

立命館大学理工学部 市木敦之

(株)東京設計事務所 安随幸一郎

立命館大学大学院 ○山下博之 長田恭典 成瀬貴雅

1. はじめに

高速道路は、交通量の多さや高速走行により、質的・量的にも汚濁のポテンシャルが高いと考えられる。自動車排気ガス、特にディーゼル排気粒子(DEP)には化石燃料の燃焼にともない発生する多環式芳香族炭化水素(PAHs)が含まれており¹⁾、これには発ガン性や環境ホルモン作用が指摘されているベンゾ(a)ピレン(B(a)P)などの物質がある。これらの多くは難分解性であり、その化学的安定性から環境中に長く残留し、大気中において浮遊・拡散するため、周辺環境や人体に与えるインパクトは小さくないと考えられる。本研究は、高速道路交通に由来する大気浮遊物質のうち、特にPAHsや重金属類等の微量有害物質の浮遊・拡散挙動特性について明らかにすることを目的としている。本報告では、高速道路近傍において大気浮遊物採取し、その重量測定と成分分析を行うことにより、粒子状物質(PM)を中心とした定量的評価を試みた。

2. 大気浮遊物調査

2.1 調査の概要 本調査は、名神高速道路草津第1パーキングエリア内の高速道路近傍で行われたものである。調査は、2001年7月～9月の間に2機のロウボリウム・エアサンプラー(SIBATA製AN-200型)を同時に用いて3回、2001年11月に1機のハイボリウム・エアサンプラー(KIMOTO製MODEL-120型)を用いて7回行われた。ロウボリウム・エアサンプラーは、いずれもアンダーセンタイプで、ろ紙(東京ダイレック製石英繊維ろ紙2500QAT-UP)に粒径区分別(0.43 μ m未満、0.43～0.65 μ m、0.65～1.1 μ m、1.1～2.1 μ m、2.1～3.3 μ m、3.3～4.7 μ m、4.7～7.0 μ m、7.0～11 μ m、11 μ m以上)で捕集された大気浮遊物を分析対象サンプルとした。ハイボリウム・エアサンプラーでは、粒径の区別はなく、ろ紙(SIBATA製石英繊維ろ紙QR-100)に捕集された大気浮遊物を分析の対象サンプルとした。それぞれの調査の概要を表1に示す。両調査ともサンプリング終了後、ろ紙を40℃で約1日乾燥させてからその重量を秤量することによりPMを測定した。その後、捕集した大気浮遊物の成分分析を行うため、このろ紙を超音波にて純水もしくは溶媒に抽出させ、TOC、TN、PAHs(表2)、重金属類(11物質)の各汚濁項目について化学分析を行った。PAHsの分析は、尾崎ら²⁾の方法をもとに行うこととした。手順を以下に示す。①ろ紙をジクロロメタン溶媒10～20mlで40分間超音波抽出し0.45 μ m PTFEにてろ過、これを3回繰り返す。②N₂ガスで抽出液を乾固した後、これをヘキサン5mlに溶解させる。③シリカカートリッジに通過(1ml/min)させてから、

表1 調査の概要

調査コード	調査期間(h)	期間降雨量(mm)	期間交通量(上下線合計値)	
			(台)	内、大型車
ロウボリウム調査	aL010721	168.0	602259	203088
	aL010810	163.5	785283	83341
	aL010905	159.0	864292	307000
ハイボリウム調査	aH011115	18.6	67866	28360
	aH011117	24.0	78015	14766
	aH011119	24.0	88533	35665
	aH011121	24.0	102165	41107
	aH011123	24.0	108244	22514
	aH011125	24.0	87343	26023
	aH011127	24.0	87440	37122

表2 測定 PAHs

物質名	略称
Phenanthrene	PHE
Anthracene	ANT
Fluoranthene	FLU
Pyrene	PYR
Benzo(a)anthracene	B(a)A
Chrysene + Triphenylene	CHR+TRI
Benzo(e)pyrene	B(e)P
Benzo(a)pyrene	B(a)P
Perylene	PER

