



STATENS GEOTEKNISKA INSTITUT
SWEDISH GEOTECHNICAL INSTITUTE



Lakning av polyaromatiska kolväten ur tjärinnehållande vägbeläggningmaterial

LENNART LARSSON

Varia 510 rev

LINKÖPING 2001

Varia Statens geotekniska institut (SGI)
581 93 Linköping

Beställning SGI
Litteratortjänsten
Tel: 013-20 18 04
Fax: 013-20 19 09
E-post: info@swedgeo.se
Internet: www.swedgeo.se

ISSN 1100-6692
ISRN SGI-VARIA--01/510--SE

Projektnummer SGI 10633
Dnr SGI 2-0009-0583



STATENS GEOTEKNISKA INSTITUT
SWEDISH GEOTECHNICAL INSTITUTE

Varia **510** reviderad

**Lakning av polyaromatiska kolväten ur
tjärinnehållande vägbeläggingsmaterial**

LENNART LARSSON

LINKÖPING 2001

Revidering av SGI Varia 510:
”LAKNING AV POLYAROMATISKA KOLVÄTEN UR TJÄRINNEHÅLLANDE
VÄGBELÄGGNINGSMATERIAL”

Ett beräkningsfel vid omräkning av PAH-halt, i framtagna dubbelprover av extraktionsmedel, till totalhalt PAH i vägbeläggingsmaterial, ligger till grund för revidering av vissa angivna totalhaltsvärden presenterade i rubricerad rapport, daterad 2001-03-30, från Statens geotekniska institut; uppdragsgivare: Vägverket, Region Stockholm. Härav gjorda justeringar påverkar endast tidigare angivna totalhalter och ej lakresultaten och ej heller gjorda bedömningar. Revidering av rubricerad rapport har härav gjorts 2001-11-27 med följande förändringar (sidhänvisningar gäller denna reviderade Varia 510):

Sidan 4, andra stycket, rad 1:

”... , 1,2 g/kg TS för M2 och 0,64 g/kg TS för M3.”

Sidan 16, första stycket, rad 1:

”Enligt resultat från extraktion (Bilaga från VTI) var vikt av M2 som genomgick totalhaltsanalys 3,4462 kg (torr totalvikt av två delprover).”

Sidan 17, första stycket, rad 5:

”... halten summa cancerogena PAH 49 ggr högre och för summa övriga PAH 21 ggr högre än respektive riktvärde.”

Sidan 17:

Totalhaltsvärdena i Tabell 9 har halverats för alla enskilda PAH, summa cancerogena PAH, summa övriga PAH och total-16PAH.

Sidan 21, första stycket, rad 1:

”Enligt resultat från extraktion (Bilaga från VTI) var vikt av M3 som genomgick totalhaltsanalys 3,0433 kg (torr totalvikt av två delprover).”

Sidan 22:

Totalhaltsvärdena i Tabell 12 har halverats för alla enskilda PAH, summa cancerogena PAH, summa övriga PAH och total-16PAH.

Sidan 22, första stycket, rad 5:

”... är halten summa cancerogena PAH 24 ggr högre och för summa övriga PAH 11 ggr högre än respektive riktvärde.”

Sidan 27:

I Diagram 10 har alla totalhalter för M2 och M3 halverats.

Sidan 28, sista stycket, rad 6:

”... . Dessa halter var ca 4-10 ggr högre än för M2 och M3....”

Sidan 29:

I Tabell 15 har alla värden för M2 och M3 fördubblats.

Statens geotekniska institut
Projektledare
Lennart Larsson

INNEHÅLLSFÖRTECKNING

Sammanfattning	4
1. Inledning	5
2. Bakgrund och syfte	5
3. Material och metod	5
3.1. Material	5
3.2. Lakmetod	7
3.3. Analyser	10
4. Resultat	11
4.1. Material 1 (M1)	11
4.1.1. Fastfas	11
4.1.2. Lakvatten	11
4.1.2.1. PAH-utlakning	12
4.1.2.2. Akut-toxisk respons (Microtox)	13
4.1.2.3. Microtox-respons v.s. PAH-utlakning	15
4.2. Material 2 (M2)	16
4.2.1. Fastfas	16
4.2.2. Lakvatten	17
4.2.2.1. PAH-utlakning	17
4.2.2.2. Akut-toxisk respons (Microtox)	20
4.2.2.3. Microtox-respons v.s. PAH-utlakning	20
4.3. Material 3 (M3)	21
4.3.1. Fastfas	21
4.3.2. Lakvatten	22
4.3.2.1. PAH-utlakning	22
4.3.2.2. Akut-toxisk respons (Microtox)	24
4.3.2.3. Microtox-respons v.s. PAH-utlakning	25
4.3.2.4. pH-test	26
4.4. Jämförelse av erhållna resultat	27
4.4.1. PAH i fastfas och lakvatten	27
4.4.2. Mikrotox-respons	29
4.4.3. Detekterade PAH-halter v.s. maximal löslighet av enskilda PAH	30
4.4.4. pH och konduktivitet	31
5. Slutsatser	32
Referenser	34
Bilaga. Analysprotokoll	35

Rapport (reviderad)

Lakning av polyaromatiska kolväten ur tjärinnehållande vägbeläggingsmaterial

SAMMANFATTNING

Föreliggande studie omfattar undersökning av tre olika prov från uppbrutna vägbeläggingsmaterial, benämnda M1, M2 och M3, med varierande innehåll av PAH (polycykliska aromatiska kolväten) från Södra länken, Stockholm. Till undersökningarna uttogs samlingsprov av M1 från hela materialet, medan samlingsprov endast uttogs från M2:s och M3:s makadamlager. Undersökningen har omfattat totalhaltsbestämning av 16PAH, kolonnlakning av dessa prov, och i genererade lakvatten analys av 16PAH och av akut-toxisk respons.

Totalhalterna av 16PAH var 0,004 g/kg TS för M1, 1,2 g/kg TS för M2 och 0,64 g/kg TS för M3.

Generellt låga halter och ackumulerade utlakade mängder av PAH detekterades i lakvattnen från M1. Därtill var de lakvattnen från M1, som undersöktes med avseende på akut-toxicitet, låg-toxiska.

Från både M2 och M3 utlakades höga halter och ackumulerade utlakade mängder av PAH och så gott som alla undersökta lakvatten från dessa prov gav hög akut-toxisk respons.

M2 uppvisade en lak-karakteristik avseende PAH som skiljde sig från övriga undersökta prov, inklusive prov från ett tidigare undersökt tjärinnehållande beläggingsmaterial.

Preliminärt synes typ av material, och inte dess totalhalt, vara en av de avgörande faktorer som styr hur stor andel av totalhalten av PAH som lakas ut. Ytterligare tester av liknande och andra tjärinnehållande material krävs dock för att detta skall kunna fastställas.

Sammantaget bedöms preliminärt M1:s påverkan på omgivning genom utlakning av PAH som ringa. M2:s och M3:s påverkan på omgivning genom utlakning av PAH bedöms preliminärt som allvarlig.

1. INLEDNING

På uppdrag av Vägverket Region Stockholm har Statens geotekniska institut (SGI) utfört lakstudier på prov från tre uppbrutna vägbeläggingsmaterial med varierande totalhalt av 16PAH (16 polycykliska aromatiska kolväten). Studien har innefattat totalhaltsbestämning av 16PAH, utlakning av 16PAH och akut-toxisk respons på valda lakvatten. Lakningarna har utförts i kolonn och genomförts på SGI:s laboratorium.

2. BAKGRUND OCH SYFTE

För att studera den tidsberoende utlakningen av oorganiska ämnen finns ett flertal standardiserade förfaranden. Emellertid föreligger idag ingen standardiserad metod i Sverige för lakning av organiska ämnen, t ex ur vägbeläggingsmaterial. SGI har tagit fram en preliminär metod för utlakning av vissa organiska ämnen med kontinuerligt förfarande, sk kolonnlakning. Metoden är avsedd för uppbrutna krossade material av typen vägbeläggningar och utlakning av främst polycykliska aromatiska kolväten (PAH) från sådant material. Metoden efterliknar till del ett standardiserat förfarande för lakning av oorganiska ämnen, men är modifierad bl a i avsikt att reducera eventuell nedbrytning av de undersökta organiska ämnena. Metoden har tidigare använts för att studera utlakning av bl a PAH ur flertal olika vägbeläggingsmaterial och resultat från dessa studier finns redovisade i *Larsson (1998)* (även kallad SGI Varia 468 och behandlade uppbruten bitumenasfalt från mellanlager); *Larsson och Bäckman (1999)* (även kallad SGI Varia 475 och behandlade nyupptaget oljegrus, flygfältasfalt och mellanlagrat asfaltmaterial med mindre inslag av makadam med lätt tjärlukt); *Larsson och Bäckman (2000)* (även kallad SGI Varia 479 och behandlade långtidslagrat oljegrus) och *Larsson m. fl. (2000)* (även kallad SGI Varia 486 och behandlade nyupptaget tjärindränkt grusmaterial).

Syftet med föreliggande studie har varit att undersöka den tidsberoende utlakningen av PAH ut tre olika beläggingsmaterial innehållande tjära, i relation till materialens totalhalter av samma ämnen. Därtill har akut-toxiciteten i valda lakvattnen undersökts.

3. MATERIAL OCH METOD

3.1. Material

Tre olika prov av vägbeläggingsmaterial levererades till SGI från Vägverket Region Stockholm. Dessa var i form av stora sammanhängande klumpar från uppbruten asfalt. Material 1, nedan kallad M1, var prov taget från Nynäsvägen, Södra länken, Entreprenad SL 23. M1 bestod av två klumpar om vardera ca 25 kg (Bild 1). Material 2 (M2) och Material 3 (M3), båda tagna från Huddingevägen, Södra länken, Entreprenad SL 22, bestod vardera av en klump om ca 100 kg (Bild 2). Både M2 och M3, som levererades med markeringsfärgerna orange respektive mörkröd, hade ett tydligt lager av makadam. Huvuddelen av dessa klumpar bestod av mindre grovt asfaltmaterial. M1:s båda klumpar (ursprungligen en klump som spräckts upp i två delar innan leverans till SGI) var mer homogena än M2 och M3.



Bild 1. Material 1 (M1), levererat från Nynäsvägen, Södra länken, Entreprenad SL 23. Bestod av två likartade klumpar om ca 25 kg vardera.



Bild 2. Material 2 närmast (orange markeringsfärg) och material 3 (röd markeringsfärg). Båda ca 100 kg vardera och levererade från Huddingevägen, Södra länken, Entreprenad SL 22. I den övre delen av klumparna syns makadamlagren från vilka prov togs ut till undersökningarna (M2 och M3). Till vänster syns (delvis) även M1.

Eftersom endast material ≤ 2 cm är lämpat för framtaget kolonnutförande, sönderdelades båda M1:s delklumpar och förvalda delar av M2:s och M3:s klumpar med hydraulisk tryckutrustning. Härav erhållna bitar bröts ned i lämplig storlek i skruvstäd.

Urval av material till undersökningarna skilde sig för de olika materialen. Från M1 togs ett samlingsprov ut från sönderdelningen av dess båda delklumpar till analys och lakstudie. Målsättningen med undersökningen av detta material var att undersöka lakegenskaperna hos hela materialet så som det togs upp från Södra länken och levererats till SGI. Härav erhöles information avseende en blandning av eventuella lager med hypotetiskt varierande PAH-halter. Från M1 togs totalt ca 24 kg samlingsprov ut, varav ca 1 kg sändes iväg för totalhaltsanalys.

Vad gäller M2 och M3 valdes endast de delar av materialet ut som misstänktes vara högförorenade med PAH. Detta tillgick enligt följande. En smal remsa av ena sidan av varje material sprayades med vit färg och undersöktes med uv-lampa, enligt föreslaget utförande presenterat i *Larsson m. fl. (2000)*. En klar avgränsning mellan skikt som gav respons och icke-respons kunde ses. De delar som gav respons förelåg i de två materialens makadamlager (Bild 2). Härav valdes material ut från dessa lager till undersökningen (de bitar som erhållit färg ingick inte i vidare undersökning). Dessa delar sönderdelades, varav en del kvarstående större bitar därefter bröts upp i skruvstäd, till för undersökningen lämpliga storlekar (främst upp till ca 2 cm, se kornstorlekskurvor i Bilaga). Då kolonnutförandet inte är lämpat för större material än vad kornstorlekskurvorna visar, valdes de största stenarna (ett fåtal, större än ca 4-5 cm, motsvarade uppskattningsvis högst ca 10 v-%) att inte ingå i lakstudien. M2 bestod härefter av ca 25,9 kg samlingsprov och M3 av ca 23,1 kg, båda från resp. makadamlager, varav ca 3,5 kg av M2 och ca 3,1 kg av M3 genomgick totalhaltsanalyser.

3.2. Lakmetod

Utlakningens tidsmässiga beroende av vattenomsättningen i ett material kan studeras genom kolonnförsök. När så är möjligt utförs lakstudien med material i dess ursprungliga form. Kolonnlakning bedöms ge en god, ibland något konservativ, beskrivning av utlakningens tidsberoende i fullskala. Lakstudien utförs med helt vattenmättat prov med ackumulerade L/S-kvoter, under vilken redoxpotential och pH inte regleras. L/S-kvoten är den mängd lakvatten (Liquid) som varit i kontakt med materialet, dividerat med denna mängd material (Solid). Om kännedom föreligger avseende upplagda massors geometriska och klimatologiska parametrar (bl a vattenomsättningen i massorna och upplagets utformning) kan L/S-skalan omvandlas till en tidskala. Försöken kan härigenom ge en uppfattning om hur utlakningen förändras med tiden i fullskala.

För att underlätta förståelsen av ovanstående ges följande exempel. Om materialet är placerad på en yta av 4 m^2 och det regnar 600 mm per år på materialet, faller ca $2,4 \text{ m}^3$ regn på denna yta per år. Om hälften av detta vatten antas ytavrinna och/eller avdunsta kommer resten, dvs $1,2 \text{ m}^3$, att rinna igenom materialet. Om materialet antas ha densiteten 1 ton/m^3 och är placerad på denna yta med en höjd av 1 m, och man antar att regnvattnet sprids homogent genom materialet (perkolerar), kommer dessa 4 ton att efter det första året utlakats med en L/S-kvot som motsvarar 0,3 ($1,2/4$).

Under förutsättning att de material som nu undersökts kommer att lagras utomhus utan tak i den form de levererades till SGI, får dessa anses ha mycket lägre reell andel regnvatten som perkolerar än den form som framställdes för föreliggande lakstudier (sönderbrutna bitar). Erhållna lakresultat relaterat till erhållna klumpar måste härav anses som konservativa i den meningen att ett år i ovanstående beräkningsexempel reellt motsvaras av ett mycket lägre L/S. Därtill har vid sönderbrytningen nya ytor genererats som teoretiskt ökar utlakningspotentialen, jämfört med om materialet lagras i obruten form.

