大気汚染物質のバックグラウンド調査

Investigation on Background Level of Air Pollutant

玉 置 元 則*

1. はじめに

都市地域を中心にして、種々の大気汚染物質の測定データの集蓄積ならびに室内実験の進歩とともに、そのヒト、動植物への影響、さらには気象的・地理的因子を考慮した発生源と環境濃度との関係の解明も進みつつある。また、大気中での光化学反応の機構や、拡散、降雨等による汚染物質の移動・除去過程が研究されるなかで、汚染物質に対する従来の量的取りあつかいから、質的に取りあつかう必要性が認識されるようになった。このことは二次的な汚染物質を含めて、その地域的・季節的・時間的な量的分布あるいは発生源との関係を明らかにするだけでは不十分であり、汚染大気および清浄大気中に存在する汚染物質の生成から、変化・消滅までの循環過程を量および形態変化の両面から、トータルに把握しつつ、その内容を解明していく必要性を同時に示すものである。

2. バックグラウンドとは

バックグラウンド(background)地域は、狭義には人為的な汚染物質の影響を受けない清浄地域、広義には人為的な発生源を有する地域の後背地(背後地)も含めた非汚染地域と言えるであろうか。前者の定義では non-polluted-、ある意味では baseline-が同様の内容を有し、後者の定義では remote- (遠隔地)、non-urban- (非都市地域)、rural- (いなか、田園地帯)、backyard (背後地)、control- (対照地域)も同様の内容を有するが、いずれも source (発生源)、urban (都市部) またはその調査地域を意識した地域である。このようなバックグラウンド地域での汚染物質の濃度はバックグラウンド

濃度²⁾、地球規模での汚染はバックグラウンド汚染³⁾、さらにはバックグラウンド調査⁴⁾、バックグラウンドデータ⁵⁾、バックグラウンドレベル⁵⁾、と慣用的には用いられる。

本来、バックグラウンドとは狭義に解釈すべきであり、従来、主に気象的分野から研究され、陸地を遠く離れた海上、大陸の奥深い地域、人里離れた山岳地域、極地近くの地域、あるいは大気の上層部で測定されてきたが、大気汚染が進行するなかで、一方では人為的な影響を受けないバックグラウンド地域での濃度測定の必要性が増すとともに、他方では、実用的な意味も含め、より広義に解釈され、都市部のデータを正しく解析するために、その背後地域のデータ蓄積の必要性が増してきている。そこに、“バックグラウンド”に対する若干の混同と、用語上での混乱があるようである。

大気汚染のバックグラウンド地域(濃度)とは「人為的な source の影響を受けない、かつ自然的な source と sink (除去過程)がバランスを保っている地域、その地域での季節変動をも含む、いわゆる汚染物質の濃度」とでも言えるであろうか。以下に、大気汚染におけるバックグラウンド地域およびそこでの汚染物質の濃度の測定ならびにその有する意義について考えてみた。

3. 測定の目的

1960年代になり、バックグラウンド調査の重要性が認識されだし、1969年に世界気象機関(WMO)が、バックグラウンド汚染観測網の設立を提言し^{6,7)}、1971年にその活動を開始した。また1972年に国連環境計画(UNEP)が設けられ、このなかで地球環境監視システム(GEMS)がある⁸⁾。このような観測所では、種々の化学成分が測定されるが、気象的な要素の測定も重要な位置を占めている。

バックグラウンド調査は、本来、清浄であるべき地域における物質の濃度ならびにその地域の、言いかえれ

* 兵庫県公害研究所、主任研究員、工博

The Environmental Science Institute of Hyogo
Prefecture, Motonori, Tamaki

ば地球規模の(global-)汚染状態を把握することにあるが、大気汚染の場合におけるバックグランド濃度の測定は、さらに、現在の都市部で起きている汚染の状態を正しく総合的に評価する、つまり、汚染物質濃度に占める人為的な発生源と自然的発生源の寄与の程度を見つめるとともに、個々の汚染物質の循環系を明らかにすることにより、かつ現在大気中にほとんど存在しない物質あるいは現在汚染物質とは考えられていないものも含めて将来的な質と量の予測を行なうことにある。それは、それ自体すでに重要な問題ではあるが、単に ppm が高いからとか、すでに影響がでているからという以外の観点からの評価を加味する必要がある。