ろ紙を40℃で約1日乾燥させてからその重量を秤量することによりPMを測定した。その後、捕集した大気浮遊物の成分分析を行うため、このろ紙を超音波にて純水もしくは溶媒に抽出させ、TOC、TN、PAHs(表2)、重金属類(11物質)の各汚濁項目について化学分析を行った。PAHsの分析は、尾崎ら²⁾の方法をもとに行うこととした。手順を以下に示す。①ろ紙をジクロロメタン溶媒10～20mlで40分間超音波抽出し0.45 μ m PTFEにてろ過、これを3回繰り返す。②N₂ガスで抽出液を乾固した後、これをヘキサン5mlに溶解させる。③シリカカートリッジに通過(1ml/min)させてから、ベンゼン：ヘキサン(6:4v/v)混合液2mlで抽出(1ml/min)したものを、GC/MSにて測定する。GC/MSの測定条件を表3に示す。回収率のチェックは2回行ったがほぼどの物質も100%近い値を示した。

表3 GC/MS 測定条件

機器構成	GC: SHIMADZU GC17A, MS: SHIMADZU QP5000
オートサンプラ	AOC-17
GC条件	Column: HP5 30m $\times$ 0.32mm, 気化室温度: 250℃ カラム槽温度: 50℃(2min)–30℃/min–170℃–2℃/min–190℃–12℃/min–240℃–1℃/min–260℃(1min)
MS条件	インターフェース温度: 270℃, SIM測定

2.2 調査の結果および考察

(1)大気浮遊汚濁物濃度 大気浮遊汚濁物の分析結果を図1に示す。ハイボリウム調査のうち、調査aH011117とaH011125では、調査期間内に休日を含み、高速道路を走行する大型車が少なかったためにPM濃度が低かった。調査aH011123も休日を含んでいたが、3連休の初日が含まれていたことから、特に大型バスの走行台数が多く、他の休日データに比べてPM濃度は高くなった。TOC濃度は平日に高く、休日に減少するという傾向を示している。PAHsや重金属類は大気中のPM濃度とよく似た変動を示している。

(2)ロウボリウム調査 ロウボリウム調査において粒径区分別に捕集された大気浮遊物量を累積百分率にして示したものの(3調査平均値)が図2である。TNやTOCはPMと全く同じ傾向を示し、各粒径区分に同じ比率でPMに含有もしくは付着して大気中に存在していることがわかる。またその平均粒径は1.0~1.5μm程度である。PAHsについては、いずれも平均粒径0.3μm以下の非常に細かな粒径で卓越して存在していることがわかる。また、FLUやPYR等に見られるように0.2~3μmの超微細粒径以降は10μmまで一様に含有しているものや、PHEのように1~5μm付近で再び現存ピークがあるものが確認できた。重金属類については有意な値が得られたNa、Caについてのみ示したが、これらについても1μm付近で現存量のピークが認められた。

(3)ハイボリウム調査 ハイボリウム調査は、いずれも晴天時を対象として実施された。調査で観測されたPM中に占めるPAHsと重金属類の含有率を図3に示す。全体的にばらつきが大きい、ロウボリウム調査では検出できなかったCu、Pb、Zn等の重金属類においても一定の含有率があるものと見て取れる。

3. 粒子状物質の大気浮遊・拡散特性

調査日のPM濃度は当日の交通量のみならず前日までの交通量の履歴にも影響されるものと考えられる。そこでまず、調査日のPM濃度に及ぼす先行交通量の影響をみるために、調査期間が短く、天候等の条件に影響を受けにくいハイボリウム調査のデータを用いて、先行日数別の交通量を因子としたPM濃度に関する分散分析を行ったところ、調査日当日と前日の交通量をそれぞれ因子とした場合に、1%の有意差を得た。これより、PM濃度と交通量の関係が以下の式で表せると考えた。