Utlakning av organiska hydrofoba föroreningar, som har haft relativt god tid på sig att sorbera till fast matris, brukar grovt anses kunna delas upp i en snabb och en långsam del (*Carmichael m. fl., 1997; Pignatello, 1990; Di Toro och Horzempa, 1982; Pavlostathis och Mathavan, 1992; McCall och Agin, 1985*). Den snabba desorptionsdelen anses pågå under minuter – timmar (-dagar/veckor), medan den långsamma desorptionsdelen tar (dagar/veckor-) månader – år. Den sistnämnda delen beror bl a av de organiska föreningarnas långsamma diffusion ut från mikroporer till bulkfasen.

Det är viktigt att notera att lakstudier som utförs under relativt kort tid och som skall avspegla lakförlopp i fullskala pågående under flera år, främst avspeglar utlakning av relativt lättillgängliga föroreningar, dvs resultaten avspeglar främst snabb utlakning. Den långsamma delen beror av fysikaliska faktorer som ibland inte kan återskapas fullt ut under den tidsmässigt relativt korta tid som laboratorielakningen utförs, utan att övriga utlakningsfaktorer påverkas negativt. Utlakade mängder per tidsenhet brukar emellertid vara avsevärt mindre för den långsamma delen, jämfört med den initialt snabba delen (under förutsättning att lättlösliga ämnen och/eller lätttrörliga mikropartiklar/ kolloider föreligger i materialet). Den nu framtagna kolonnmetoden har emellertid inte gett någon indikation på att utförandet utesluter långsam utlakning av PAH. Lakundersökningar tidigare gjorda på tjärindränkt grusmaterial gav initialt en snabb utlakningsfas av PAH, efterföljd av en långsammare utplaning (*Larsson m. fl., 2000*).

Utöver ovanstående får andra faktorer, som biologisk och kemisk nedbrytning, större inflytande på längre sikt än vad som kan simuleras under de kortvariga laboratorietesterna. Erhållna resultat avseende totala mängden ackumulerat utlakat av organiska ämnen från laboratorietester bör härav ses som alltmer osäkra ju längre tid som lakförlopp i full- och realtidskala skall simuleras med sådana laboratorIELLAKTESTER.

Eftersom det valda lakutförandet till del utförs under relativt kort tid (20 dygn) bedömdes preliminärt den biologiska nedbrytningspotentialen på 16PAH vara av liten betydelse. Målsättningen var ändå att i möjligaste mån reducera eventuell potential för mikrobiell nedbrytning. Avdödning genom upphettning av det förorenade materialet var ej relevant eftersom detta skulle påverka innehållet av 16PAH. Tillsats av avdödningsmedel skulle generera alltför stor osäkerhet i eventuell kemisk/fysikalisk påverkan på utlakning av PAH. Därtill skulle det sistnämnda tillvägagångssättet omöjliggöra analys av akut-toxicitet. För att ändå reducera eventuell biologisk aerob nedbrytning av organiska ämnen var det vatten som användes till lakstudierna avgasat m a p syre genom att kvävgas bubblades igenom vattnet i inert atmosfär tills vattnet detekterades som syrefritt med syredetektor. Därtill bestod gasfasen i vattenbehållarna och provtagningsflaskorna av kvävgas innan vattenpåfyllning och under det kontinuerliga uttaget.

I avsikt att minimera kemisk (fotokemisk) nedbrytning av de organiska ämnena (vissa indikationer föreligger att PAH kan brytas ned vid belysning) var kolonnen och prov-

flaskorna helt täckta av aluminiumfolie. Kolonnen var därtill väl tillsluten för att minimera avgång av ev. flyktiga föreningar. Slutligen, material i kolonn (glas), slangar och packningar (teflon och teflonliknande) har valts för att minimera eventuell adsorption av PAH till ytor som lakvattnen kan komma i kontakt med.

Normalt väljs partikelstorlek $\leq 0,45 \mu\text{m}$ att ingå i de vatten som analyseras från lakning av organiska föroreningar ur fasta matriser. Sådana partiklar anses vara mobila i naturen och kan därigenom transportera adsorberade föroreningar. Det skall dock påpekas att större partiklar troligtvis kan ha en betydande potential att påverka grundvatten om motsvarande material ligger i nära anslutning till detta eller alternativt till t ex sprickigt berg eller grov jord med direkt anslutning till underliggande grundvatten. I sådana fall bör större maximal partikelstorlek väljas. I föreliggande undersökning förutsattes att det senare scenariot inte var relevant för de nu undersökta materialen. Partikelseparering i vatten kan göras med antingen filtrering eller centrifugering. Vid separering av partiklar i vatten som skall analyseras med avseende på organiska ämnen föredras centrifugering i de fall det är möjligt. Detta beror på att potential annars finns att de organiska ämnena kan fastna i filterutrustningen. Vid föreliggande och tidigare lakundersökningar vid SGI av organiska ämnen från grövre beläggningsmaterial har därför centrifugering genomgående valts som separationsmetod. Val av centrifugeringstid och hastighet för att nå bortseparering av partiklar $> 0,45 \mu\text{m}$ baserades på resultat från tidigare tester i samma centrifug med vatten från lakning av liknande material, där olika centrifugerade och/eller filtrerade vatten undersöktes med PCS-instrument (photon correlation instrument).

Sammantaget utfördes kolonnstudierna enligt följande. Lakningarna utfördes i glaskolonner med diameter 0,19 m och höjden 0,75 m, se foto till höger. Temperaturen var rumstemperatur (20 °C). Vid varje studie fylldes kolonn helt med material av storleken $\leq 2 \text{ cm}$. Materialmängden av M1, M2 och M3 var 22,947 kg, 22,365 kg, respektive 20,000 kg. Flödes hastigheten genom kolonn var L/S 0,1 per dygn. Som laklösning användes avjoniserat "Milli Q-vatten", surgjort med H_2SO_4 till pH 4 för att simulera surt regn. Laklösningen, som dessutom reducerats på löst syre genom kvävgasbubbling innan pH-sänkning, tillsattes genom kontinuerlig pumpning från en behållare. Denna var fylld med kvävgas innan vattenpåfyllning och under det kontinuerliga uttaget. Lakvattenprover togs ut för analys för M1 vid L/S-kvoterna 0,097; 0,281, 0,79 och 1,99. För M2 var motsvarande L/S-kvoter 0,06; 0,30; 0,80; 2,0 och för M3 L/S-kvoterna 0,08; 0,32; 0,83 och 2,02. Erhållna lakvatten samlades upp i härför avsedda glasflaskor (kvävgasfyllda), centrifugerades i 2 timmar vid 2500 rpm för att avskilja partiklar $> 0,45 \mu\text{m}$. Prov för PAH-analys pH-sänktes till 2 direkt efter centrifugering för minimering av biologisk nedbrytning, varefter vattenproverna kylades till $4 \pm 2 \text{ °C}$ och sändes till externt laboratorium för analys.



3.3. Analyser

Varje enskilt materialprovs halt avseende total-16PAH och enskilda 16PAH har undersökts. För M1 utfördes provberedning, extraktion och GC-analys vid det externa laboratoriet Alcontrol (fd Miljölaboratoriet i Nyköping AB). Enligt muntlig information från M. Jäger (Alcontrol) användes som extraktionsmedel 60 % cyklohexan / 40 % aceton.

De tjärinnehållande delarna av M2 och M3 innehöll en del stenar vars maximala storlek var avsevärt större än i M1. För sådant större material har Alcontrol inte någon rutinmässig extraktionsuppställning. För M2 och M3 utfördes härav en inledande provberedning och extraktion vid Väg- och transportforskningsinstitutets (VTI) laboratorium i Linköping. Denna utfördes enligt det rutinmässiga förfarande som används vid VTI för bestämning av bindemedelshalt i asfalt, men också vid återvinning av bitumen. På senare tid har även bindemedel till miljöundersökningar extraherats fram enligt detta förfarande (ref. Torbjörn Jacobson, VTI). Metoden benämns FAS Metod 404 och beskrivs i Bilaga. Kortfattat löses organiska ämnen upp från den fasta fasen med lösningsmedel (xylen, GC-grade) under uppvärmning med återloppskylning. Två separata extraktionsprover framställdes av VTI för varje av de två materialen M2 och M3. Dessa två prov samlades som var sitt samlingsprov. Erhållna två samlingsprov innehållande extrakt och lösningsmedel sändes därefter till Alcontrol för analys av PAH.

Lakförsöken har utförts på SGI:s ackrediterade laboratorium. Lakvattnen har där analyserats enligt Svensk Standard med avseende på pH och elektrisk konduktivitet. Alla genererade lakvatten har analyserats m a p total-16PAH och enskilda 16PAH vid Alcontrol.

Alla PAH analyser har utförts m h a högupplösande gaskromatografi och masspektrometri/massfragmentografi (HRGC/MS) (se Bilaga).

KM-lab AB har, via Alcontrol, utfört Microtox-tester på tio av de tolv framställda vattnen. Omfattning av Microtox-test för M1 var mindre än för övriga undersökta material p g a att detta test erhöles som tilläggsuppdrag efter att de två första lakvattnen från M1 uttagits. Sammantaget redovisas i Tabell 1 genomförda analyser på de olika lakvattnen.

Tabell 1. PAH-analys och Microtox-test i lakvatten från de undersökta materialen.

	L/S-kvot ^{1/} :	Första	Andra	Tredje	Fjärde
<u>Material 1 (M1)</u>					
PAH (total-16PAH, cancerogena PAH, övriga PAH)		X	X	X	X
Microtox (akut-tox)		-	-	X	X
<u>Material 2 (M2)</u>					
PAH (total-16PAH, cancerogena PAH, övriga PAH)		X	X	X	X
Microtox (akut-tox)		X	X	X	X
<u>Material 3 (M3)</u>					
PAH (total-16PAH, cancerogena PAH, övriga PAH)		X	X	X	X
Microtox (akut-tox)		X	X	X	X

1/: Första, andra, tredje och fjärde L/S-kvot för varje material ges bl a i slutet av kapitel 3.2 och i respektive materials avsnitt nedan. Exempel på omvandling av L/S-kvot till tid ges i inledning av kapitel 3.2.

4. RESULTAT

Nedan redovisas i text, tabell- och i diagramform resultat från lakttesterna, både separat och i relation till varandra, för valda ämnen och samlingsparametrar. I Bilaga finns de fullständiga resultaten som analysprotokoll.

4.1. Material 1 (M1)

4.1.1. Fastfas

I Tabell 2 redovisas analyserade totalhalter av 16 olika PAH i M1. Om dessa halter jämförs med riktvärden för förorenad jord, Tabell 3, fås att M1 inte överskrider riktvärdena för mindre känslig markanvändning med grundvattenskydd (MKMGV), vare sig för summa cancerogena PAH eller för summa övriga PAH. Jämförelse med riktvärden för jord bör dock göras med stor försiktighet eftersom dessa bygger på förutsättningar som inte á priori kan överföras på asfaltbeläggningar.

Tabell 2. Totalhalter av 16 PAH i M1.

MATERIAL 1 (M1)			
Typ av PAH	Totalhalt, mg/kg TS	Typ av PAH	Totalhalt, mg/kg TS
Naftalen	0,37	Benso(a)antracen*	0,096
Acenaftylen	0,034	Chrysen*	0,30
Acenaften	0,24	Benso(b)fluoranten*	0,40
Fluoren	0,24	Benso(k)fluoranten*	0,033
Fenantren	0,65	Benso(a)pyren*	0,17
Antracen	0,040	Indeno(1,2,3-cd)pyren*	0,10
Fluoranten	0,25	Dibenso(a,h)antracen*	0,18
Pyren	0,50	Σ Cancer. PAH (* ovan)	1,3
Benso(g,h,i)perylen	0,37	Total-16PAH	4,0
Σ Övriga PAH	2,7		

Tabell 3. Svenska riktvärden. Generella riktvärden förorenad mark, mg/kg TS (NV 4638). Riktvärden för förorenade bensinstationer, mg/kg TS (NV 4889).

NV Rapport Markanvändning	NV 4638			NV 4889						
	KM	MKMGV	MKM	KM	MKMGV		MKM		Park/MLU	
Djup, m	-	-	-	-	<0,7	>0,7	<0,7	>0,7	<0,7	>0,7
Σ Cancer. PAH	0,3	7	7	0,3	8	40	8	40	8	20/40
Σ Övriga PAH	20	40	40	20	40		40		20/40	

KM: Känslig markanvändning; MKMGV: Mindre känslig markanvändning med grundvattenskydd; MKM: Mindre känslig markanvändning; Park/MLU: parkmark, mark med litet utnyttjande.

4.1.2. Lakvatten

Generellt gäller för detta avsnitt och avsnitt 4.2.2 och avsnitt 4.3.2 att ackumulerat utlakat är beräknade på basis av aktuellt L/S och aktuell halt. Halterna är medelhalter i vatt-

nen som uppsamlats inom varje L/S-intervall. Beräknat ackumulerat utlakat motsvarar alltså total mängd utlakat upp till angivet L/S per kg av det lakade materialprovet. Nedan redovisas i tabell- och diagramform hur mycket av 16PAH som varje kg av detta material lakats ut, i form av ackumulerat utlakat visavi L/S. Vidare redovisas medelhalter av 16PAH i varje uttaget lakvatten och uppmätt akut-toxicitet i dessa lakvatten.

4.1.2.1. PAH-utlakning

Tabell 4 redovisar erhållna halter och beräknade ackumulerade utlakade mängder från M1. Totalt 0,7 µg/kg av total-16PAH hade lakats ut upp till L/S 1,99, dvs från varje kg av materialet hade totalt lakats ut 0,7 µg total-16PAH i 1,99 liter (dvs i 1,99 kg, vattnets densitet 1,0) som passerat detta kg material. Detta kan alternativt beskrivas så att från 22,947 kg material lakades totalt ut 16,1 µg (0,7*22,947) total-16PAH i 45,7 liter (1,99*22,947) vatten som passerat denna mängd material. Dessa PAH bestod till ca 2 vikts-% av cancerogena PAH (ca 0,013 µg/kg).

Tabell 4. Utlakade halter och ackumulerade utlakade mängder av PAH från beläggingsmaterial M1. Alla halter med förtecknet "<" (mindre än) ligger under detektionsgräns för respektive ämne. Detektionsgränsen utgörs i dessa fall av de angivna siffervärdena.

