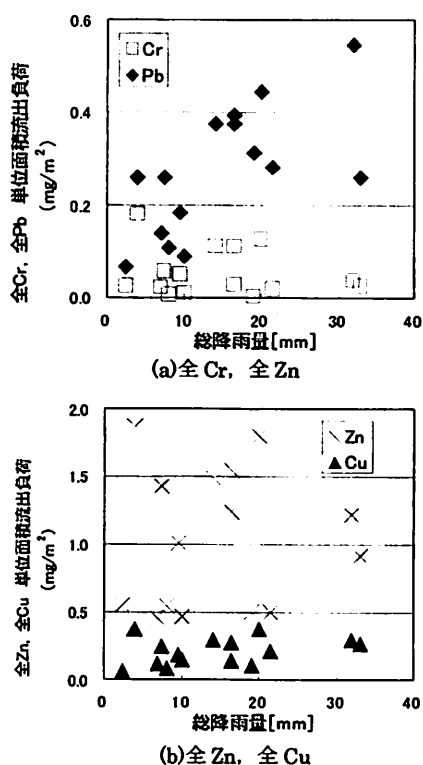


図-3 総降雨量と重金属類の全流出負荷量との関係

とがわかった。

Pbは、既存の研究において、鉛同位体比分析により、流出時間や粒径区分、地点間に差がなく、大気降下物の影響も小さいことから、自動車に起因した鉛発生源の影響が大きいと考えられている⁹⁾。すなわち、自動車走行に伴いホイールバランスウェイトなどの自動車用の鉛製品から、走行中のその場での発生である。しかし、本研究においては、雨水中濃度が比較的高いことから大気降下物の影響も少なくないと考えられる。総降雨量と相関があった理由として、Pbは雨水にも比較的多く含まれていたことと、自動車走行中の発生・流出に大きく寄与すると考えられる採水期間中における実際の降雨時間が、総降雨量が多いほど長かったことが確かめられており、そのことが影響したものと考えられる。

Zn の全流出負荷量は総降雨量との関係性は確認されなかったものの、他の重金属に比べ、高い値を示していた。Zn は、タイヤに含まれる加硫促進助剤が原因の1つとして挙げられており¹⁰⁾、実際にタイヤに高濃度で含有されていることが報告されている⁹⁾。その他の重金属 (Cd, Cr, Cu) の全流出負荷量も総降雨量との関係性は確認されなかった。なお、Cr に関しては、発生源として挙げられている黄色の路面表示用塗料⁹⁾が、今回の採水区域には用いられていない。

次に、溶存態の負荷量では、Pb, Zn, Cu が総降雨量との間で、有意 ($p<0.05$) な正の相関が確認された。また、それぞれの相関係数 r は 0.78, 0.71, 0.84 であり、総降雨量に伴い、負荷量が増加する傾向が見られた。溶存態は降雨由来か、または道路に残る堆積物から降雨に溶け込むことで流出することが原因と推察される。

c) 先行無降雨時間と重金属類の流出負荷量との関係

表-8 に先行無降雨時間と各重金属の各形態負荷との相関係数を示す。図-4 に先行無降雨時間と各重金属の単位面積当たりの全流出負荷量を示す。先行無降雨時間と全 Cr, 全 Cu 流出負荷量に、有意 ($p<0.05$) な増大傾向が見られ、相関係数 r はそれぞれ 0.59, 0.57 であった (表-8)。しかし、(3) b) (濃度との関係) での考察と同様に、突出していた 327 時間 (約 13 日) の値を除き、相関係数を確認したところ、それぞれの相関係数は、Cd : -0.18, Cr : 0.13, Pb : 0.34, Zn : 0.21, Cu : 0.39 であり、有意な相関関係が確認されなかった。

Cr や Zn は、先行無降雨時間が 327 時間で最大となったため、先行無降雨時間の影響がある可能性も示唆されるが、上記のように明確には現れなかった理由として次のことが推察される。①採水地点が橋梁下であるため、自然に吹く風や自動車交通時に吹く風が非常に強く、先行無降雨時間が長くなっても、堆積物が蓄積しにくい。②堆積したとしても、降雨の降り方が流出に大きく影響するため、先行無降雨時間の影響が明確には表れにくい。