$$C_n = \sum_{i=1}^n (Ed_i \cdot Xd_i + Eg_i \cdot Xg_i) \quad (1)$$

ハイボリウム調査データについて式(1)によ

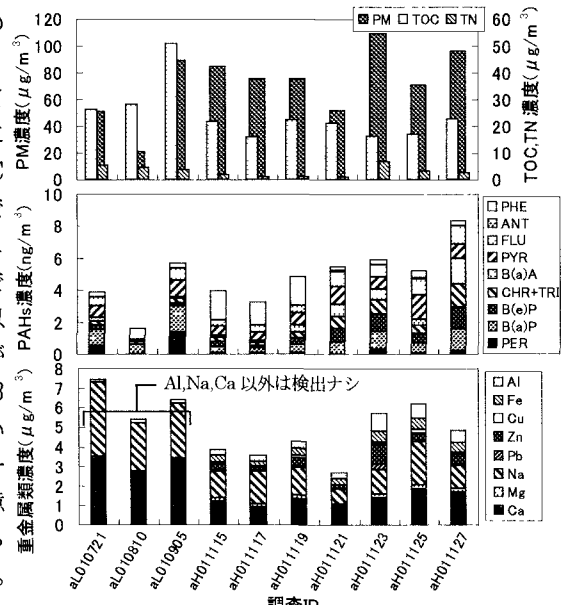


図1 大気中の汚濁物濃度

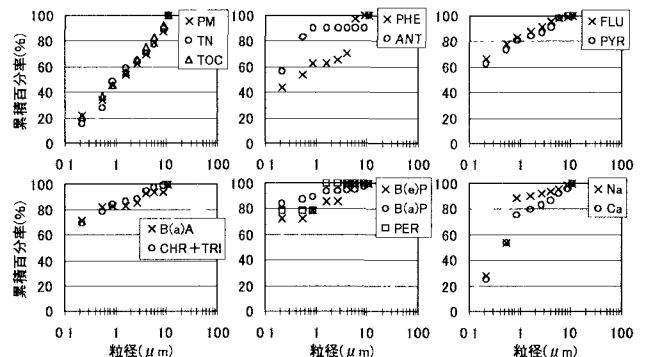


図2 粒径区分別の大気浮遊物累積百分率

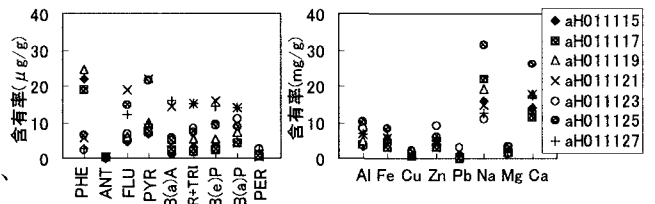


図3 PMにおける汚濁物含有率

期日nにおいて、 C_n :日平均PM濃度(μg/m³)、 Ed_n (Eg_n):観測地点付近を走行する大型車(普通車)1台当りのPM寄与量(μg/m³/台)、 Xd_n (Xg_n):大型車(普通車)の走行台数(台)

り一旦回帰分析し、回帰直線との残差が大きい点(2 調査データ)を特異値として排除した残りのデータを用いて再度回帰分析を行った結果を表3に示す。当日の普通車の寄与量(Eg_n)が低い値であるのは、これらが汚濁物を排出することよりも大気中の汚濁物を調査で対象とした系の外へ拡散させることに大きく寄与しているためと考えられる。この結果を用いて、式(1)によりPM濃度を推定し、ハイボリウム調査における実測値と比較すると図4のようになった。推定値が実測値と隔たりのある2点は、回帰分析の際に特異値とみなされたデータである。これらを除いて考えると、式(1)による濃度推定は、非常に高い再現性を有しているものである。

高速道路に由来したPMは、一部が高速道路の系外へと拡散し、近隣環境に何らかの影響を与えているものと思われる。そこで、PMの系外拡散量を以下の式で表わせるものとした。

$$L = (Fd \cdot Yd + Fg \cdot Yg) - (La + Ls) \quad (2)$$

La は、大気中に浮遊しているPMが降雨時に降水に取り込まれて流出する際の負荷量を表している。これについては、降雨時に高速道路近傍にて行った降水調査の結果を用いて、降水水質を定式化した式(3)⁴⁾を、降雨量 R で積分して得られる式(4)により表せるものとした。

$$Ca = A \cdot \exp(-ka \cdot R) \quad (3)$$

$$La = A/ka \{1 - \exp(-ka \cdot R)\} \quad (4)$$

Ls の算定には、大降雨時(46.5mm)に高速道路排水の採取調査を行い、粒径区分別のSSを分析(粒度分布からPM負荷量分を算出)した結果⁵⁾を用いた。算定式を以下に示す。