	Utlakade medelkoncentrationer					Ackumulerat utlakat				
	Enh.\ p.nr	0249	0250	0251	0285	Enh.\ p.nr	0249	0250	0251	0285
L/S	l/kg	0-0,097	0,097-0,281	0,281-0,79	0,79-1,99	l/kg	0,097	0,281	0,79	1,99
pH		7,5	7,8	7,7	7,6		-	-	-	-
Ledningsförmåga	mS/m 25°C	39,5	24,92	17,10	12,83		-	-	-	-
Naftalen	µg/l	0,54	0,37	<0,01	<0,01	µg/kg	0,052	0,12	<0,13	<0,14
Acenaftylen	µg/l	0,014	<0,01	0,016	<0,01	µg/kg	0,0014	<0,003	<0,011	<0,023
Acenaften	µg/l	0,22	1,0	0,050	0,035	µg/kg	0,021	0,21	0,23	0,27
Fluoren	µg/l	0,18	0,14	<0,01	<0,01	µg/kg	0,017	0,043	<0,048	<0,060
Fenantren	µg/l	0,30	0,084	0,031	0,017	µg/kg	0,029	0,045	0,060	0,081
Antracen	µg/l	0,031	0,032	0,039	<0,01	µg/kg	0,0030	0,0089	0,029	<0,041
Fluoranten	µg/l	0,22	0,054	0,065	<0,01	µg/kg	0,021	0,031	0,065	<0,077
Pyren	µg/l	0,13	0,025	0,044	0,015	µg/kg	0,013	0,017	0,040	0,058
Benso(a)antracen*	µg/l	0,039	<0,01	<0,01	<0,01	µg/kg	0,0038	<0,006	<0,011	<0,023
Chrysen*	µg/l	0,04	0,013	<0,01	<0,01	µg/kg	0,0039	0,0063	<0,011	<0,023
Benso(b)fluoranten*	µg/l	0,019	<0,01	<0,01	<0,01	µg/kg	0,0018	<0,004	<0,009	<0,021
Benso(k)fluoranten*	µg/l	<0,01	<0,01	<0,01	<0,01	µg/kg	<0,001	<0,003	<0,008	<0,020
Benso(a)pyren*	µg/l	0,011	<0,01	<0,01	<0,01	µg/kg	0,0011	<0,003	<0,008	<0,020
Indeno(1,2,3-cd)pyren*	µg/l	<0,01	<0,01	<0,01	<0,01	µg/kg	<0,001	<0,003	<0,008	<0,020
Benso(g,h,i)perylene	µg/l	<0,01	<0,01	0,026	<0,01	µg/kg	<0,001	<0,003	<0,016	<0,028
Dibenso(a,h)antracen*	µg/l	<0,01	<0,01	<0,01	<0,01	µg/kg	<0,001	<0,003	<0,008	<0,020
Σ cancer. PAH (* ovan)	µg/l	<0,14	<0,073	<0,07	<0,070	µg/kg	<0,013	<0,027	<0,063	<0,15
Σ cancer. PAH (* ovan)	µg/l	≥0,11	≥0,013	≥0	≥0	µg/kg	≥0,011	≥0,013	≥0,013	≥0,013
Σ övriga PAH	µg/l	<1,7	<1,7	<0,29	<0,13	µg/kg	<0,16	<0,48	<0,63	<0,78
Σ övriga PAH	µg/l	≥1,6	≥1,7	≥0,27	≥0,067	µg/kg	≥0,16	≥0,47	≥0,61	≥0,69
Total-16PAH	µg/l	<1,8	<1,8	<0,36	<0,20	µg/kg	<0,17	<0,50	<0,69	<0,92
Total-16PAH	µg/l	≥1,7	≥1,7	≥0,27	≥0,067	µg/kg	≥0,17	≥0,49	≥0,62	≥0,70

Diagram 1 beskriver ackumulerat utlakat som funktion av L/S. Diagram 2 och Diagram 3 ger utlakade medelhalter som funktion av L/S. Som framgår av dessa diagram lakades övriga PAH ut i avsevärt större omfattning än cancerogena PAH. Därtill erhöles en klar avklingning av ackumulerade utlakade mängder med ökat L/S. Efter ca L/S 0,5 har utlakningen av total-16PAH avsevärt avtagit. Att notera är därtill att alla cancerogena PAH låg under detektionsgräns i de två sista lakvattnen.

Om analyserade halter jämförs med riktvärden i grundvatten vid bensinstationer (NV 4889) fås att summa cancerogena PAH och summa övriga PAH ligger under motsvarande riktvärden i alla lakvattnen. Jämförs resultaten med gränsvärde för PAH i dricksvatten (SLV, 1993), och om alla halter under detektionsgräns sätts till noll, fås att endast i det första lakvattnet översteg halterna gränsvärdet för PAH i dricksvatten och då med ca 20 % (gränsvärdet, som i det fallet gäller för sex specifika PAH, är 0,2 µg/l; max halt i lakvattnen av dessa var 0,25 µg/l).

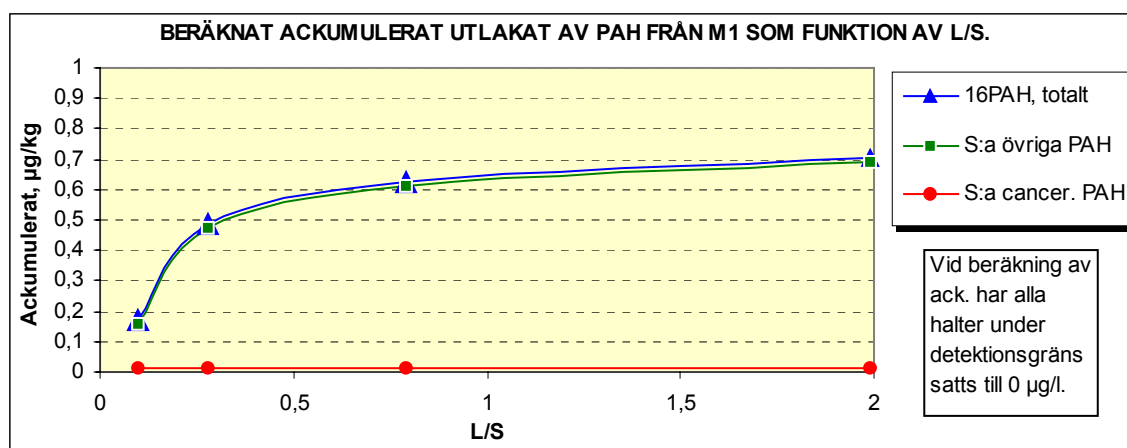


Diagram 1. Ackumulerade utlakade mängder av summa cancerogena PAH, summa övriga PAH och total-16PAH från M1, som funktion av L/S (alla halter under detektionsgräns har satts till 0 g/l).

4.1.2.2. Akut-toxisk respons (Microtox)

Microtox är en screeningmetod för att erhålla indikationer på om innehållet i det testade materialet (i det här fallet lakvatten) är akut-toxiskt. Om testet visar hög toxisk respons bör ytterligare toxikologiska tester och/eller kemiska analyser genomföras. Metoden ger respons på både organiska och oorganiska ämnen och baseras på användandet av bakterier, som i friskt tillstånd avger ljus (de luminiscerar), vilka tillsätts till det vatten som skall undersökas. Bakterierna kallas *Photobacter phosphoreum* (även kallade *Vibrio fischeri*) och ju mer toxiskt ett vatten är för dessa bakterier desto fler av bakterierna slutar att avge ljus. Ljusstyrkan blir då ett mått på vattnets toxicitet för bakterierna. Även om ett vatten är toxiskt för dessa bakterier innebär det dock inte att man därav kan fastställa att vattnet är toxiskt för alla andra organismer i naturen.

Beteckningen EC är en förkortning av "Effektkoncentration" och EC50 betyder den koncentration av det undersökta provet i en spädserie som ger 50 % reduktion av ljuskoncentrationen. Ju större reduktion av ljuset desto högre toxicitet har provet för de an-

vända bakterierna. Toxicitetsvärdet som anges är i princip den andel organismer som överlevt testet, dvs ju lägre angivet värde desto högre akut-toxicitet. Bakteriernas avgivna ljusintensitet mäts normalt efter 5 och 15 minuter.

I *Förorenade områden (1996)* görs bedömning av respons från Microtox-test på grundvatten enligt Tabell 5. I en nyligen utkommen rapport från Naturvårdsverket (*NV Rapport 4918*) har bedömning av ytvatten gjorts enligt Tabell 6 (vid jämförelse av dessa synes, vid likvärdiga resultat, i det här fallet ytvatten bedömas hårdare än grundvatten). Vid bedömningen av ytvatten avses sannolikt effekter uppmätta i direkt anslutning till undersökta objekt vilket rimligtvis inte gäller för bedömningen av grundvattnet.

Tabell 5. *Bedömning av toxicitet utifrån respons från Microtox-test på grundvatten (Förorenade områden, 1996).*

EC50; 15 min	Bedömning
70-90 %	Måttligt hög toxicitet
50-70 %	Hög toxicitet
<50 %	Mycket hög toxicitet

Tabell 6. *Bedömning av toxicitet utifrån respons från Microtox-test på ytvatten (NV Rapport 4918). Vid bedömningen avses sannolikt effekter uppmätta i direkt anslutning till undersökt objekt.*

EC20; 15 min	Bedömning
>80 %	Ingen eller liten påverkan av punktkälla
70-80 %	Trolig påverkan av punktkälla
50-70 %	Stor påverkan av punktkälla
<50 %	Mycket stor påverkan av punktkälla

Tabell 7 ger bedömning av toxicitet med Microtox för lakvatten som kommer från avfallsupplag (Öman m. fl., 2000, som hänvisar till *Svenson, 1993*). Sådant lakvatten antas normalt omhändertaras för rening på något sätt innan det tillåts passera ut i naturen, vilket normalt inte sker av lakvatten från ett mellanupplag för vägbeläggningsmaterial. Om materialet avses att läggas på mellanupplag bör erhållna värden jämföras med Tabell 5 och Tabell 6. Kommer materialet däremot att läggas på deponi med lakvattenuppsamling bör bedömning enligt Tabell 7 ges större tyngd.

Tabell 7. *Bedömning av toxicitet utifrån respons från Microtox-test på lakvatten från avfallsupplag (Öman m. fl., 2000, som hänvisar till Svenson, 1993).*

EC50; 15 min	Bedömning
>>100 %	Icke-toxiska, ingen dosberoende effekt
>45 %	Lågtoxiska
<45 %	Medel-högtoxiska

I Tabell 8 och i Diagram 13 och Diagram 14 (till del även i Diagram 2 och Diagram 3) redovisas erhållna akut-tox responser (Microtox) för de undersökta lakvattnen från M1. Endast lakvattnen uttagna som samlingsprov representerande intervallen L/S 0,28 - L/S 0,79 (intervall 3) och L/S 0,79 - L/S 1,99 (intervall 4) har genomgått undersökningen. Vid en jämförelse med Tabell 5 och Tabell 6, som här används i det fall materialet avses läggas på mellanupplag, bedöms lakvattnet för intervall 3 vara låg-måttligt toxiskt om det jämförs med grundvatten. Emellertid erhålls indikationen mycket stor påverkan av punktkälla om det likställs med ytvatten (EC20; 15 min). Lakvatten för intervall 4 uppvisar ingen akut-toxisk respons alls. Båda lakvattenproverna bedöms som lågttoxiska om materialet läggs på deponi (jämför med Tabell 7).

Tabell 8. *Microtox på lakvatten från beläggingsmaterial M1 uttaget vid L/S 0,281-0,79 och L/S 0,79-1,99.*

Microtox respons. Material 1 (M1).								
Provnr L/S; l/kg	0251 Samplingsprov för L/S-intervallet 0,281-0,79				0285 Samplingsprov för L/S-intervallet 0,79-1,99			
pH	7,8				7,9			
EC; %, minuter	50; 5	50; 15	20; 5	20; 15	50; 5	50; 15	20; 5	20; 15
Respons, vol%	81	91	46	48	>100	>100	>100	>100

Tidigare erfarenheter (*Larsson m. fl., 2000*) visar att lakvatten från det tjärinnehållande vägbeläggingsmaterial (tjärindränkt grus), som genomgått samma lakförfarande som i det nu aktuella fallet, kan uppvisa störst akut-tox respons i lakvattenprov som tas ut under det tredje L/S-intervallet (dvs för M1 motsvarande L/S 0,28-0,79). Därtill, undersökningar av lakvatten från M2 och M3, se nedan, har inte givit några indikationer på att akut-toxiciteten i lakvattnen från dessa material skulle vara avsevärt lägre i det tredje L/S-intervallet, jämfört med de två föregående intervallen (Diagram 13). Dock måste denna jämförelse anses som grov eftersom akut-toxiciteten i lakvattnen från M2 och M3 generellt legat på en helt annan nivå, jämfört med M1. Därtill är underlaget inte tillräckligt för att fastställa hur vanligt nämnda trend är. Det kan därför inte uteslutas att lakvatten från M1, uttagna vid det första och/eller andra L/S (dvs för det första och/eller andra L/S-intervallet), kan ha varit avsevärt mer akut-toxiska än lakvattnet uttaget för det tredje L/S-intervallet. Det finns dock inget, i det starkt begränsade underlag som hittills föreligger, som talar för att lakvattnen från M1 skulle ha varit avsevärt mer akut-toxiska i de inledande L/S-intervallen.

4.1.2.3. Microtox-respons v.s. PAH-utlakning

I Diagram 2 och Diagram 3 jämförs erhållen akut-toxicitet (LC50; 15 min) med utlakade medelhalter som funktion av L/S. I de L/S-intervall som undersöks synes akut-toxiciteten främst följa koncentrationsförändringen av övriga PAH.

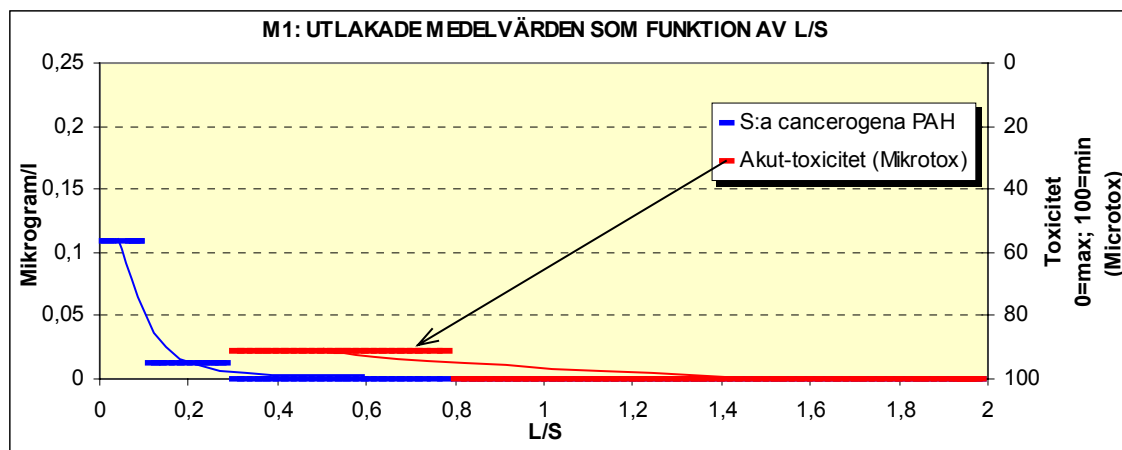


Diagram 2. Akut-toxisk respons (Microtox EC50; 15 min.) och utlakade medelvärden av halten summa cancerogena PAH som funktion av L/S (heldragna räta linjer). Kurvorna avspeglar inte medelvärde, utan är endast till hjälp för att få en uppfattning av den relativa utlakningstrenden.