現在、大気汚染物質と考えられていない物質であっても、その量の増減によって地球規模での汚染をもたらす可能性のあるものもあり、何を汚染物質と見るかは極めて重要である。たとえば、ヒト、動植物への影響には汚染物質による間接的なものと直接的なものがあり、人為的な発生によるフロンガスが、成層圏のオゾン層を破壊し⁹⁾、その結果、本来、オゾン層で吸収されるべき紫外線の地表到達量が多くなり、皮膚ガン

せる¹⁰⁾。これらの間接的な影響(あるいは地球規模での異常気象)は、バックグランド調査をめぐりにして語ることとはできない。しかしながら、都市部では、それ以前に、もっとダイナミックな、直接的な影響を有する物質が多量、排出されている。それは室素酸化物であり、いおう酸化物であり、炭化水素であり、種々の有害な粒子状物質である。

すでに、ヒト、動植物に対して有害性が指摘されているこれらの汚染物質の低減のためにも、バックグランド調査は極めて重要な意味をもつ。それは限定された都市部だけではなく、その周辺地域、さらには本来清浄であるべきバックグランド地域まで、すでに人為的な原因による汚染がもたらされていることを明らかにするであろうし、人類の未来に対して重大な警告を発することになるだろうと思われるからである。

4. バックグランド地域

現在、地球上において、厳密な意味でバックグランド地域に相当するところ、言いかえれば聖域があるのであろうか。自然的発生源が考えられない、人為的活動にのみ伴う汚染物質が全く検出されないような地域は、もしかしたらほとんど存在しないのかもしれない。もしそうであれば、都市地域から 100 km くらい離れた後背地でも、バックグランド地域とは言えないものの、ある種の汚染物質に関しては、バックグランド濃度に近い値が求められる、求めざるを得ない場合があるかもしれない。評価という点からだけ考えるならば、都市部で数+ppb (または数+ $\mu\text{g}/\text{m}^3$) の単位で汚染物質が存在するならば、清浄地/ppb であるのか、0.1ppb であるのかはあまり問題にならないかもしれない。重要なことは、汚染物質の寿命から考えて、十分に低濃度になっているべき、都市地域の後背地でさえも、都市部での無秩序な汚染物質の排出により、広範に汚染されていることではなかろうか。

WMO の計画では、バックグランド汚染の観測を、baseline station と regional station (わが国では岩手県綾里)に分けて行なわれている^{6,7)}。前者はまさにバックグランドの測定であり、後者は地域的な土地利用によって引き起こされる、地域的な大気の汚染の推移を長期的に見ようとするものである。日本の地理的条件を考えると、目的は別にして、位置的には後者でバックグランド濃度が測定されるものと考えられる。日本の海岸地域、山岳地域、あるいは海洋・離島地域では、すべての物質に対してバックグランド濃度が得られる

図-1 フロロカーボンとオゾンの高度別濃度分布の概要¹²⁾

カリフォルニア (El Monte) 1973 年 8 月 8 日

の誘発が懸念される¹⁰⁾のは前者の例である。さらに、これは同時に成層圏の温度分布を変える¹¹⁾。図-1にフロンガスの高度分布の一例を示す¹²⁾。また CO_2 ガス濃度の増加は温室効果をもたらす、地表の温度を上昇さ

ものは少なく、どの汚染物質をターゲットにするかで、バックグラウンドとして使用できるかの判断をする必要があるものと思われる。

汚染の度合を評価する目的で、“バックグラウンド濃度”を測定する場合、風向き一つ変われば、近接地でも低濃度になる場合がある。極端な場合、幹線道路周辺の

図-2 幹線道路周辺の自動車排ガス調査地点¹⁰⁾

汚染状態を把握する時には、道路に直角風が吹けば、風上側の濃度は風下側の濃度に比して、十分、“バックグラウンド濃度”として使用できであろう¹⁰⁾(図-2)。

また、多量の降雨の後でも“バックグラウンド濃度”に近い値が得られる¹⁰⁾。我々が雨水調査した結果でも、汚染物質によっては都市部から30～50 km 離れれば十分バックグラウンド濃度になるものがある¹⁰⁾。しかしながら、粒子状物質と気体では降雨による除去機構が異なり、さらに粒子状物質および気体のなかでも物質によって輸送距離が異なる。とくに粒子状物質は粒径によって大きな差が認められる。ある限定された目的のためには、これらの地域ないしはこれらの条件下でも“バックグラウンド濃度”として使用できる場合がある。その場合には、個々の物質の大気中での性状、とりわけ除去過程を明らかにしておく必要がある。

