

# 二酸化鉛法による 秋田市大気中イオウ酸化物濃度の測定

伝 井 栄 ・ 佐 藤 毅

イオウ酸化物による大気汚染について地域別、季節別の汚染状況を長期間継続して測定するには、英国 D. S. I. R. の二酸化鉛法が簡便、適切であると考え、市内18ヶ所に測定地点をもうけ、昭和42年11月より測定を開始した。

44年9月までの測定結果から、つぎのことが認められた。

(1) 一部を除いて非常に軽微な汚染である。(2) 地域により汚染に差異がみられる。(3) 季節により濃度変化がある。

Wilsdon らの式により、二酸化鉛法測定値 ( $\text{mg SO}_3/\text{day}/100\text{cm}^2 \text{ PbO}_2$ ) を容量濃度 (ppm) に換算すると、各地点の平均は0.002~0.035 ppm となり、先般決定した“亜硫酸ガスの環境基準”値よりかなり低くなっている。しかし工場隣接地区では基準値を越える値が6回も測定された。

## 1. 緒 言

水質汚染や騒音などの公害と同じように、自動車の増加と化学工業の発達に伴ない、大気汚染が大きな社会問題となってきた。幸い秋田市は京浜地区などの先進地域にみられるような深刻な公害問題の発生はみられないが、秋田湾地区新産都市建設を中心とする工業の発展および自動車交通量の増大に伴う排出ガスなどによって今後公害の発生する恐れが十分あると考えられる。

いわゆる公害としては大気汚染、水質汚染、騒音、振動、悪臭、地盤沈下などいろいろある。近年、経済の高度成長に伴う燃料の流動化により、重油など石油系燃料が石炭にとってかわった。とくにイオウ含有量の多い重油などの燃焼によって生ずるイオウ酸化物による大気汚染はまことに重要な問題であり、いずれの都市にも考えられる共通のものである。その濃度は煤塵とならんで大気汚染を知るうえで重要な指標となる。

現在、秋田市においても多数の工場が稼動しており、加えて火力発電所および黒鉱精錬所の建設が進められている。これに伴いイオウ酸化物による大気汚染の増大が懸念される。著者らは継続的に大気中イオウ酸化物濃度の測定を行ない、新産都市秋田における大気汚染の実態を把握しようとするものである。

イオウ酸化物濃度の測定法は大別して、容量濃度測定法(瞬間値)と積算濃度測定法がある。後法の1つである二酸化鉛法<sup>1)</sup>は一定地域の濃度変化を長期間継続して測定するのに適すると考えられ<sup>2)3)</sup>、広く英国各地で

用いられ<sup>\*1</sup>、日本でも各地で採用されている<sup>4)</sup>。

この方法はイオウ酸化物が二酸化鉛と反応して硫酸鉛を生成することを利用したものである。この硫酸化の割合はイオウ酸化物濃度に比例し、変化率が15%以下では二酸化鉛の量には無関係であり、風速や温度による影響はわずかであることが、すでに Wilsdon ら<sup>5)</sup>により明らかにされている。

著者らはこの二酸化鉛法により秋田市のイオウ酸化物濃度を測定し、汚染の地域的分布、季節による濃度変化および汚染の経年変化について、結果を得たので報告する。

## 2. 測定方法

### 2.1 二酸化鉛円筒試料の調製

トラガントゴム液(トラガントゴム末2g, エタノール10ml, 水190ml)5mlを綿布(サンフォライズ・ブロード60番)に塗り、陶器製円筒(第1図)に巻き、乾燥後、二酸化鉛(D. S. I. R.\*<sup>2</sup>標準品の100mesh以下のもの)4gとトラガントゴム液3mlを混和して作ったペーストを刷毛で面積が約100cm<sup>2</sup>になるよう一様に塗布し、十分乾燥後デシケーターに入れて外気と遮断して保持する。