推察①について、先行無降雨時間と懸濁物量を確認したところ、先行無降雨時間に伴い蓄積しているといった傾向は確認されなかった。これは、(3) c) にも述べたように風の影響が強いことも考えられる。このように、単純に堆積物が蓄積するのではなく、メカニズムが複雑で、先行無降雨時間に伴い一様に堆積物が蓄積するものではないと考えられる。

例えば、土壌などは自動車のタイヤに付着したものが、道路に残ることが考えられる。しかし、その車が通ってきた道路の違いで、タイヤへの付着量にも差が生じ、当然車が通過した時に、道路に残る堆積物量も異なることが推察される。既存の研究では¹¹⁾、Cu は土壌粒子

表-8 先行無降雨時間と各存在形態の流出負荷量との相関係数 (r 値)

	全負荷	溶存態負荷	微粒子負荷	懸濁態負荷	微粒子+懸濁態負荷
Cd	0.43	-	-	0.43	-
Cr	0.59*	0.11	0.18	0.65*	0.60*
Pb	0.17	0.01	-0.20	0.60*	0.28
Zn	0.48	0.14	0.05	0.43	0.41
Cu	0.57*	0.18	0.22	0.56*	0.56*

*: $p<0.05$

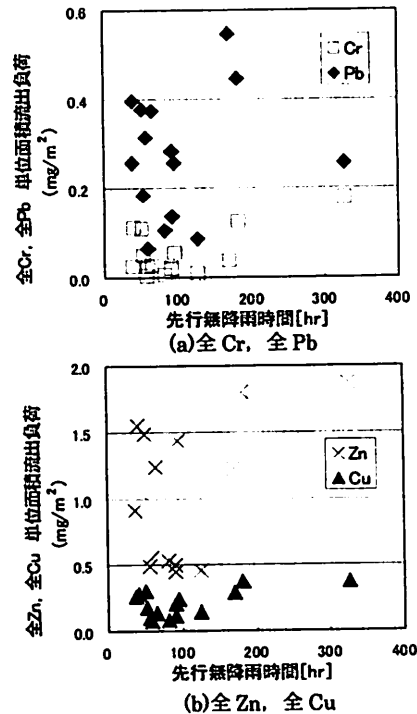


図-4 先行無降雨時間と重金属類の全流出負荷量との関係

への親和力が強いという報告もある。従って、このような複雑な蓄積メカニズムが原因で先行無降雨時間と各形態の重金属の間では、明確な関係が確認されなかったと考えられる。

次に、推察②について、総降雨量と各形態の重金属の関係でも、各形態のそれぞれの重金属ごと異なる傾向が確認されている。したがって、それぞれの降雨の特徴により流出負荷量が異なるため、先行無降雨時間との関係では、明確な関係が表れなかったことが示唆される。

d) 重金属の全流出負荷量間の関係

重金属の全流出負荷量間の相関係数を表-9 に示す。その結果、Pb と Cd, Pb と Cr の間以外は、有意 ($p<0.05$) な正の相関が得られていた。特に、Cr, Zn, Cu に関しては相互に 0.8 以上の高い相関を示したことから、全流出負荷に大きな影響を与える路面堆積物中に

表-9 重金属負荷量の間の相関係数 (r 値)

	Cd	Cr	Pb	Zn	Cu
Cd	1				
Cr	0.78*	1			
Pb	0.21	0.39	1		
Zn	0.73*	0.89*	0.63*	1	
Cu	0.57*	0.82*	0.66*	0.85*	1

*:p<0.05

において、これら3重金属は時期が異なってもその構成比が概ね一定であったと考えられる。

一方、Pbに着目すると、Zn、Cuとの間では、有意な正の相関があったものの、それぞれの相関係数は0.63、0.66とさほど高くなく、またCd、Crとの間には有意な相関が見られなかった。全Pbの流出負荷量は、唯一、総降雨量と有意な正の相関があり、また降雨由来の負荷も比較的大きかったことから、他の重金属とは流出挙動が大きく異なるため、他の重金属との相関係数が低くなったと考えられる。