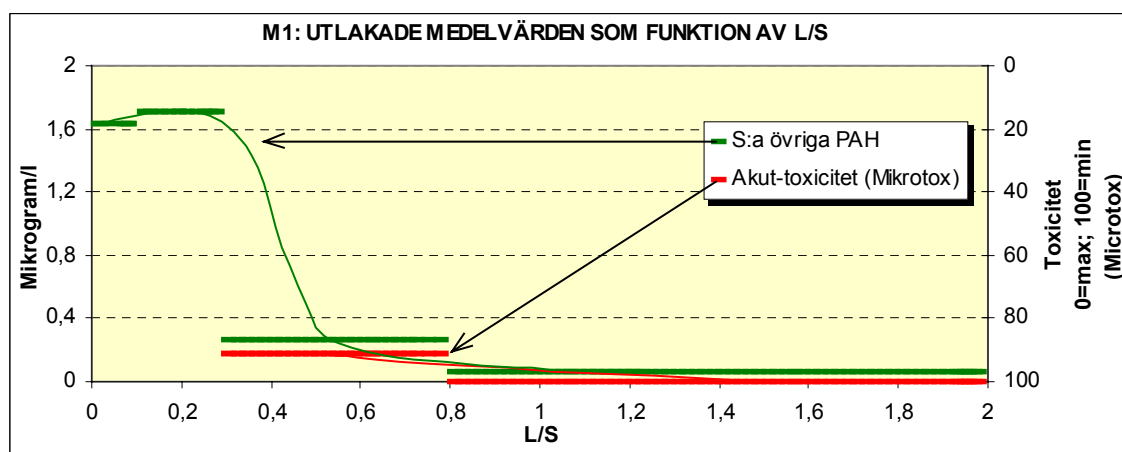


Diagram 3. Akut-toxisk respons (Microtox EC50; 15 min.) och utlakade medelvärden av halten summa övriga PAH som funktion av L/S (heldragna räta linjer). Kurvorna avspeglar inte medelvärde, utan är endast till hjälp för att få en uppfattning av den relativa utlakningstrenden.

4.2. Material 2 (M2)

4.2.1. Fastfas

Enligt resultat från extraktion (Bilaga från VTI) var vikt av M2 som genomgick totalhaltsanalys 3,4462 kg (torr totalvikt av två delprover). De två delproverna av lösningsmedel plus extrakt från M2 vägde totalt 1,355 kg och hade en densitet av 0,87 kg/l. Vattenmängden (medel) var 0,0018 kg och bindemedelsmängden var i medel 6,05 % (medel 0,104 kg). I Bilaga (från Alcontrol) redovisas halt av 16PAH i mg/kg lösningsmedel. Dessa halter är omräknade på basis av ovanstående till mg/kg beläggingsmaterial M2 och presenteras i Tabell 9.

Vid jämförelse av dessa halter med riktvärden för förorenad jord, Tabell 3, fås att M2 kraftigt överskrider riktvärdena för mindre känslig markanvändning, både för summa cancerogena PAH och summa övriga PAH. Detta gäller för nivå < 0,7 meter och nivå \geq 0,7 m, båda under markyta. Exempelvis, jämfört med ned till < 0,7 m under markyta är halten summa cancerogena PAH 49 ggr högre och för summa övriga PAH 21 ggr högre än respektive riktvärde. Jämförelse med riktvärden för jord bör dock göras med stor försiktighet då dessa bygger på förutsättningar som inte *á priori* kan överföras på asfalt.

Tabell 9. Totalhalter av 16 PAH i M2.

MATERIAL 2 (M2)			
Typ av PAH	Totalhalt, mg/kg TS	Typ av PAH	Totalhalt, mg/kg TS
Naftalen	90	Benso(a)antracen*	87
Acenaftylen	1,1	Chrysen*/Trifenylen a/	75
Acenaften	18	Benso(b)fluoranten*	71
Fluoren	51	Benso(k)fluoranten*	29
Fenantren	236	Benso(a)pyren*	55
Antracen	67	Indeno(1,2,3-cd)pyren*	63
Fluoranten	189	Dibenso(a,h)antracen*	9,0
Pyren	142	Σ Cancer. PAH (* ovan)	389
Benso(g,h,i)perylen	31	Total-16PAH	1214
Σ Övriga PAH	825		

a/ Chrysen och trifenylen kunde ej särskiljas i analysen. Värdet ansatt att gälla för chrysen.

4.2.2. Lakvatten

Nedan redovisas i tabell- och diagramform hur mycket av 16PAH som varje kg av detta material lakat ut, i form av ackumulerat utlakat visavi L/S. Vidare redovisas medelhalter av 16PAH i varje uttaget lakvatten och uppmätt akut-toxicitet i dessa lakvatten.

4.2.2.1. PAH-utlakning

Tabell 10 redovisar erhållna halter och beräknade ackumulerade utlakade mängder från M2. Totalt 54 µg/kg av total-16PAH hade lakats ut/ackumulerats upp till L/S 2,0, varav 3 µg/kg bestod av summa cancerogena PAH. Summa övriga PAH lakades alltså ut i avsevärt större omfattning än summa cancerogena PAH.

Diagram 4 beskriver ackumulerat utlakat som funktion av L/S. Diagram 5 och Diagram 6 ger utlakade medelhalter av summa cancerogena PAH respektive summa övriga PAH. Som framgår av Diagram 5 ökade i medeltal först utlakningen av cancerogena PAH, varefter en förväntad minskning erhöles. Emellertid, efter ca L/S 0,8 erhöles en oväntad ökning av medelhalten av varje enskilt utlakad cancerogen PAH. I motsats till dessa cancerogena PAH ökade medelhalten av summa övriga PAH med ökat L/S under hela det undersökta L/S-intervallet (Diagram 6). Eftersom det är medelhalter som analyserats i båda fallen, går det inte att avgöra om utlakningen ökat konstant under varje L/S-intervall, eller om det under något tillfälle inom varje intervall temporärt genererats högre/lägre halter än medelhalten. Det går alltså inte att fastställa för t ex de cancerogena PAHerna om, under fjärde L/S-intervallet, halten exempelvis temporärt starkt ökat och efterföljts, under samma intervall, av lägre utlakade halter. Det kan noteras att inte i

något tidigare fall som lakning utförts på samma sätt med andra vägbeläggningsmaterial har liknande trender erhållits (Larsson, 1998; Larsson och Bäckman, 1999; Larsson och Bäckman, 2000; Larsson m. fl., 2000).

Tabell 10. Utlakade halter och ackumulerade utlakade mängder av PAH från M2.

	Utlakade medelkoncentrationer					Ackumulerat utlakat				
	Enh.\ p.nr	0364	0365	0366	0367	Enh.\ p.nr	0364	0365	0366	0367
L/S	l/kg	0-0,06	0,06-0,30	0,30-0,80	0,80-2,0	l/kg	0,06	0,30	0,80	2,0
pH		7,5	7,6	7,3	7,6		-	-	-	-
Ledningsförmåga	mS/m 25°C	43,0	33,15	21,13	15,08		-	-	-	-
Naftalen	µg/l	0,21	0,36	0,16	11	µg/kg	0,013	0,099	0,18	13,4
Acenaftylen	µg/l	0,75	0,72	0,58	0,16	µg/kg	0,045	0,22	0,51	0,70
Acenaften	µg/l	2,6	4,5	6,4	4,4	µg/kg	0,16	1,2	4,4	9,7
Fluoren	µg/l	0,047	0,39	3,9	4,0	µg/kg	0,0028	0,096	2,0	6,8
Fenantren	µg/l	0,21	0,18	0,32	3,4	µg/kg	0,013	0,056	0,22	4,3
Antracen	µg/l	2,9	3,0	1,0	3,5	µg/kg	0,17	0,89	1,4	5,6
Fluoranten	µg/l	1,8	2,0	2,8	3,5	µg/kg	0,11	0,59	2,0	6,2
Pyren	µg/l	1,1	1,2	1,6	2,2	µg/kg	0,066	0,35	1,2	3,8
Benso(a)antracen*	µg/l	0,34	0,34	0,23	0,55	µg/kg	0,020	0,10	0,22	0,88
Chrysen* A/	µg/l	0,25	0,22	0,18	0,47	µg/kg	0,015	0,068	0,16	0,72
Benso(b)fluoranten*	µg/l	0,21	0,17	0,11	0,32	µg/kg	0,013	0,053	0,11	0,49
Benso(k)fluoranten*	µg/l	0,062	0,053	0,044	0,12	µg/kg	0,0037	0,016	0,038	0,18
Benso(a)pyren*	µg/l	0,12	0,089	0,092	0,23	µg/kg	0,0072	0,029	0,075	0,35
Indeno(1,2,3-cd)pyren*	µg/l	0,069	0,051	0,032	0,15	µg/kg	0,0041	0,016	0,032	0,21
Benso(g,h,i)perylene	µg/l	0,052	0,045	0,034	0,11	µg/kg	0,0031	0,014	0,031	0,16
Dibenso(a,h)antracen*	µg/l	0,013	0,011	0,012	0,033	µg/kg	0,0008	0,0034	0,0094	0,049
Σ cancer. PAH (* ovan)	µg/l	1,06	0,93	0,7	1,87	µg/kg	0,064	0,29	0,64	2,9
Σ övriga PAH	µg/l	9,67	12,4	16,8	32,3	µg/kg	0,58	3,55	12,0	50,7
Total-16PAH	µg/l	10,7	13,3	17,5	34,1	µg/kg	0,64	3,84	12,6	53,6

A/ I sista lakvattenprovet överlappade de GC-detekterade signalerna från chrysen och trifenylen varandra. Angiven halt och därmed ackumulerat utlakat för det fjärde L/S-intervallet motsvarar därför summa-halt av chrysen och trifenylen.

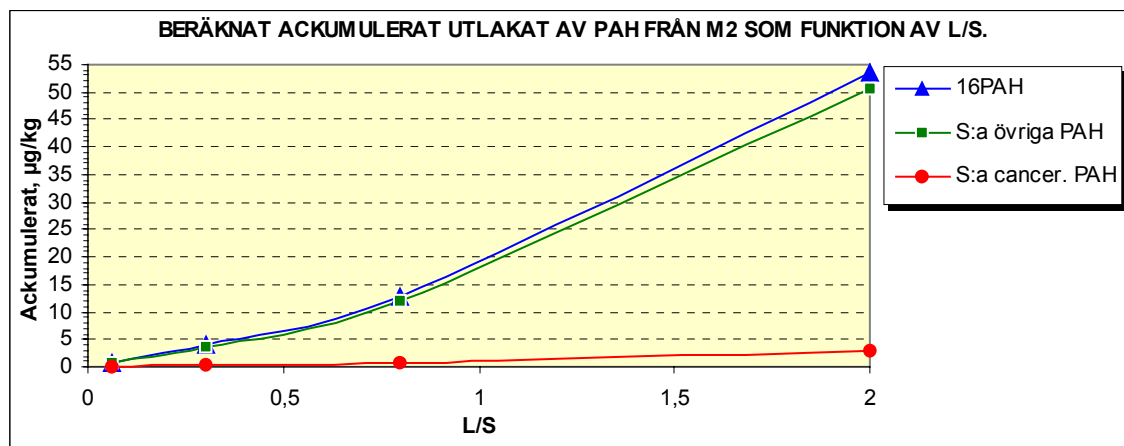


Diagram 4. Ackumulerade utlakade mängder av cancerogena PAH, övriga PAH och total-16PAH från M2, som funktion av L/S.

I sista lakvattenprovet överlappade de GC-detekterade signalerna från chrysen och trifenylen varandra. Angiven halt och därmed ackumulerat utlakat för det fjärde L/S-intervallet motsvarar därför summahalt av chrysen och trifenylen. Trifenylen ingår ej i beteckningen 16PAH och därmed ej heller i beteckningen summa cancerogena PAH. Bidraget av denna osäkerhet motsvarar 0,56 µg/kg eller maximalt 1 % av totalt utlakat ackumulerat av 16PAH och maximalt 19 % av totalt utlakat ackumulerat av cancerogena PAH, i båda fallen upp till L/S 2. Dessa procentsatser motsvarar alltså det teoretiskt maximala felet i beräknade värden i det fall summa chrysen/trifenylen motsvarar enbart trifenylen. Denna analysosäkerhet påverkar dock inte den uppkomna trenden avseende summa cancerogena PAH. Alla övriga enskilda cancerogena PAH ökade sina halter i sista lakvattnet, jämfört med det närmast föregående.

Vad gäller summa övriga PAH fås att ökningen av halterna i det sista lakvattnet till viss del beror av den markanta ökningen av halten naftalen. Naftalens andel av totalt ackumulerade utlakade mängder av summa övriga PAH vid L/S 2 var ca 25 %. Naftalens bidrag till de utlakade mängder av summa övriga PAH enbart i det sista lakvattnet var 34 %. Alla enskilda PAH ingående i definitionen summa övriga PAH har ökat sina halter i sista lakvattnet (L/S 0,8 –L/S 2,0), jämfört med i det näst sista lakvattnet (L/S 0,3–L/S 0,8), med undantag för acenaften och acenaftylen. Undantas naftalen i beräkningarna fås alltså ändå en avsevärd ökning av halten summa övriga PAH med ökat L/S i hela det undersökta L/S-intervallet.

På grund av att naftalens bidrag till ackumulerade utlakade mängder av summa övriga PAH endast var markant i sista lakvattnet, kontaktades det laboratorium som utfört analyserna. Efter begärd dubbelkontroll av deras GC/MS rådata från analyserna meddelade laboratoriet att alla haltvärden på naftalen och övriga ämnen var korrekta.