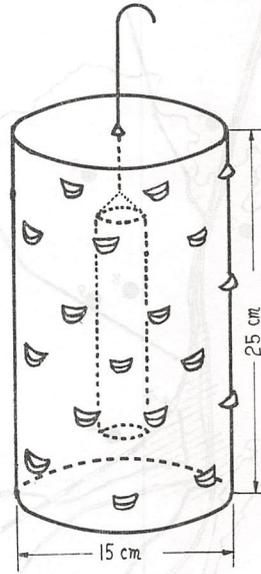
この円筒試料をブリキ製通気孔付き円筒カバー(第2図)に保持し大気中に曝露する。

\*<sup>1</sup> 1954年で約700ヶ所。

\*<sup>2</sup> Department of Scientific and Industrial Research



第1図 陶器製円筒  
斜線部：二酸化鉛ペースト塗布面



第2図 ブリキ製通気孔付き  
円筒カバー

## 2.2 クロラニル酸バリウム法<sup>6)</sup>による分析

大気中に約1ヶ月間放置した二酸化鉛円筒試料を回収し、塗布面積を測定してから綿布ごとはがし、1%炭酸ナトリウム溶液100mlを加え、水浴上でときどきかきまぜながら1時間加温する。放冷後ろ過し、洗殿と布片を1%炭酸ナトリウム溶液で数回洗浄し、ろ液を水にて250mlとし、試料溶液とする。

試料溶液25mlをとり、2.5ジニトロフェノールを指示薬として塩酸を中和(pH:4程度)し、煮沸して二酸化炭素を完全に追い出してから再び中和し、正確に50mlとする。この溶液5mlに、緩衝溶液(M/5酢酸ナトリウム36mlとM/5酢酸164ml; pH:4)5ml, エタノール10ml, およびクロラニル酸バリウム0.1gを加え10分間振とうの後ろ過する。このろ液について液長530 $\mu$ mで吸光度を測定し、あらかじめ標準溶液を用いて作成した検量線により定量する。空試験用に保存した二酸化鉛円筒についても同様に操作し、各測定値より差し引く。測定結果は $\text{mg SO}_3/\text{day}/100\text{cm}^2 \text{PbO}_2$ として表示する。