(5)年間流出負荷原単位の算出

本研究で得られたデータをもとに、採水できなかった降雨も含めて各重金属類の年間流出負荷原単位の算出を行う。Pbについては、総降雨量と流出負荷量の関係で有意な正の相関が確認されたため、Pbの原単位は、その関係間の回帰式 (1b) を用いて算出する。また、その他の重金属は、既存の算術式⁹⁾ (1c) を用いて算出する。

$$Pb : y = 0.0101x + 0.1239 \quad \dots (1b)$$

x : 2008年4～11月の1降雨当たりの総降雨量 [mm]

y : Pb負荷原単位 [mg/m²/降雨]

$$\text{流出負荷原単位} \left[\frac{\text{kg}}{\text{km}^2 \cdot \text{year}} \right] = \frac{\text{年間降雨回数}}{\text{調査回数}} \times \sum \frac{\text{道路流出負荷} [\text{g}]}{\text{道路面積} [\text{km}^2]} \times 10^{-3} \quad \dots (1c)$$

ここで、式 (1b)、(1c) における1降雨あるいは降雨回数とは以下のように定義した。採水できなかった降雨では、本研究において複数日・複数回数の降雨のサンプルを対象としたことが多かったのに合わせて、降雨日における1日当たりの総降雨量のデータから、降雨日が連続した場合は、その間を降雨回数1とした。連続しない場合は、1日の降雨日で降雨回数1となる。その結果、4月から11月の8ヶ月間の降雨回数は46回となった。Pbにおいては、このように求めた1降雨の各総降雨量を回帰式に代入して、累積の値を算出した。そして、それぞれ算出した値の1.5倍を各重金属類の年間流出負荷原単位とした。

表-10に本研究で算出した流出負荷原単位 (長岡市) と、比較のため、新矢ら⁹⁾が式 (1c) を用いて算出

表-10 算出した年間流出負荷原単位

	Cd	Cr	Pb	Zn	Cu
長岡市(本研究)	0.02	2.5	18.9	47.6	9.8
大阪市(新谷ら)	0.5	5.4	24.5	450	45.1

単位: kg/km²・year

した流出負荷原単位 (大阪市) を示す。なお、本研究において Pb 流出負荷原単位を (1c) を用いて算出した場合は 12.6 kg/km²/year となる。新矢らが採水を行った地点は、高架高速道路の排水管である。また、降雨初期 (流出開始後2時間以内) での採水データから算出したものである点が本研究とは異なる。

両者の値を比較すると、本研究の値に対して Zn 流出負荷は9.5倍、Cu 流出負荷は4.6倍など、新矢らの方が全体的に大幅に高い値を示している。この原因として、本研究での橋梁よりも交通量が格段に多い高架高速道路からの道路排水であることが影響していると考えられる。しかし、Pb 流出負荷に関しては、交通量の差が大きいにも関わらず、本研究は新矢らと比較的近い値を示した。本研究において Pb 流出負荷量が相対的に高く算出された理由としては、Pbが雨水にも比較的多く含まれるため採水時間が長い本研究では負荷量が大きく算出されることと、Pb 流出負荷量が総降雨量と相関があり、回帰式 (1b) を用いて算出したことが影響したと考えられる。

4. 結論

本研究では、独自に開発した採水装置により道路排水のコンポジットサンプルの採水が可能となった。それを用いて、2008年4月～2008年11月にわたり、雨天時道路排水を計15回採水し、それに含まれる5種類の重金属類 (Cd, Cr, Pb, Zn, Cu) 各形態濃度および単位面積当たりの負荷量の特性把握を、総降雨量や先行無降雨時間に基づいて行った。本研究の主な結論は以下のようになる。

- (1) 道路排水中の各重金属は粒子形態に多く含まれており、Cd, Cr, ZnおよびCuは、懸濁態にて高い存在割合を示し、Cdは懸濁態でのみ検出された。また、いずれも溶存態の存在割合は低く、道路上堆積物が多く流出していることが考えられた。
- (2) 雨水と道路排水に含まれる重金属濃度を比較したところ、Cdは道路排水でのみ検出され、Cr, Pb, Zn, Cuはそれぞれ雨水より平均で5.7倍、2.9倍、3.4倍、4.7倍高い値で道路排水に含まれていた。その中ではPbは雨水に対する倍率が最も低く、降雨の影響も少なくないことが明らかとなった。
- (3) 全ての重金属の全濃度は、総降雨量と負の相関を