Den accelererade utlakningen av PAH vid högre L/S får antas främst bero av någon typ av fysikalisk/kemisk förändring i materialet. Förändringen synes ha uppkommit då materialet varit vattenmättat en tid. Trenden, se bl a Diagram 4, synes ha varit mest markant från ca L/S 0,7 vilket motsvarar ca 7 dagars kontinuerlig lakning i kolonnen. Hypotetiskt kan det ha funnits något yttre lager eller hinna som lösts upp eller spruckit efter en tid materialet varit i kontakt med vattnet och därmed tillåtit ökad utlakning av PAH. Vid samtal med VTI (K.-A. Törnström, muntlig kommunikation 2001-03-15), som utförde förberedande extraktion av M2 (och M3) för totalhaltsanalyserna, framkom att man okulärt kunde se några små sotfragment i extraktet. Detta skulle kunna tolkas så att makadammet var tjärbränt och att denna sotbeläggning på/i beläggingsmaterialet hypotetiskt hållit kvar PAHerna i materialet tills sotbeläggningen gett med sig och frigjorts. Denna hypotes kan dock inte anses helt relevant eftersom man vid VTI även såg något/några små sotfragment i extraktet från M3 och eftersom det endast var M2 som uppvisade den ovanliga lak-trenden (avseende lakresultat från M3, se avsnitt 4.3.2 nedan).

Jämförs analyserade halter av summa cancerogena PAH och summa övriga PAH med riktvärden i grundvatten vid bensinstationer (NV 4889) fås att halten summa cancerogena PAH i alla lakvattnen överskrider riktvärdet 0,2 µg/l (som mest med ca en tiopotens) och att motsvarande riktvärde för summa övriga PAH, 10 µg/l, klart överskrids i de tre sista lakvattnen (högsta medelhalten var 32 µg/l).

4.2.2.2. Akut-toxisk respons (Microtox)

Bakgrundsinformation och bedömningsgrunder avseende Microtox ges i avsnitt 4.1.2.2. I Tabell 11a, Tabell 11b och Diagram 13 och Diagram 14 (delvis även i Diagram 5 och Diagram 6) redovisas erhållna akut-tox responser (Microtox) för de undersökta lakvattnen från M2. Härav framgår att akut-tox responsen var mycket hög och låg på en relativt jämn nivå i alla lakvattnen. Vid en jämförelse med Tabell 5, Tabell 6 och Tabell 7 erhålls att alla undersökta lakvatten från M2 uppvisade mycket hög toxicitet vid likställande med grundvatten, mycket stor påverkan av punktkälla om de likställs med ytvatten och hög toxicitet om de likställs med lakvatten från avfallsupplag.

Tabell 11a. Microtox på lakvatten från beläggingsmaterial M2 uttaget vid L/S 0,0-0,06 och vid L/S 0,06-0,30.

Microtox respons. Material 2 (M2).								
Provnr L/S; l/kg	0364 Samlingsprov för L/S-intervallet 0,00-0,06				0365 Samlingsprov för L/S-intervallet 0,06-0,30			
pH	7,0				7,4			
EC; %, minuter	50; 5	50; 15	20; 5	20; 15	50; 5	50; 15	20; 5	20; 15
Respons, vol%	19	20	5	5	19	19	4,7	4,4

Tabell 11b. Microtox på lakvatten från beläggingsmaterial M2 uttaget vid L/S 0,30-0,80 och L/S 0,80-2,0.

Microtox respons. Material 2 (M2).								
Provnr L/S; l/kg	0366 Samlingsprov för L/S-intervallet 0,30-0,80				0367 Samlingsprov för L/S-intervallet 0,80-2,0			
pH	7,3				7,6			
EC; %, minuter	50; 5	50; 15	20; 5	20; 15	50; 5	50; 15	20; 5	20; 15
Respons, vol%	24	22	5,4	4,4	30	26	6,5	5,6

4.2.2.3. Microtox-respons v.s. PAH-utlakning

I Diagram 5 och i Diagram 6 jämförs erhållen akut-toxicitet med utlakade medelhalter som funktion av L/S. Härav fås att akut-toxiciteten inte enbart kan relateras till utlakade halter av PAH. Akut-toxiciteten synes alltså inte vara direkt beroende av uppkomna koncentrationsförändringar av summa cancerogena PAH eller summa övriga PAH. Detta kan vara en indirekt indikation på att okända ämnen kan ha lakats ut som har haft betydande inverkan på akut-tox responsen än de analyserade PAHerna.

Vid jämförelse mellan varje enskild analyserad PAHs halt i lakvattnen och erhållen akut-toxicitet fås att det endast är acenaftylen som uppvisar samma trend som akut-tox responsen. Acenaftylens koncentration i lakvattnen uppvisar en liten kontinuerlig minskning med ökat L/S. Det är dock inte troligt att Microtox ger selektiv respons på acenaftylen i dessa lakvatten.

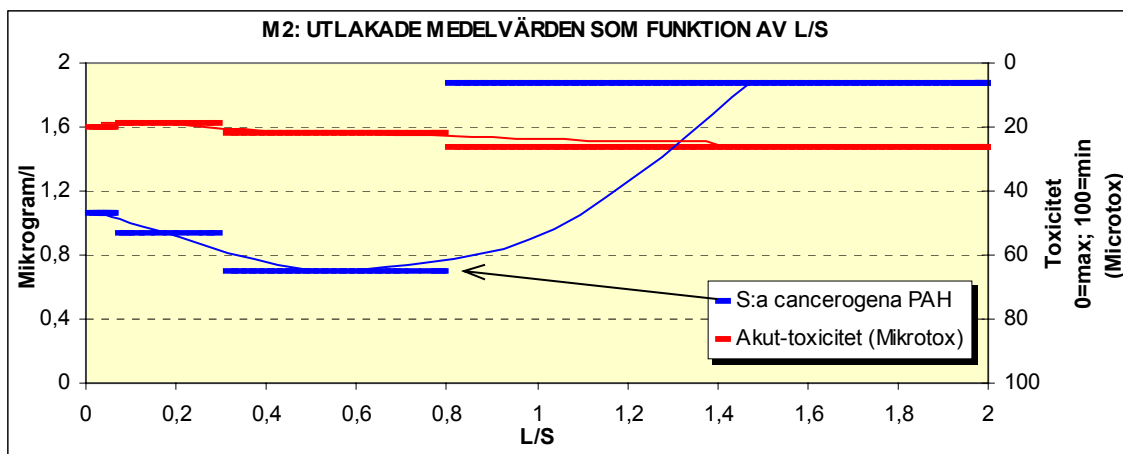


Diagram 5. Akut-toxisk respons (Microtox EC50; 15 min.) och utlakade medelvärden av halten summa cancerogena PAH som funktion av L/S (heldragna räta linjer). Kurvorna avspeglar inte medelvärde, utan är endast till hjälp för att få en uppfattning av den relativa utlakningstrenden.

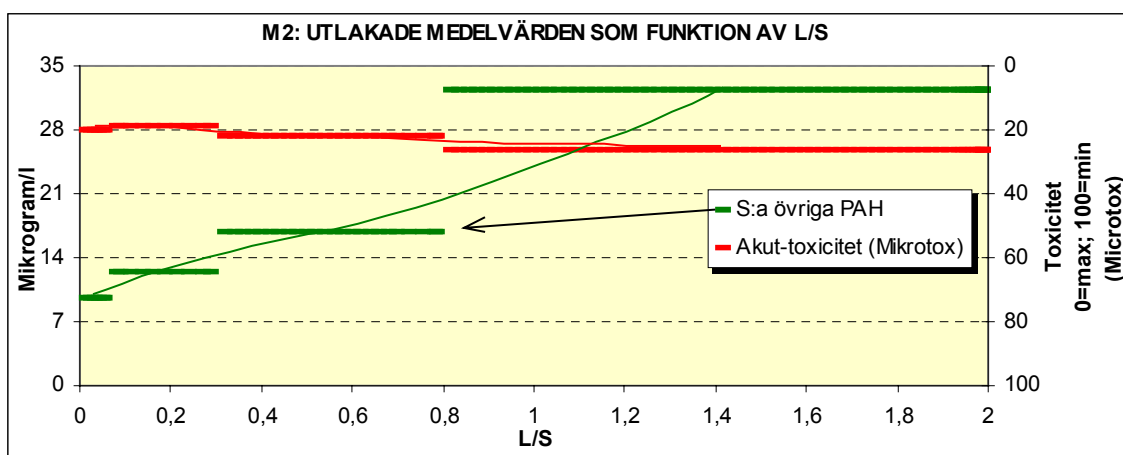


Diagram 6. Akut-toxisk respons (Microtox EC50; 15 min.) och utlakade medelvärden av halten summa övriga PAH som funktion av L/S (heldragna räta linjer). Kurvorna avspeglar inte medelvärde, utan är endast till hjälp för att få en uppfattning av den relativa utlakningstrenden.

4.3. Material 3 (M3)

4.3.1. Fastfas

Enligt resultat från extraktion (Bilaga från VTI) var vikt av M3 som genomgick totalhaltsanalys 3,0433 kg (torr totalvikt av två delprover). De två delproverna av lösningsmedel plus extrakt från M2 vägde totalt 1,42 kg och hade en densitet av 0,89 kg/l. Vattnmängden var 0,00105 kg (medel) och bindemedelsmängden var i medel 6,39 % (medel 0,09725 kg). I Bilaga (från Alcontrol) redovisas halter av 16PAH i mg/kg lösningsmedel. Dessa halter är omräknade på basis av ovanstående till mg/kg beläggningsmaterial och presenteras i Tabell 12.

Tabell 12. Totalhalter av 16 PAH i M3.

MATERIAL 3 (M3)			
Typ av PAH	Totalhalt, mg/kg TS	Typ av PAH	Totalhalt, mg/kg TS
Naftalen	13	Benso(a)antracen*	43
Acenaftylen	0,79	Chrysen*/Trifenylen a/	39
Acenaften	9,8	Benso(b)fluoranten*	36
Fluoren	31,7	Benso(k)fluoranten*	15
Fenantren	159	Benso(a)pyren*	26
Antracen	40	Indeno(1,2,3-cd)pyren*	30
Fluoranten	98	Dibenso(a,h)antracen*	4,7
Pyren	75	Σ Cancer. PAH (* ovan)	194
Benso(g,h,i)perylen	15	Total-16PAH	636
Σ Övriga PAH	442		

a/ Chrysen och trifenylen kunde ej särskiljas i analysen. Värdet ansatt att gälla för chrysen.

Vid jämförelse av dessa halter med riktvärden för förorenad jord, Tabell 3, fås att M3:s innehåll av PAH kraftigt överskrider riktvärdena för mindre känslig markanvändning, både för cancerogena PAH och övriga PAH. Detta gäller för nivå < 0,7 meter och nivå ≥ 0,7 m, båda under markyta. Exempelvis, jämfört med ned till < 0,7 m under markyta är halten summa cancerogena PAH 24 ggr högre och för summa övriga PAH 11 ggr högre än respektive riktvärde. Som nämnts ovan bör jämförelse med riktvärden för jord dock göras med stor försiktighet eftersom dessa bygger på förutsättningar som inte a priori kan överföras på asfaltbeläggningar.

4.3.2. Lakvatten

Nedan redovisas i tabell- och diagramform hur mycket av 16PAH som varje kg av detta material lakat ut, i form av ackumulerat utlakat visavi L/S. Vidare redovisas medelhalter av 16PAH i varje uttaget lakvatten och uppmätt akut-toxicitet i dessa lakvatten.

4.3.2.1. PAH-utlakning

Tabell 13 redovisar erhållna halter och beräknade ackumulerade utlakade mängder från M3. Totalt 32 µg/kg av total-16PAH hade lakats ut/ackumulerats upp till L/S 2,0, varav 1 µg/kg bestod av summa cancerogena PAH. Summa övriga PAH lakades alltså ut i avsevärt större omfattning än summa cancerogena PAH. Detta beror sannolikt på att cancerogena PAH generellt har betydligt lägre löslighet, jämfört med övriga PAH (se Tabell 16).

Diagram 7 beskriver ackumulerat utlakat som funktion av L/S. Diagram 8 och Diagram 9 ger utlakade medelhalter av summa cancerogena PAH respektive summa övriga PAH. Som framgår av Diagram 8 ökade först utlakningen av cancerogena PAH något varefter en i medeltal minskning med efterföljande utplaning erhöles.

Tabell 13. Utlakade halter och ackumulerade utlakade mängder av PAH från beläggningsmaterial M3. Alla halter med förtecknet "<" (mindre än) ligger under detektionsgräns för respektive ämne. Detektionsgränsen utgörs i dessa fall av de angivna siffervärdena.

	Utlakade medelkoncentrationer					Ackumulerat utlakat				
	Enh.\ p.nr	1038	1039	1040	1041	Enh.\ p.nr	1038	1039	1040	1041
L/S	l/kg	0-0,08	0,08-0,32	0,32-0,83	0,83-2,02	l/kg	0,08	0,32	0,83	2,02
pH		9,8	10,1	8,1	8,0		-	-	-	-
Ledningsförmåga	mS/m 25°C	20,39	18,95	12,68	9,36		-	-	-	-
Naftalen	µg/l	30	15	0,046	<0,01	µg/kg	2,4	6,0	6,0	6,0
Acenaftylen	µg/l	0,39	0,31	0,061	0,13	µg/kg	0,031	0,11	0,14	0,29
Acenaften	µg/l	7,6	6,9	3,9	1,0	µg/kg	0,61	2,3	4,3	5,4
Fluoren	µg/l	12	12	5,3	<0,03	µg/kg	0,96	3,8	6,5	<6,6
Fenantren	µg/l	18	11	0,12	0,068	µg/kg	1,4	4,1	4,1	4,2
Antracen	µg/l	5,4	3,9	1,9	0,35	µg/kg	0,43	1,4	2,3	2,8
Fluoranten	µg/l	3,2	3,1	1,5	0,81	µg/kg	0,26	1,0	1,8	2,7
Pyren	µg/l	1,8	1,8	1,5	1,1	µg/kg	0,14	0,58	1,3	2,7
Benso(a)antracen*	µg/l	0,31	0,34	0,22	0,18	µg/kg	0,025	0,11	0,22	0,43
Chrysen*/Trifenylen A/	µg/l	0,22	0,23	0,13	0,10	µg/kg	0,018	0,073	0,14	0,26
Benso(b)fluoranten*	µg/l	0,085	0,099	0,065	0,058	µg/kg	0,0068	0,031	0,064	0,13
Benso(k)fluoranten*	µg/l	0,030	0,034	0,027	0,038	µg/kg	0,0024	0,011	0,024	0,070
Benso(a)pyren*	µg/l	0,047	0,053	0,035	0,032	µg/kg	0,0038	0,017	0,034	0,072
Indeno(1,2,3-cd)pyren*	µg/l	0,015	0,022	0,019	0,020	µg/kg	0,0012	0,0065	0,016	0,040
Benso(g,h,i)perylene	µg/l	0,012	0,018	0,015	0,016	µg/kg	<1·E-3	0,0053	0,013	0,032
Dibenso(a,h)antracen*	µg/l	<0,01	<0,01	<0,01	<0,01	µg/kg	<8·E-4	<3·E-3	<8·E-3	<0,020
Σ cancer. PAH (* ovan)	µg/l	<0,72	<0,79	<0,51	<0,44	µg/kg	<0,057	<0,25	<0,50	<1,03
Σ cancer. PAH (* ovan)	µg/l	≥0,71	≥0,78	≥0,50	≥0,43	µg/kg	≥0,057	≥0,24	≥0,50	≥1,01
Σ övriga PAH	µg/l	78,4	54,0	14,3	<3,51	µg/kg	6,27	19,2	26,6	<30,7
Σ övriga PAH	µg/l				≥3,47	µg/kg				≥30,7
Total-16PAH	µg/l	79,1	54,8	14,8	<4,0	µg/kg	6,33	19,5	27,1	<31,8
Total-16PAH	µg/l				≥3,9	µg/kg				≥31,7

A/ I alla lakvattenprov överlappade de GC-detekterade signalerna från chrysen och trifenylen varandra. Angivna halter och därmed ackumulerat utlakat för hela L/S-intervallet motsvarar därför summahalt av chrysen och trifenylen.