5. 大気中での循環過程

大気汚染物質のバックグラウンド濃度を正確に把握するためには、個々の物質の大気中での挙動を明らかに

することが不可欠である。都市部で排出された汚染物質は拡散・希釈されつつ、降雨・降塵による大気からの除去以外に、植物やバクテリアによる吸収・分解、自然表面への吸着、さらには上層大気への拡散後の分解等により除去されるとともに、大気中で種々の化学反応を起こす。この化学反応によりもたらされた二次的生成物も同様の過程をへて、大気中から除去される。このような過程で完全に除去されるとすれば、バックグラウンド地域では自然的発生のみによりもたらされた物質の季節の変動のみを反映することになる。

したがって、都市部の後背地またはバックグラウンド地域における汚染物質の濃度は、個々の物質の人為的発生量と位置関係(時間)以外に、大気中の挙動に支配されるresidence time (滞留時間, 残留一, 残存一)と自然的発生量により規定されてくる。表1に各物質

表1 気体状物質の residence time (年)

物 質	Junge ¹⁷⁾	Robinson 等 ^{18, 19)}	Singh 等 ²⁰⁾
He	~ 2 × 10 ⁶		
H ₂ O	10日		
O ₃	~ 2		
CO ₂	4	2 - 4	
CO	~ 0.3	< 3	0.6
CH ₄	~ 100	4	21.5
N ₂ O	~ 4	4	> 20
NO ₂		5 日	
NH ₃		7 日	
SO ₂	5 日	4 日	
H ₂ S	40日	2 日	
CCl ₂ F ₂			65
CCl ₃ F			40
CHCl ₃			1.2
COS			1.6
CS ₂			0.4

の residence time の一例を示す。

residence time が長い物質ほど、大気中で多量蓄積されるものであり、全地球的な広域的汚染をもたらすため、一度排出されれば取りかえしのつかないことになる。また residence time が短いものであっても、環境の有している自浄作用には限界があり、その浄化能力の限度と“浄化”により生みだされる物質が何であるかを明らかにしておく必要がある。また自然的発生量が多いものであっても、それは自然のサイクルを形成しているものである以上、その量に目に見えるほど多量に人為的発生量が上積みされるようになれば、環境の破壊へと導かれる。

大気の浄化は、他の環境の汚染をもたらすことが多

い、これは降雨・降塵、自然表面への吸着による土壌・水圏の汚染や、上層大気への拡散による成層圏の汚染に見られる。同時に大気は多くの部分を水圏・土壌に接しているため、大気中の気体⇔水中の気体、イオンとの平衡が成りたっているものが多い。さらには同一の大気中であっても、気体⇔粒子中のイオン(雨水中の成分)との平衡関係にあるものがある。したがって、大気の浄化に関しては、それを含む環境全体の浄化の立場から見て行く必要がある。

6. 測定方法

バックグランド地域での汚染物質の測定としては、大気中の気体、粒子状物質以外に、ある場合には植物、動物、土壌、水圏中の汚染物質について行なわなければならない。また雨水等に含まれる汚染物質を測定することは、それが落下してきた大気の概要を把握するために、極めて有効である。また、粒子状物質は、そこに含まれる化学成分の分析以外に粒径分布、個数濃度の測定より、よりその性状が明らかにされる²⁰⁾。ちなみに WMO の baseline station では、CO₂、大気の混濁度(turbidity)、降水と乾燥降下物(precipitation)の成分の項目を測定することになっている^{6,7)}。他に CO、CH₄、SO₂、H₂S、NO_x、O₃、可降水量の測定が重要であるとしている。また、米国化学会は、一般大気中で長い寿命を持つ CO、N₂O、CH₄、CO₂、SF₆ ならびに大気の一般的な濁度(その原因となるエアロゾル)の測定が重要であると勧告している²²⁾。