示し、Znは有意性も確認された。また、微粒子濃度および懸濁態濃度も同様の傾向を示した。

- (4) 総降雨量とPb全流出負荷量において、有意な正の相関があった。その理由として、Pbは雨水にも比較的多く含まれていたことと、自動車走行中のその場での発生・流出が考えられた。他の重金属の全流出負荷量は、総降雨量との有意な関係は認められなかった。
- (5) 各重金属の流出負荷量で、先行無降雨時間の影響が明確に示される結果は得られなかった。原因として、採水地点が河川の橋梁であるため、風の影響が強いことなどが考えられた。
- (6) 年間流出負荷原単位を、各重金属の流出特性を考慮して、既存の算術式、または総降雨量と単位面積当たりの流出負荷量の関係から得られた回帰式(Pb)を用いて求めた結果、Cd: 0.02, Cr: 2.5, Pb: 18.9, Zn: 47.6, Cu: 9.8 (単位: kg/km²/year)と算出された。

参考文献

- 1) 社団法人 日本下水道協会:平成 18 年度版 下水道統計, 第 63 号, pp. 25 (2008)
- 2) 和田安彦:ノンポイント汚染源のモデル解析, 技報堂出版 株式会社, 序論 (1990)
- 3) 脇岡昭明ら:自動採水・測定装置を用いた分流式下水道排水区における長期連続雨天時都市ノンポイント負荷流出調査, 水環境学会誌, Vol. 26, No. 4, pp. 237-242 (2003)
- 4) 三島聡子ら:高架道路から水域への重金属の流出と由来, 環境化学, Vol. 15, No. 2, pp. 335-343 (2005)
- 5) 濱田康治ら:有明海沿岸クリーク地帯に位置する農地ブロックからの重金属負荷, 環境工学研究論文集, 第 44 巻, pp. 391-396 (2007)
- 6) H.L.Nguyen et al.: Heavy metals in Lake Balaton: water column, suspended matter, sediment and biota, Science of the Total Environment, 340, pp. 213-230 (2005)
- 7) Yael Mason et al.: Behavior of Heavy Metals, Nutrients, and Major Components during Roof Runoff Infiltration, Environ. Sci. Technol., 33, pp. 1588-1597 (1999)
- 8) 新矢将尚ら:高速道路排水における汚濁負荷の流出特性, 用水と廃水, Vol. 44, No. 3, pp. 207-213 (2002)
- 9) 新矢将尚:ノンポイント汚染-雨天時水質汚濁の現状と対策-, 生活衛生, Vol. 52, No. 2, pp. 87-97 (2008)
- 10) 内藤航ら:詳細リスク評価書 亜鉛, (財)産業技術総合研究所 化学物質リスク管理研究センター (2007)
- 11) 尾崎宏和ら:上高地周辺の観光道路における土壌および道路わき粉塵の重金属濃度の長期変動, 環境化学, Vol. 15, No. 2, pp. 287-298 (2005)

(2009.5.22受付)

Evaluation of heavy metal loads of stormwater road runoff using compact sampler

Kou MURATA¹, Toshiya KOMATSU², Shuji HIMENO², Kaoru KOIKE²

¹ Dept. of Civil and Environ. Eng., Nagaoka Univ. of Tech
Present:Nittoh Energy Corporation

² Dept. of Civil and Environ. Eng., Nagaoka Univ. of Tech

The purpose of this study is to measure heavy metals contained in road runoff for many rainfall events, and to clarify the heavy metal loads under various rainfall conditions. Sampling of road runoff was conducted using a new developed compact sampler which can accurately divide water volumes into a fixed ratio.

Concentrations of five heavy metals (Cd, Cr, Pb, Zn and Cu) in the fifteen composite samples were measured. In most cases, heavy metals were existed mainly in particulate form. Among five heavy metals, only Pb load showed a significant correlation with the total rainfall amounts. Further more, annual load of each heavy metal was estimated using the measured value. As the results, the highest load was verified in Zn.