I alla lakvattenprov överlappade de GC-detekterade signalerna från chrysen och trifenylen varandra. Angivna halter och därmed ackumulerat utlakat för hela L/S-intervallet innefattar härav summahalt av chrysen och trifenylen. Trifenylen ingår ej i beteckningen 16PAH och därmed ej heller i beteckningen summa cancerogena PAH. Bidraget av denna osäkerhet motsvarar 0,26 µg/kg eller maximalt 0,8 % av totalt utlakat ackumulerat av 16PAH och maximalt 25 % av totalt utlakat ackumulerat av cancerogena PAH, i båda fallen upp till L/S 2. Dessa procentsatser motsvarar alltså det teoretiskt maximala felet i beräknade värden för summa cancerogena PAH i det fall chrysen/trifenylen motsvarar enbart trifenylen. Om detekterade halter av chrysen/trifenylen exkluderas i summa cancerogena PAH, påverkas emellertid inte den uppkomna trenden för cancerogena PAH. Om chrysens halt relativt trifenylen istället antas starkt variera mellan de olika lakvattnen skulle dock trenden för cancerogena PAH påverkas signifikant.

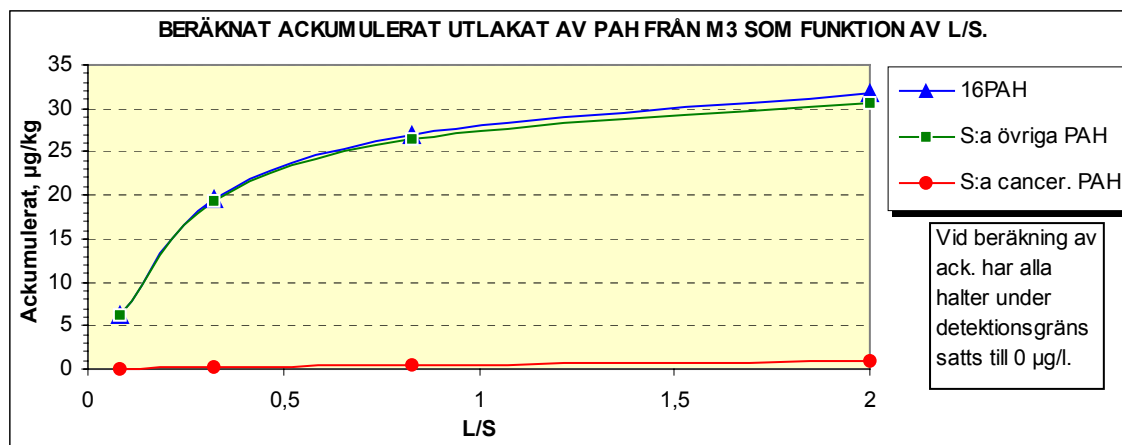


Diagram 7. Ackumulerade utlakade mängder av summa cancerogena PAH, summa övriga PAH och total-16PAH från M3, som funktion av L/S.

Utlakade medelhalter av summa övriga PAH avklingade avsevärt starkare, procentuellt sett, med ökat L/S, jämfört med summa cancerogena PAH. Detta kan delvis antas bero på de övriga PAHernas högre löslighet; de har större tendens att lakas ut snabbare och med högre koncentrationer initialt jämfört med de mer svårslösliga cancerogena PAHerna.

Jämförs analyserade halter av summa cancerogena PAH och summa övriga PAH med riktvärden i grundvatten vid bensinstationer (NV 4889) fås att halten summa cancerogena PAH i alla lakvattnen överskrider riktvärdet 0,2 µg/l (maximalt med ca 4 ggr), dock med en minskande trend med ökat L/S i de tre sista lakvattnen. Riktvärde för summa övriga PAH, 10 µg/l, överskrids i de tre första lakvattnen (maximalt med ca 8 ggr), dock även här med en minskande trend med ökat L/S.

4.3.2.2. Akut-toxisk respons (Microtox)

Bakgrundsinformation och bedömningsgrunder avseende Microtox ges i avsnitt 4.1.2.2. I Tabell 14a, Tabell 14b, Diagram 13 och i Diagram 14 (delvis även i Diagram 8 och Diagram 9) redovisas erhållna akut-tox responser (Microtox) för de undersökta lakvattnen från M3. Härav framgår att akut-tox responsen var mycket hög initialt men avtog kontinuerligt och markant med ökat L/S. Vid en jämförelse med Tabell 5, Tabell 6 och Tabell 7 erhålls att lakvattenproverna från M3, uttagna från de tre första L/S-intervallen, uppvisade mycket hög toxicitet vid likställande med grundvatten och medel-högtoxiska om de likställs med lakvatten från avfallsupplag. Det sista uttagna lakvattnet var dock lågtoxiskt vid jämförelse med lakvatten från avfallsupplag men högttoxiskt vid likställande med grundvatten. Alla lakvattnen indikerade mycket stor påverkan av punktkälla om de likställs med ytvatten.

Vid test med Microtox justeras pH till pH-neutrala värden, i de vatten som innehar pH som avviker från neutrala värden. För de tre först uttagna lakvattnen innebar detta att pH sänktes av analyslaboratoriet med saltsyra till ca pH 7. Enligt analyslaboratoriet (Maria Ståhl, Alcontrol, Malmö, muntlig kommunikation 2001-03-02, som refererar till RVF rapport av Öman m. fl, 2000) är Microtox-organismerna inte känsliga för härav

ökad kloridhalt (i form av salt) i lakvatten (klorid bildas vid neutralisering med saltsyra). Detta förutsätter dock att halten klorid före pH-sänkningen inte låg avsevärt över halter i storleksordningen tiotals gram/liter (Microtox-organismerna klarar i sin naturliga omgivning av salthalter på flera tiotals gram/liter). Konduktivitetsmätningarna (Tabell 13, Ledningsförmåga) gav indikationer på att jonstyrkan och därmed totalhalt av olika joner som t ex klorid var mycket låg i lakvattnen. Den av analyslaboratoriet utförda pH-sänkningen innan testet kan alltså anses inte ha haft någon som helst negativ effekt på testorganismerna.

Tabell 14a. *Microtox på lakvatten från beläggningsmaterial M3 uttaget vid L/S 0,0-0,08 och L/S 0,08-0,32.*

Microtox respons. Material 3 (M3).								
Provnr L/S; l/kg	1038 Samlingsprov för L/S-intervallet 0,0-0,08				1039 Samlingsprov för L/S-intervallet 0,08-0,32			
pH	10,2/6,8 *				10,1/7,2 *			
EC; %, minuter	50; 5	50; 15	20; 5	20; 15	50; 5	50; 15	20; 5	20; 15
Respons, vol%	11	10	2,5	2,4	19	18	4,3	4,1

* pH i lakvattnet: Det första värdet uppmättes av analyslaboratoriet innan tox-testet och sänktes av analyslaboratoriet till det andra värdet strax innan tox-test (i enlighet med Microtox-manual).

Tabell 14b. *Microtox på lakvatten från beläggningsmaterial M3 uttaget vid L/S 0,32-0,83 och L/S 0,83-2,02.*

Microtox respons. Material 3 (M3).								
Provnr L/S; l/kg	1040 Samlingsprov för L/S-intervallet 0,32-0,83				1041 Samlingsprov för L/S-intervallet 0,83-2,02			
pH	9,1/7,2 *				7,1			
EC; %, minuter	50; 5	50; 15	20; 5	20; 15	50; 5	50; 15	20; 5	20; 15
Respons, vol%	25	25	5,7	6,1	63	56	17	19

* pH i lakvattnet: Det första värdet uppmättes av analyslaboratoriet innan tox-testet och sänktes av analyslaboratoriet till det andra värdet strax innan tox-test (i enlighet med Microtox-manual).

4.3.2.3. Microtox-respons v.s. PAH-utlakning

I Diagram 8 och i Diagram 9 jämförs erhållen akut-toxicitet med utlakade medelhalter som funktion av L/S. Härav fås att akut-toxiciteten i medeltal minskar med ökat L/S inom det undersökta L/S-intervallet. Upp till ca L/S 0,3 ökade medelhalten av summa cancerogena PAH något medan halten av summa övriga PAH konstant minskade med ökat L/S i hela det undersökta L/S-intervallet. Akut-toxiciteten synes i detta fall inte vara direkt beroende av uppkomna koncentrationsförändringar av summa cancerogena PAH. Däremot minskade akut-tox responsen i medeltal med minskade medelhalter av summa övriga PAH. Minskningen av akut-toxiciteten synes dock inte vara proportionell mot minskad halt av summa övriga PAH. Sammantaget kan detta eventuellt vara en

indirekt indikation på att okända ämnen kan ha lakats ut som har haft inverkan på akut-tox responsen.

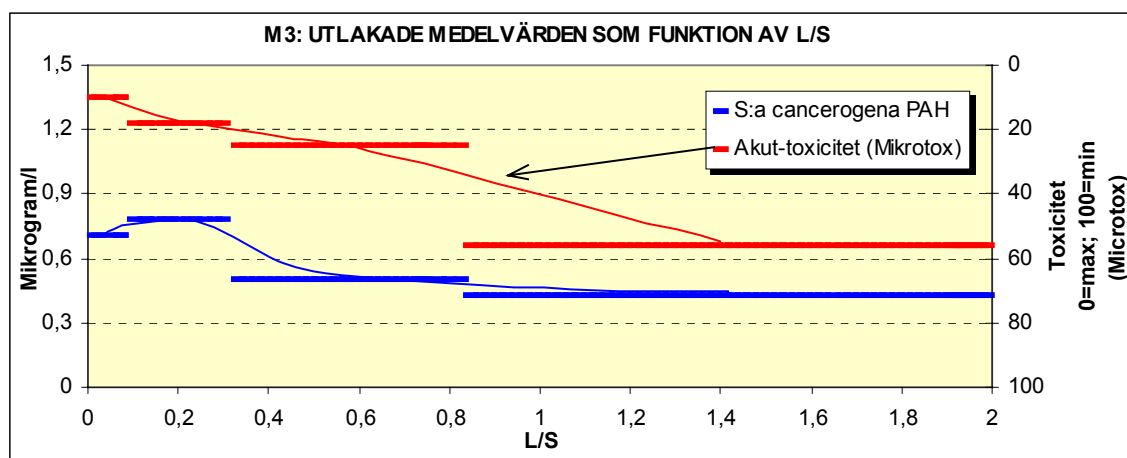


Diagram 8. Akut-toxisk respons (Microtox EC50; 15 min.) och utlakade medelvärden av halten summa cancerogena PAH som funktion av L/S (heldragna räta linjer). Kurvorna avspeglar inte medelvärde, utan är endast till hjälp för att få en uppfattning av den relativa utlakningstrenden.

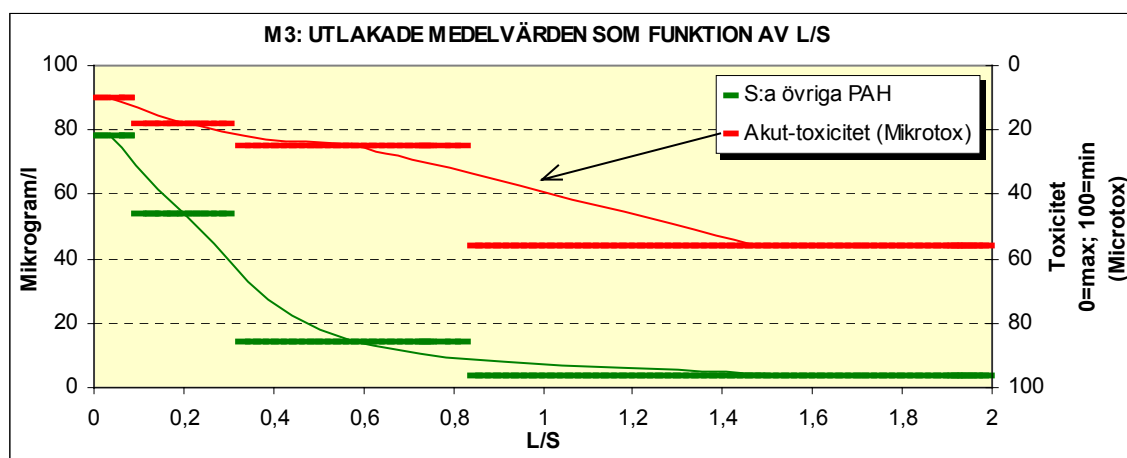


Diagram 9. Akut-toxisk respons (Microtox EC50; 15 min.) och utlakade medelvärden av halten summa övriga PAH som funktion av L/S (heldragna räta linjer). Kurvorna avspeglar inte medelvärde, utan är endast till hjälp för att få en uppfattning av den relativa utlakningstrenden.

4.3.2.4. pH-test

Som framgår av Tabell 13 var pH i de två första lakvattnen (upp till L/S 0,08 och L/S 0,08-0,32), från M3 osedvanligt höga. Ett enkelt test utfördes därför för att klarlägga om detta orsakats av M3. Från makadamdelen av den ursprungliga hela klumpen togs en liten del ut, ca 0,2 kg (detta togs alltså direkt från klumpen och ej från det lakade materialet). Detta placerades i bägare och täcktes med avjoniserat vatten. Bägaren med innehåll tillslöts och skakades lätt under ett dygn i skakapparat, varefter pH mättes i vattnet.

pH uppmättes då till 9,4, dvs högt och något under vad som uppnåddes i kolonn efter ca ett dygn (pH 9,8; L/S 0,08; Tabell 13). Materialet i sig genererade alltså högt pH i kontakt med vatten. Orsaken till varför detta material gav så högt pH är okänt.