このような測定は WMO の勧告に見られるように、地表の多くの地点で同時になされることが望ましい。

バックグランド濃度は、仮にそれが人為的発生源の影響を受けていなくても、日変化、季節変化があるものと思われる。たとえば、土壌バクテリアによって自然的に排出されるものであれば、温度、光の影響を受けやすい。したがって、日変化(時間変化)、季節変動、経年変化をある程度算出できる測定期間が必要である。

測定方法に関しては、短時間測定、現地分析が原則であるが、バックグランド調査はその両者とも困難な場合が多い、気体は 1 時間単位、粒子状物質も 1 日以下の単位で捕集されることが望ましいが、バックグランド地域では、検出限界以下の値を与えることが多い。したがって、気体は 8 時間～1 日、粒子状物質は 2 日～1 週間程度の捕集時間を要することもあるが、長時間捕集になれば、データ解析の困難さ以外に、捕集され

た汚染物質ならびに捕集媒体の変質、流量の変動等による捕集効率の変化(低下)、妨害物質の影響等データの信頼性が低下する。NO_xの測定に関して、低濃度域にも信頼性の高いケミルミ計を用いるような²³⁾、あるいは N₂O の測定に関して大気試料数 ml で直接分析できる GC-ECD 法を用いるような²⁴⁾、測定器機、捕集・分析方法の改良が今後のバックグランド濃度の測定に極めて重要である。また捕集してから、分析までに時間がかかるならば、その間の試料の保存に細心の注意を払う必要がある。

7. 清浄地域における濃度

表 2 に、Junge によって示されている清浄大気中の各気体状物質の濃度を示す¹⁷⁾。表 3 に、清浄大気と汚染大気に含まれる汚染物質の濃度比の一例を示す^{18,19)}。この比の大きなものは、都市部において、人為的発生源の寄与率の大きいことを示すものであり、SO₂、NO₂は大きい値を呈している。表 4 に Reiter 等によって²⁵⁾、ヨーロッパ中央部の山間(1780 m)の清浄地域で捕集された粒子状物質中の化学成分濃度を季節別に示す。

表 5 にわが国の清浄地域において測定された大気汚染物質濃度の一例を示す^{4,26,27)}。これらの地域は必ずしもすべてバックグランド地域とは言えないものの、多くの汚染物質は極めて低濃度を示し、総体的には都

表 2 清浄大気中の気体状成分の濃度¹⁷⁾

物 質	ppm	μg/m ³ STP
Ar	9300	1.6×10 ⁷
Ne	18	1.6×10 ⁴
He	5.2	920
Kr	1.1	4100
Xe	0.086	500
H ₂ O	(0.4-400)×10 ²	(3-3000)×10 ⁴
O ₃	(0-5)×10 ⁻²	0-100
H ₂	0.4-1.0	36-90
CO ₂	(2-4)×10 ²	(4-8)×10 ⁵
CO	(1-20)×10 ⁻²	(1-20)×10 ¹
CH ₄	1.2-1.5	(8.5-11)×10 ²
CH ₂ O	(0-1)×10 ⁻²	0-16
N ₂ O	(2.5-6.0)×10 ⁻¹	(5-12)×10 ²
NO ₂	(0-3)×10 ⁻³	0-6
NH ₃	(0-2)×10 ⁻²	0-15
SO ₂	(0-20)×10 ⁻³	0-50
H ₂ S	(2-20)×10 ⁻³	3-30
Cl ₂	(3-15)×10 ⁻³	1-5
I ₂	(0.4-4)×10 ⁻⁵	0.05-0.5