$$Ls = S_d - S_{d-1} \quad (5)$$

$$S_d = Su \cdot (1 - \exp(-ks \cdot d)) \quad (6)$$

高速道路からの降雨時流出調査と降水調査を同地点で同時に行ったデータ⁶⁾を用いて、流出負荷量から降水由来分を差し引いた値を求め、路面からの降雨時流出負荷量 Lr を以下の式で定式化した。

$$Lr = S_{t-1} \cdot (1 - \exp(-kr \cdot R)) \quad (7)$$

式(7)と式(4)を用いることによりPMの降雨時流出量について、モデルによる推定値($Lr + La$)と実測値⁵⁾の関係(図5)が得られる。十分な再現性が示されており、PMの流出ポテンシャルが先行晴天期間に進捗し、降雨時によって流出するという関係が正しく表現できていると考えられる。

4. まとめ 本報告では、実態調査をもとに高速道路近傍での大気浮遊物の挙動特性について検討を行った。今後は、データの蓄積を図り、PMに対する汚濁物含有特性の定式化を行うことによって式(2)～式(7)を改良し、さらに汚濁物の挙動シミュレーションを進めていきたいと考えている。本研究を行うにあたり、富山県立大学短期大学部の川上智規先生、八千代エンジニアリング(株)の嶋田智行氏にはたいへんお世話になりました。また、立命館大学理工学部の山田淳先生からは貴重なアドバイスを頂戴いたしました。ここに記して、謝意を表します。

参考文献 1) 泉川他：東京都環境科学研究所年報、1995、2) 尾崎他：環境工学研究論文集、第35巻、1998、3) 環境省、平成10年度報告書、4) Yamada, K. et al.: 2nd Int' l IAWQ Conf. and Sympo. on Diffuse Pollution, 1995、5) 市木他：水環境学会シンポジウム、2002、6) Ichiki, A. et al.: 9th Int' l Conf. on Urban Drainage, 2002

表3 式(1)による回帰分析結果

	当日PM寄与量		前日PM寄与量	
	大型車 (Ed_n)	普通車 (Eg_n)	大型車 (Ed_{n-1})	普通車 (Eg_{n-1})
係数($10^{-3} \mu g/m^3/台$)	0.976	0.004	0.391	0.113
決定係数 R^2	0.99			

L : 系外へのPM拡散量($mg/m^2/日$)、 Fd : 大型車のPM排出原単位 $9.655 \times 10^{-3} (mg/m^2/台)$ 、 Fg : 普通車のPM排出原単位 $0.035 \times 10^{-3} (mg/m^2/台)$ 、 $Yd(Yg)$: 大型車(普通車)の交通量(台/日)、 La : 大気浮遊PMの降雨時流出量($mg/m^2/日$)、 Ls : 大気浮遊PMの路面堆積量($mg/m^2/日$)、 Ca : 降水水質(mg/l)、 ka : 流出速度係数 $0.027 (1/mm)$ 、 R : 降雨量(mm)、 A : 定数 1.463 、 S_d : 経過日数 d に対する路面堆積量(mg/m^2)、 S_u : 限界堆積量 $38.69 (mg/m^2)$ 、 ks : 堆積速度係数 $0.296 (1/日)$ 、 d : 路面堆積量がゼロになった日からの経過日数(日)、 Lr : 路面堆積物の降雨時流出負荷量(mg/m^2)、 S_{d-1} : 前日の路面堆積量(mg/m^2)、 kr : 流出速度係数 $0.150 (1/mm)$ 、 R : 降雨量(mm)

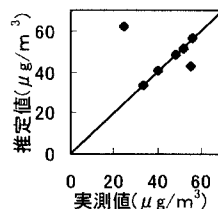


図4 大気浮遊PM濃度の検証

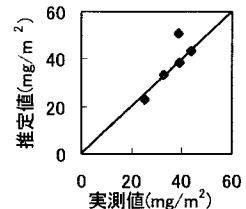


図5 PM流出量の検証