Om vattnets höga pH påverkat utlakning av PAHerna (i fallet ökad utlakning i så fall främst för de cancerogena PAHerna, se Diagram 8 och Diagram 9) har inte gått att klargöra. I litteraturen finns angivet att PAH kan lakas ut från jord i större utsträckning vid bl a höga pH jämfört med neutrala pH (*Wahlström m. fl., 1994*). I det fallet skulle dock orsaken till del eventuellt kunna härledas till jordens humusinhåll, vilket inte kan antas ha förelegat i den nu undersökta vägbeläggningmaterialet.

4.4. Jämförelse av erhållna resultat

4.4.1. PAH i fastfas och lakvatten

Som beskrivs i kapitel 3.1 togs samlingsprov från hela den levererade klumpen av material 1. Detta samlingsprov benämndes M1. För material 2 och material 3 togs endast samlingsprov ut, benämnda M2 och M3, från det lager i respektive material som innan identifierats inneha högst PAH-innehåll (makadamlagren). Totalhalten av 16PAH i M1 var mycket lägre än i M2 och M3, Diagram 10. Vidare, ackumulerade utlakade mängder av både cancerogena PAH, Diagram 11, och övriga PAH, Diagram 12, var avsevärt större från M2 och M3 jämfört M1. M2 innehade dubbelt så hög totalhalt av både summa cancerogena PAH och summa övriga PAH, Diagram 10, jämfört med M3. Därtill lakades, upp till L/S 2, mer än dubbelt så mycket av cancerogena PAH (Diagram 11), och nästan dubbelt så mycket av övriga PAH, ut från M2 (Diagram 12), jämfört med M3.

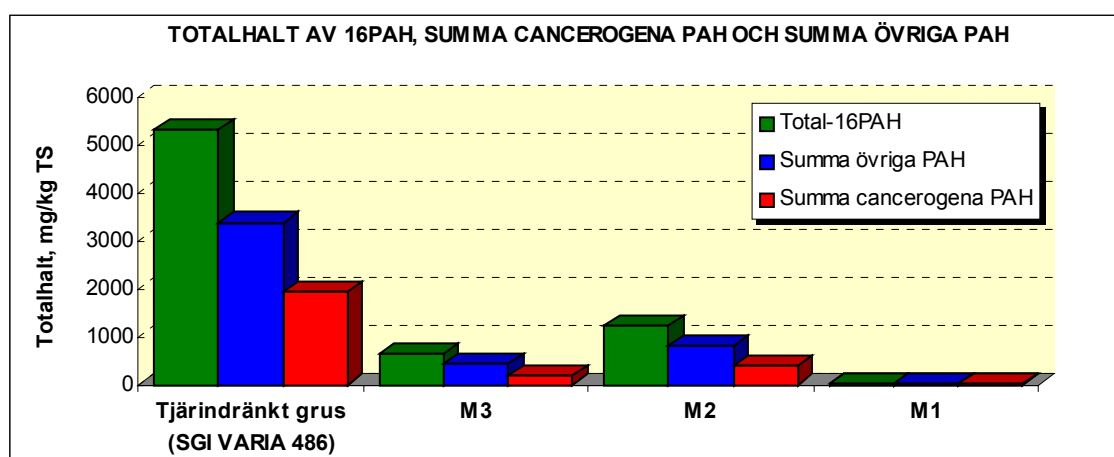


Diagram 10. Totalhalt i M1, M2 och M3 av summa cancerogena PAH och summa övriga PAH, visavi i tjärindränkt grus undersökt i SGI Varia 486.

Normalt brukar ökningen av ackumulerade utlakade mängder avta med ökat L/S. Utlakningen brukar bestå av en initialt snabb utlakningsfas av ämnen som sitter löst bundna till materialet, varefter en långsammare utlakningsfas tar vid. Den senare skulle kunna vara diffusionsstyrd. I M2:s fall erhöles inte denna karakteristik; M2 uppvisade en ut-

lakningskaraktistik vars orsaker inte direkt kan förklaras. Hypotetiskt innehöll M2 en beläggningsshinna som initialt höll tillbaka utlakning av PAH. Denna kan ha lösts upp eller spruckit upp efter att materialet varit i kontakt med vatten en tid, med ökad potential för utlakning av PAH från underliggande lager.

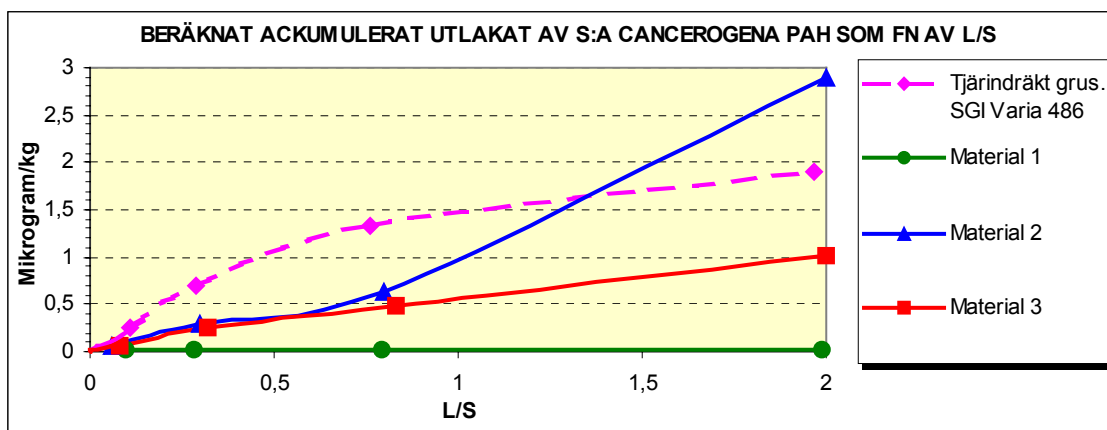


Diagram 11. Ackumulerade utlakade mängder av summa cancerogena PAH från M1, M2 och M3. Jämförelse med resultat från tjärindräkt grus (SGI Varia 486) (streckad linje).

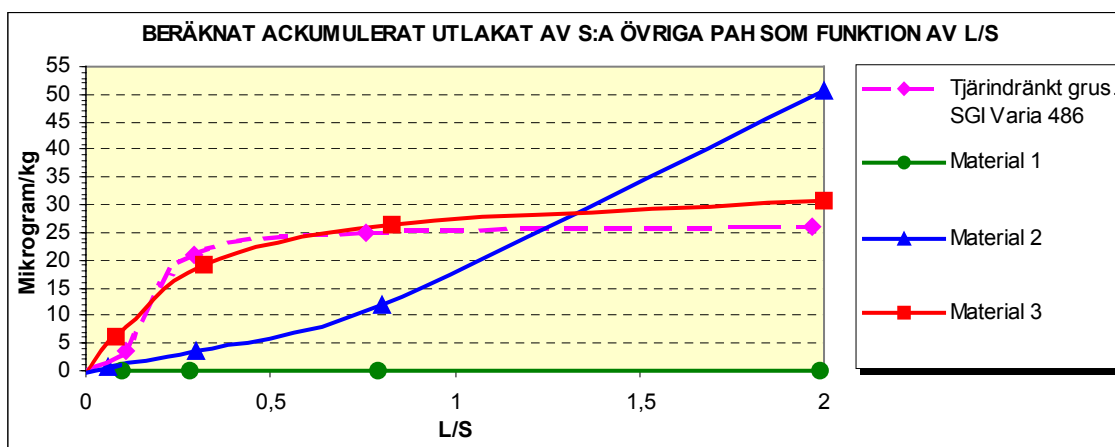


Diagram 12. Ackumulerade utlakade mängder av summa övriga PAH från M1, M2 och M3. Jämförelse med resultat från tjärindräkt grus (SGI Varia 486) (streckad linje).

Fastän M2 och M3 uppvisar olika utlakningskaraktistik ligger andel av totalhalt som lakats ut från M2 och M3 upp till L/S 2 i samma storleksordning (Tabell 15). Vid jämförelse av resultat från de nu undersökta makadamlagren M2 och M3 med resultat från tidigare undersökt beläggingsmaterial av typen tjärindräkt grus (Larsson m. fl., 2000) fås följande. Totalhalten av 16PAH i det tjärindränkta gruset var 5,3 g/kg TS, varav 1,9 g/kg TS bestod av summa cancerogena PAH. Dessa halter var ca 4-10 ggr högre än för M2 och M3 och tre tiopotenser lägre för M1. Jämförs kornstorlekskurvorna för M2 och M3 (Bilaga) med det tjärindränkta gruset (bilaga till rapporten Larsson m. fl., 2000) fås

att det sistnämnda hade mindre andel (vikts-%) finmaterial än M2 och M3. Exempelvis, material < 0,25 mm var ca 22 % i både M2 och M3, men ca 15 % för gruset, och material < 1 mm ca 28,5 % respektive ca 21,5 %. Generellt sett, ju mindre material/partiklar desto större yta per volymenhet som är teoretiskt tillgängligt för lakning. Vidare, M1:s struktur skiljde sig okulärt från M2 och M3 (se Bild 1 och Bild 2). Däremot var M2 och M3 likartade i sin struktur men skiljde sig signifikant i totalhalt. Andelen lakbart från det tjärindränkta gruset vid L/S 2 var minst, jämfört med de övriga materialen (Tabell 15). Från M2 har mest lakats ut av både cancerogena och övriga PAH (upp till L/S 2). Signifikant mindre mängd av cancerogena PAH har lakats ut från M3, jämfört med det tjärindränkta gruset, medan ungefär samma mängd övriga PAH har lakats från dessa två material (Diagram 11 och Diagram 12).

Tabell 15. Andel av totalhalt av PAH som lakats ut upp till L/S 2.

	Tjärindränkt grus	M1	M2	M3
% Utlakat av cancerogena PAH	0,000098	0,0010	0,00074	0,00052
% Utlakat av övriga PAH	0,00077	0,026	0,0061	0,0069
% Utlakat av 16PAH	0,00053	0,018	0,0044	0,0050

Preliminärt synes alltså typ av material (baserat främst på kornstorleksfördelning), och inte dess totalhalt, vara en av de avgörande faktorer som styr hur stor andel av totalhalten av PAH som lakas ut upp till L/S 2. Eftersom underlaget dock tyvärr är alltför begränsat för att kunna dra några långtgående slutsatser krävs ytterligare tester på liknande och andra tjärinnehållande beläggningsmaterial för att verifiera/dementera sådant samband. I det fall detta kommer att gå att verifiera kan det eventuellt finnas teoretiska möjligheter att utifrån främst karakterisering av materialets kornstorleksfördelning och totalhalt, erhålla vägledande information om materialets utlakningspotential med avseende på PAH.

4.4.2. Mikrottox-respons

Diagram 13 och Diagram 14 visar jämförande akut-toxresponser för de undersökta materialen. Den akut-toxiska responsen var låg för M1 men mycket hög för M2 och M3. I M2:s fall låg akut-toxiciteten på en jämn hög nivå i alla uttagna vatten. För M3 avtog akut-toxiciteten markant i sista lakvattnet.

Vid jämförelse med det tidigare undersökta tjärindränkta gruset (*Larsson m. fl., 2000*) fås att akut-toxiciteten i de nu framställda vattnen från M2 och M3 var generellt högre (Diagram 13). Det skall påpekas att tox-testerna för de nu undersökta materialens lakvatten, jämfört med lakvattnen från det tjärindränkta gruset, har utförts av två olika laboratorier. Metoden är dock densamma och standardiserad.

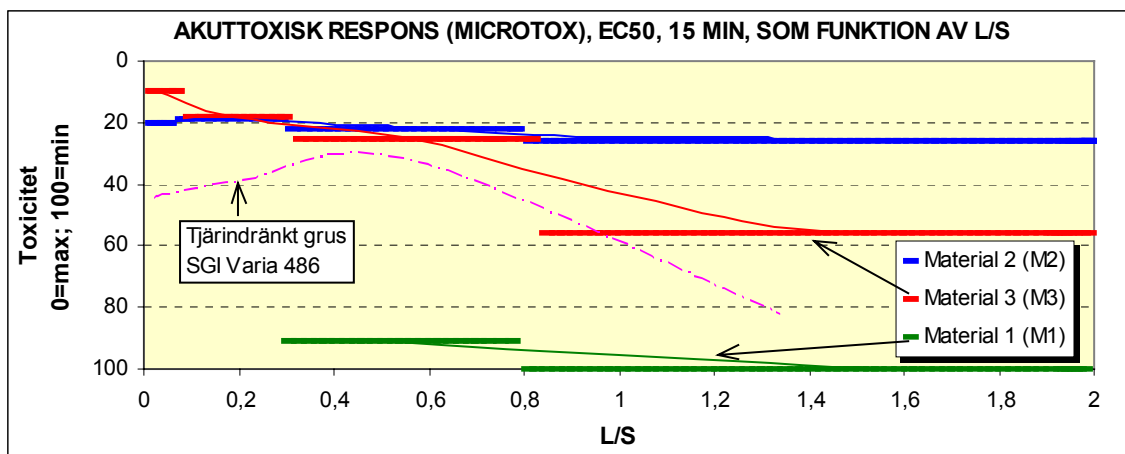


Diagram 13. Respons från Microtox EC50; 15 minuter, på lakvatten från de tre undersökta tjärinnehållande beläggingsmaterialen. Jämförelse med resultat från tjärindränkt grus (SGI Varia 486) (streckad linje). Enskilda linjer motsvarar medelvärde i intervallet från det lägre L/S upp till punktens L/S. Kurvorna avspeglar ej realvärden utan är endast till hjälp för att få en uppfattning om den relativa trenden.