表 5 わが国の清浄地域における大気汚染物質濃度

物 質	単 位	山岳・森林・原野 ²⁶⁾					離 島 ²⁷⁾		
		南由利原 秋 田 県	浅草岳 新潟県	奥志賀高原 長 野 県	白山麓 石川県	芦 生 京都府	佐渡島 新潟県	福江島 長崎県	壱岐島 長崎県
SO ₂	ppb	9	5	2	5	1	3	1	10
NO	"	1	1	< 1	< 5	< 5	1	2	< 5
NO ₂	"	1	2	1	< 5	< 5	2	1	< 5
O _x	"	10	24	26	19	16	25	11	26
O ₃	"	20	17	19	16	10	6	41	29
THC	ppm	1.6	1.7	1.6	1.8	1.6	2.1	1.6	1.3
CH ₄	"	1.5	1.5	1.6	1.4	1.6			
nonCH ₄ -HC	"	0.1	0.2	0.1	0.4	0.1			
CO	"	< 0.5	< 0.5	1.0	< 0.5	0.5	< 0.5	1.2	0.8
ガス状総ハロゲン	μg/m ³	14	7.7	1.7	5.1	12	20	5	23
NH ₃	"	8.1	13	0.8	7.1	9.2			
Hg	ng/m ³	< 7	20	—	< 7	< 5			
H ₂ S	ppb	1.6	0.2	0.1	1.1	2.6			
雨	pH	6.04	4.59	(5.47)	5.69	5.23			
水	SO ₄ ²⁻	5.8	1.9	(4.5)	7.94	1.8			
	NO ₃ ⁻	2.8	0.84	(1.68)	1.00	0.7			
浮遊粉じん*)	μg/m ³	30	40	20	10	70	28	6	19
浮遊粉じん	濃度	μg/m ³	17	38	23	29	20	31	21
	灰化減量	"	—	22	—	9.4	2.2		35
	SO ₄ ²⁻	"	2.7	9.0	8.8	0.98	1.7	6.4	4.3
	NO ₃ ⁻	"	0.30	1.5	0.31	0.91	0.32	0.88	0.90
	Cd	ng/m ³	< 0.5	< 0.5	0.8	< 0.5	0.8	0.5	< 0.3
	Pd	"	< 2	20	40	10	14	16	13
	Ni	"	< 10	5	6	< 5	6	4	< 6
	Mn	"	< 4	15	18	12	5	18	< 4
	Fe	"	200	310	420	140	80	150	100
	Zn	"	19	53	50	11	16	38	33
	Co	"	< 4	< 2	< 1	< 10	< 3		27
	Cu	"	—	140	38	5	110		
	V	"	< 10	2	< 10	< 10	< 2	3	< 80

*) 自動測定器による。SO₂～COも自動測定器による

表 3 清浄大気と汚染大気における微量気体

成分濃度の差^{18, 19)}

(ppm)

物 質	清 浄 大 気 (a)	汚 染 大 気 (b)	(b) — (a)
CO ₂	320	400	1.3
CO	0.1	40～70	400～700
CH ₄	1.5	2.5	1.3
N ₂ O	0.25	(?)	—
NO ₂ (NO _x)	0.001	0.2	200
O ₃	0.02	0.5	25
SO ₂	0.0002	0.2	1000
NH ₃	0.01	0.02	2

表 4 ヨーロッパ中部の山間部の清浄地域で
捕集した粒子状物質中の化学成分濃度の
季節別平均値²⁵⁾

(ng/m³)

	冬 (49)	春 (51)	夏 (53)	秋 (47)
Na ⁺	32	62	67	49
K ⁺	28	53	99	63
ΣCaO ^{*)}	175	390	434	280
Fe ₂ O ₃	85	145	231	113
SiO ₂	429	711	975	497
Pb ²⁺	17	31	51	30
Cl ⁻	125	140	104	93
SO ₄ ²⁻	1224	3304	4721	2264
NO ₃ ⁻	547	1211	1027	826
NH ₄ ⁺	479	1306	1768	1202

() の中は試料数

*) Ca の全量を CaO の形で表現した。

市部の同様の値とは大きな差が認められる。しかしながら、このデータはそれぞれ約 1 週間程度の限られた期間、それも片よった時期(9～10 月)の調査で得られたものであるため、必ずしもその地域の年間の大気状態を正確に反映しているとはいいいがたい。わが国の清浄地域での大気汚染物質の調査は、まだその緒にといったばかりであり²⁸⁾、今後系統的なデータの蓄積を必要としている。