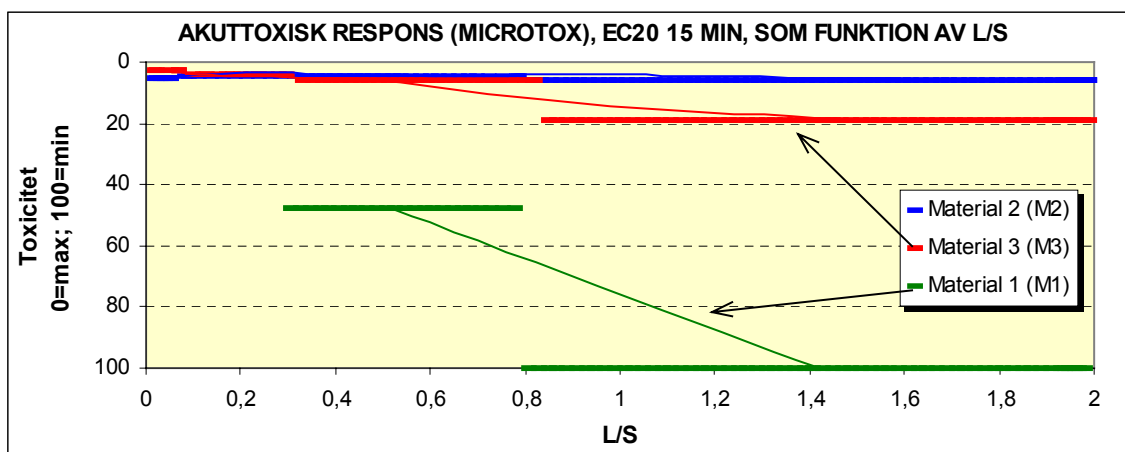


Diagram 14. Respons från Microtox EC20; 15 minuter, på lakvatten från de tre undersökta tjärinnehållande beläggingsmaterialen. Enskilda linjer motsvarar medelvärde i intervallet från det lägre L/S upp till punktens L/S. Kurvorna avspeglar ej realvärden utan är endast till hjälp för att få en uppfattning om den relativa trenden.

4.4.3. Detekterade PAH-halter v.s. maximal löslighet av enskilda PAH

I alla lakvatten har partiklar $> 0,45 \mu\text{m}$ centrifugerats bort. I Tabell 16 jämförs maximalt utlakade medelhalter av enskilda PAH med maximal löslighet av motsvarande PAH. Ingen halt överskrider, eller ligger i närheten av, enskild PAHs mättnadsgrad i vatten vid rumstemperatur. Om någon halt överskridit mättnadshalten hade detta varit ett tecken på att ämnet förelegat i signifikant koncentration som, eller i/på, småpartiklar/-

kolloider $\leq 0,45 \mu\text{m}$. Erhållna värden är dock inga bevis på att PAHerna helt förelegat i löst form.

I det fall en mix av PAHer löses i vatten brukar halterna av de enskilda PAHerna vara lägre än om varje enskild PAH ensamt löses i vatten. De i Tabell 16 angivna mätnadshalterna skulle då hypotetiskt vara något lägre i de nu undersökta lakvattnen. Om någon/några PAH förelegat i avsevärda partikulära/kolloidala halter i de centrifugerade lakvattnen skulle detta i så fall främst ha gällt någon/några av de mer svårlösliga, tyngre, PAHerna (se Tabell 16, fetmarkerade %-tal).

Tabell 16. Jämförelse mellan maximalt utlakade medelhalter och löslighet av enskilda PAH (Brown m. fl., 1999).

PAH	Löslighet mg/l, 25 °C	Max medelhalt mg/l, 20 °C			% av löslighet		
		M1	M2	M3	M1	M2	M3
Naftalen	31	0,00054	0,011	0,03	0,002	0,04	0,10
Acenaftylen	3,9	0,000016	0,00075	0,00039	0,0004	0,02	0,010
Acenaften	3,8	0,001	0,0064	0,0076	0,026	0,17	0,20
Fluoren	1,9	0,00018	0,004	0,012	0,009	0,21	0,63
Fenantren	1,1	0,0003	0,0034	0,018	0,027	0,31	1,6
Antracen	0,05	0,000039	0,0035	0,0054	0,078	7	11
Fluoranten	0,26	0,00022	0,0035	0,0032	0,085	1,3	1,2
Pyren	0,13	0,00013	0,0022	0,0018	0,10	1,7	1,4
Benso(a)antracen*	0,011	0,000039	0,00055	0,00034	0,36	5	3,1
Chrysen*	0,002	0,00004	0,00047 A/	0,00023 A/	2,0	24	12
Benso(b)fluoranten*	0,0015	0,000019	0,00032	0,000099	1,3	21	6,6
Benso(k)fluoranten*	0,0008	<0,00001	0,00012	0,000038	<1,3	15	4,8
Benso(a)pyren*	0,004	0,000011	0,00023	0,000053	0,28	5,8	1,3
Indeno(1,2,3-cd)pyren*	0,062	<0,00001	0,00015	0,000022	<0,02	0,24	0,035
Benso(g,h,i)perylene	0,0003	0,000026	0,00011	0,000018	8,7	37	6,0
Dibenso(a,h)antracen*	0,0005	<0,00001	0,000033	<0,00001	<2	6,6	<2

* Cancerogen PAH

A/ maximala värdet är detekterat som chrysen/trifenylene.

4.4.4. pH och konduktivitet

pH låg mellan 7,5 – 7,8 i lakvattnen från material M1 och i ungefär samma storleksordning i lakvattnen från M2, 7,3 – 8,0. Dessa intervall är inte onormala jämfört med tidigare kolonnlakade beläggningsmaterial (Larsson, 1998; Larsson och Bäckman, 1999; Larsson och Bäckman, 2000; Larsson m. fl., 2000). Emellertid uppvisar de två först uttagna lakvattnen från M3 avsevärt högre pH (ca pH 10). Orsaken till denna effekt är svårförklarad. Hypotetiskt kan någon form av cement/betong funnits i materialet. Detta har dock inte gått att fastställas okulärt.

Konduktiviteten, som är ett mått på jonstyrkan i vattnet, brukar minska med ökat kolonn-L/S. Konduktiviteten var låg i alla lakvattnen från M1, M2 och M3 (Tabell 4, Tabell 10, Tabell 13) och kan, vid jämförelse med lakning av andra beläggningsmaterial (Larsson, 1998; Larsson och Bäckman, 1999; Larsson och Bäckman, 2000; Larsson m. fl., 2000), anses som normala.

5. SLUTSATSER

Generellt föreligger alltid svårigheter att sätta erhållna halter och ackumulerade utlakade mängder från laboratoriestudier i relation till deras temporära reella miljöpåverkan. Inte minst beror detta på att reella förhållanden med avseende på variation i nederbörd/tidsenhet temporärt kan generera halter som vida överskrider eller vida underskrider de halter som erhållits vid lakningen. Sett över tiden kan emellertid genererade ackumulerade utlakade mängder från kolonnstudie ge information om materialets potentiella miljöpåverkan i fullskala. Resultat från laboratorieell lakning av organiska ämnen bör dock anses som mer osäkra ju längre framåt i tiden som resultaten skall avspegla. Det kan föreligga faktorer i fullskala som påverkar utlakade ackumulerade mängder, vilka inte inkluderats i laboratorieförsöken. Exempel på faktorer som kan minska utlakade mängder i fullskala är naturlig nedbrytning (biologisk/kemisk/fotokemisk) och ofta lägre reell utetemperatur än vad som föreligger under laboratorietestet (rumstemperatur). Det är därtill känt att ju längre organiska ämnen, t ex PAH, åldras i jord desto mindre blir deras förmåga att lakas ut (*Chung och Alexander, 1999; Hatzinger och Alexander, 1995*) och desto mindre blir deras biologiska tillgänglighet (*Kelsey m. fl., 1997*). Exempel på faktor som i istället eventuellt kan påskynda utlakningen i fullskala är om lakvattnet innehåller lösta humussyror.

Testet avspeglar vad materialen lakar ut i krossad form. Vid deponering av hela klumpar kan man på goda grunder anta att utlakningen per kg material blir mindre, eftersom andelen fria ytor blir mindre i okrossad form. Det skikt som indikerade tjära förelåg dock ytterst i de levererade M2- och M3-klumparnas ena del, varför utlakning av PAHer från dessa delar av klumparna genom t ex nederbörd inte å priori kan antas bli mycket lägre än vad som erhållits i de nu genomförda undersökningarna.

Lakvatten med höga halter av PAH gav generellt mycket höga akut-toxiska responser. Det går dock inte att fastställa att det skulle kunna finnas ett direkt samband mellan halt av analyserade PAH och akut-tox respons. Istället, indirekta indikationer erhöles att akut-tox responsen till del skulle kunna ha varit beroende av andra utlakade, men icke analyserade, ämnen i lakvattnen.

Material 2:s makadamlager (M2) uppvisade en för SGI tidigare okänd lak-karakteristik för organiska ämnen, utlakade från vägbeläggingsmaterial i kolonn. Från M2 ökade lakvattnens medelhalt av summa övriga PAH kontinuerligt med ökat L/S. Därtill, medelhalten av utlakat summa cancerogena PAH från detta material ökade markant i sista lakvattnet, från att ha uppvisat en något avtagande trend i de två föregående lakvattnen. Orsaken till detta beteende har inte gått att klarlägga. Hypotetiskt antas att sprickor kan ha bildats i ytdelen av materialet vid längre kontakt med vatten. Dessa sprickor skulle då eventuellt kunnat ha möjliggjort ökad utlakning av PAHer från underliggande delar. Alternativt, eller till del, kan hypotetiskt någon typ av hinna eller beläggning funnits på materialets yttre del. Denna skulle då ha haft benägenhet att lösas upp efter någon veckas vattenmättnad, resulterande i ökad potential för underliggande PAHer att lakas ut.

Preliminärt synes typ av material (baserat främst på kornstorleksfördelning), och inte dess totalhalt, vara en av de avgörande faktorer som styr hur stor andel av totalhalten av PAH som lakas ut. Ytterligare tester av liknande och andra tjärinnehållande material krävs dock för att detta skall kunna fastställas.

Material 3:s makadamlager (M3) uppvisade ovanligt höga pH i de första två uttagna lakvattnen. Orsaken till detta är okänt. Erfarenheter visar att betong/cement i beläggningmaterial kan generera förhöjt pH i lak-/yt-/grundvatten. Det är dock okänt om M3 innehöll sådant material. Det har inte gått att avgöra om detta förhöjda pH påverkat utlakningen av PAH.

Total mängd utlakat av summa cancerogena PAH per kg material och av summa övriga PAH per kg material, i båda fallen upp till L/S 2, var minst från M1 och störst från M2, enligt följande (summa cancerogena PAH i µg/kg : summa övriga PAH i µg/kg): 0,013:0,69 (M1); 1,0:30,7 (M3); 2,9:50,7 (M2).

Sammantaget görs följande preliminära bedömning:

- M1:s påverkan på omgivning genom utlakning av PAH är ringa.
- M2:s och M3:s påverkan på omgivning genom utlakning av PAH är allvarlig.

Efter att Material 2 och Material 3 placerats på impermeabelt (för vatten och lösta ämnen ogenomträngligt) underlag, från vilket eventuellt genererat lakvatten lämpligen samlas upp, föreslås att detta vatten kontrolleras och vid behov renas. Beslut tas av ansvarig miljömyndighet. Generering av lakvatten bör dock undvikas. Lakvatten genererat av nederbörd kan minimeras genom att lagra materialen under tak eller att förse materialen med ett impermeabelt täcklager.

STATENS GEOTEKNISKA INSTITUT
Regionkontor Väst
Projektledare

Lennart Larsson

REFERENSER

- Brown D., Knightes C., Peters C., 1999. Risk assessment for polycyclic aromatic hydrocarbon NAPLs using component fractions. *Environ. Sci. Technol.*, vol. 33, no. 24, pp. 4357-4363.
- Carmichael L., Christman R., Pfaender F., 1997. Desorption and mineralization kinetics of phenanthrene and chrysene in contaminated soils. *Environ. Sci. Technol.*, vol. 31, pp. 126-132.
- Chung N., Alexander M., 1999. Effect of concentration on sequestration and bioavailability of two polycyclic aromatic hydrocarbons. *Environ. Sci. Technol.* Vol. 33, pp. 3605-3608.
- Di Toro D., Horzempa L., 1982. *Environ. Sci. Technol.*, vol. 16, pp. 594.
- Förorenade områden, 1996. Vägledning för översiktliga inventeringar och riskklassningar. NV, SGU, ITM, IMM. Preliminär version.
- Hatzinger P., Alexander M., 1995. Effect of aging of chemicals in soil on their biodegradability and extractability. *Environ. Sci. Technol.*, vol. 29, pp. 537-545.
- Kelsey J., Kottler B., Alexander M., 1997. Selective chemical extractants to predict bioavailability of soil-aged organic chemicals. *Environ. Sci. Technol.*, vol. 31, 214-217.
- Larsson L., 1998. Mellanlagring av asfalt. Utlakning av uppbruten asfalt – delrapport 1. SGI Varia 468. Statens geotekniska institut.
- Larsson L., Bäckman L., 1999. Mellanlagring av asfalt. Utlakning av uppbruten asfalt – delrapport 2. Validering av kontrollprogram. SGI Varia 475, Statens geotekniska institut.
- Larsson L., Bäckman L., 2000. Utlakning från oljegrus. MAS – delrapport 3. SGI Varia 479, Statens geotekniska institut.
- Larsson L., Jacobson T., Bäckman L., 2000. Mellanlagring av asfalt. Delrapport 4 – Utlakning från vägbeläggingsmaterial innehållande stenkolstjära. SGI Varia 486, Statens geotekniska institut.
- McCall P., Agin G., 1985. Desorption kinetics of Picloram as affected by residence time in the soil. *Environ. Toxicol. Chem.*, vol. 4, pp. 37-44.
- NV Rapport 4889, 1998. Förslag till riktvärden för förorenade bensinstationer. Naturvårdsverket.
- NV Rapport 4918, 1999. Metodik för inventering av förorenade områden. Naturvårdsverket.
- Pavlostathis S., Mathavan G., 1992. *Environ. Sci. Technol.*, Vol. 26, pp. 532.
- Pignatello J., 1990. *J. Environ. Toxicol. Chem.*, vol. 9, pp. 1117.
- SLV, 1993. Livsmedelsverkets kungörelse om dricksvatten. SLV FS 1993:35.
- Svenson A., 1993. Microtox-test, en metodbeskrivning. Rapport B 1100. IVL Stockholm.
- Wahlström M., Thomassen H., Flyvbjerg J., Veltkamp A., Oscarsson C., Sundqvist J.-O., Rodd G., 1994. Leaching of organic contaminants from contaminated soils and waste materials. I *Environmental Aspects of Construction with Waste Materials*, J. Goumans, van der Sloot, T. Aalbers (Eds.), pp. 257-270. WASCON'94. Elsevier Sci. B.V.
- Öman C., Malmberg M., Wolf-Watz C., 2000. Utveckling av metoder för karakterisering av lakvatten från avfallsupplag – Slutrapport. IVL rapport B-1353 och RVFs Utvecklingsårsrapport, Deponering, Rapport nr 3, 2000.

BILAGA. ANALYSPROTOKOLL.

(Analysprotokoll föreligger endast i beställd pappersversion från SGI bibliotek)



Statens geotekniska institut
Swedish Geotechnical Institute

SE-581 93 Linköping, Sweden

Tel: 013-20 18 00, Int + 46 13 201800

Fax: 013-20 19 14, Int + 46 13 201914

E-mail: sgi@swedgeo.se Internet: www.swedgeo.se