8. おわりに

わが国では、NO_x、SO_x、O_x等を中心にして都市部における汚染物質の測定データは膨大に蓄積されてきたにもかかわらず、その後背地、まして清浄地域における連続的な測定データはほとんどない。都市部におけるデータを正しく解析するためにも、また汚染物質の大気中での挙動を明らかにするためにも、非汚染地域での測定は極めて重要であると考えられる。しかも、それは散発的に行なわれるのではなく、系統的にかつ連続的になされなければならない。汚染物質の無秩序

な排出をおさえ、環境を保護し、人類の生存をはかるための一助として、それは急務である。

最後に、本稿記載に関し、適切な助言をいただいた兵庫県公害研究所、平木隆年研究員に深く感謝します。

引用文献

- 1) 玉置元則, 新良宏一郎, 環境技術, **6**, 261, 335(1977)
- 2) 大喜多敏一, 公害と対策, **14**, 1022(1978).
- 3) 原田 朗, “大気バックグラウンド汚染”, 共立出版, 東京(1973)
- 4) 全国公害研協議会, “環境における大気汚染物質の分布量に関する研究(バックグラウンド調査総合解析書)” (1977)
- 5) 鈴木武夫編, “大気汚染の機構と解析”: 古明地哲人, バックグラウンドデータ, p1, 産業図書, 東京(1980).
- 6) 串崎利兵衛, 原田朗, 測候時報, **38**, 1(1971).; 小林隆久, 同誌, **42**, 267(1975).
- 7) 川村 清, 気象研究ノート, 第107号, 46(1971).
- 8) B. Martin, F. Sella, *Environ. Sci. Technol.*, **10**, 230 (1976).
- 9) M. J. Molina, F. S. Rowland, *Nature*, **249**, 810 (1974).
- 10) P. J. Crutzen, D. H. Ehhalt, *Ambio*, **6**, 112 (1977).
- 11) H. B. Singh, L. Sales, H. Shigeishi, A. Crawford, *Atmos. Environ.*, **11**, 819 (1977).
- 12) L. Zafonte, N. E. Hester, E. R. Stephens, O. C. Taylor, *ibid.*, **9**, 1007 (1975).
- 13) R. A. Hanel, B. J. Conrath, V. G. Kunde, C. Prabhakara, I. Revah, V. V. Salomonson, G. Wolford, *J. Geophys. Res.*, **77**, 2629 (1972)
- 14) 鳥橋義和, 玉置元則, 吉岡昌徳, 辻本三郎丸, 沖 典男, 平木隆年, 高田亘啓, 兵庫県公害研究所研究報告, **8**, 1 (1976).
- 15) 玉置元則, 平木隆年, 日化, 投稿中.
- 16) 玉置元則, 平木隆年, 環境技術, **9**, 865 (1980).
- 17) C. E. Junge, “Air Chemistry and Radioactivity,” p 3, Academic Press, New York (1963).
- 18) E. R. Robinson, R. C. Robbins, in “Air Pollution Control,” Part II, W. Strauss, ed, p1, Wiley Interscience, New York (1972).
- 19) P. Urone, in “Air Pollution,” Volume I, 3rd ed., A.C. Stern, ed., p23, Academic Press, New York (1976)..
- 20) H. B. Singh, L. J. Sales, H. Shigeishi, A. J. Smith, E. Scrbner, L. A. Cavanagh, Draft Final Report (1979).
- 21) C. C. Wallen, *Environ. Sci. Technol.*, **9**, 30 (1975)
- 22) American Chemical Society, ed., “Cleaning Our Environment; the Chemical Basis for Action,” American Chemical Society (1969).
- 23) J. A. Ritter, D. A. Stedman, T. J. Kelly, in “Nitrogenous Air Pollutants: Chemical and Biological Implications,” D. Grosjean ed; p325, Ann Arbor Science, 1979.
- 24) D. Pierotti, R. A. Rasmussen, *J. Geophys. Res.*, **82**, 5823 (1977).
- 25) R. Reiter, R. Sladkovic, K. Pözl, *Atmos. Environ.*, **10**, 841 (1976).
- 26) 福崎紀夫他, 全国公害研会誌, **3**, 59 (1977).
- 27) 木藤寿正他, 大気汚染研究, **11** (1), 146 (1976).
- 28) 昭和51年～54年 大気バックグラウンド汚染観測年報, 気象庁 (1977～1980).