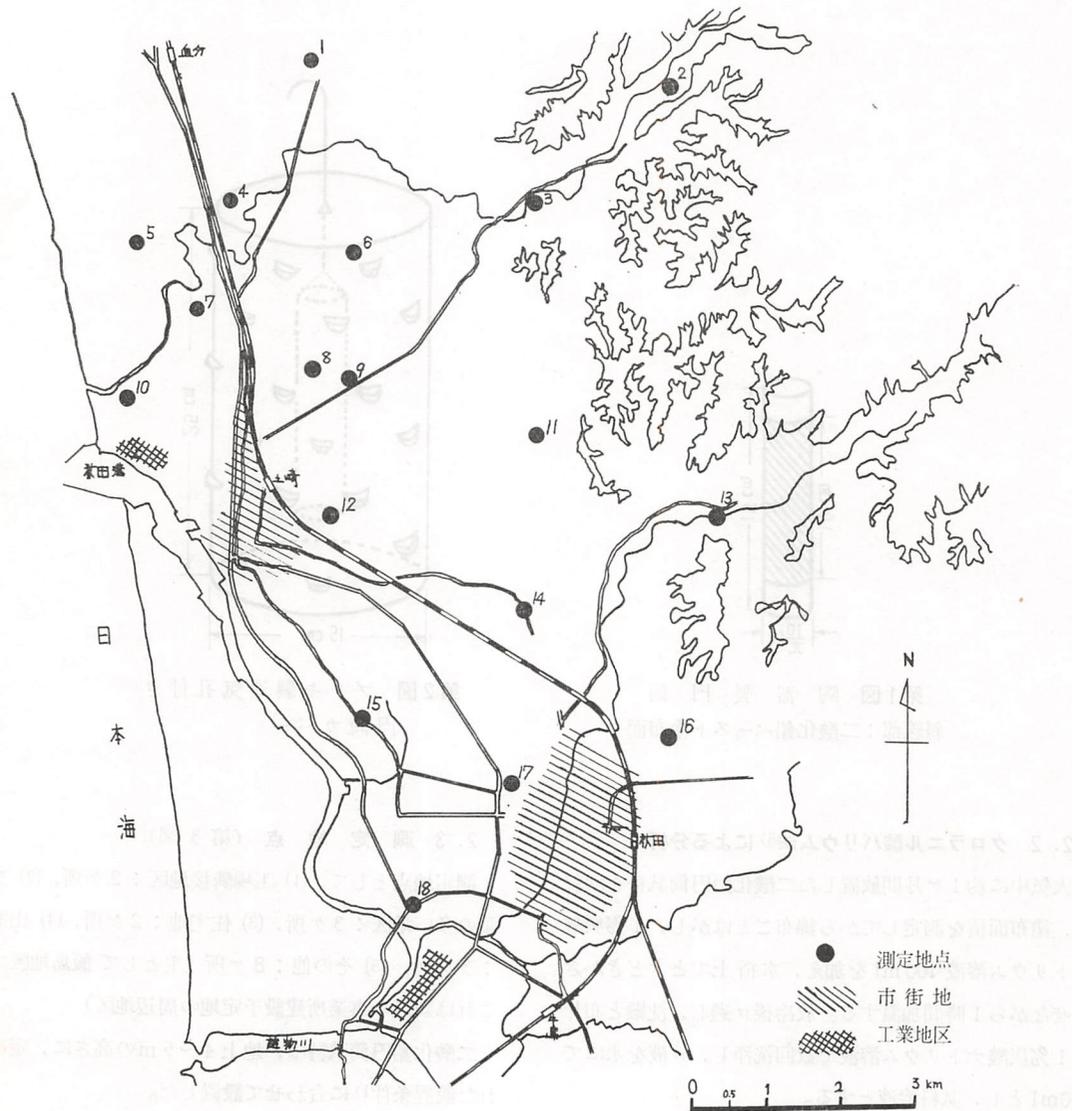
## 2.3 測定地点(第3図)

測定地点として、(1)工場隣接地区:2ヶ所、(2)交通量の多い地区:3ヶ所、(3)住宅地:2ヶ所、(4)山間部:3ヶ所、(5)その他:8ヶ所(主として飯島地区で、これは新設の事業所建設予定地の周辺地区)

二酸化鉛円筒試料は、地上4~5mの高さに、定められた設置条件<sup>1)</sup>に合わせて設置した。

## 3. 測定結果

各測定地点における2年間の測定結果を第1表(1)および(2)に、各地点の区分別平均の月別推移を第4図に示す。なお大気汚染の分布および本測定法に関して、少なからず気象の影響が考えられる<sup>1)3)7)8)</sup>ので、測定期間中の気象要素の一部を第2表に示す。また各測定月ごとの風向頻度図より、比較的北西系風の多い11月から3月までを冬期、南東系風の多い6月から10月までを夏期、それらの中間的傾向を示す春期とに分け、それぞれの平均風向風速頻度図と年平均のそれとを第5図に示す。



No.	区分	住	所	No.	区分	住	所	No.	区分	住	所
1		下	新城長岡	7		飯	島 穀 丁	13		山	添 川
2		山	上新城湯の里	8		飯	島長山下(本校)	14	住	外	旭川水口
3		山	上新城杉崎	9		飯	島 長 野	15	交	土	崎神屋敷
4		上	飯島七軒町	10	工	土	崎相築(浜ナン山)	16	住	手	形大沢
5		飯	島 堀 川	11		外	旭川笹岡	17	交	旭	北 栄 町
6		下	新城下谷地	12	交	将	軍野東一丁目	18	工	川	尻新川町

ただし、工：工場隣接地，交：交通量の多い地区，住：住宅地，山：山間地

第3図 測定地点図

第1表 イオウ酸化物汚染度測定結果(1)

(昭和42～43年)

単位  $\text{mg SO}_3/\text{day}/100\text{cm}^2 \text{PbO}_2$ 

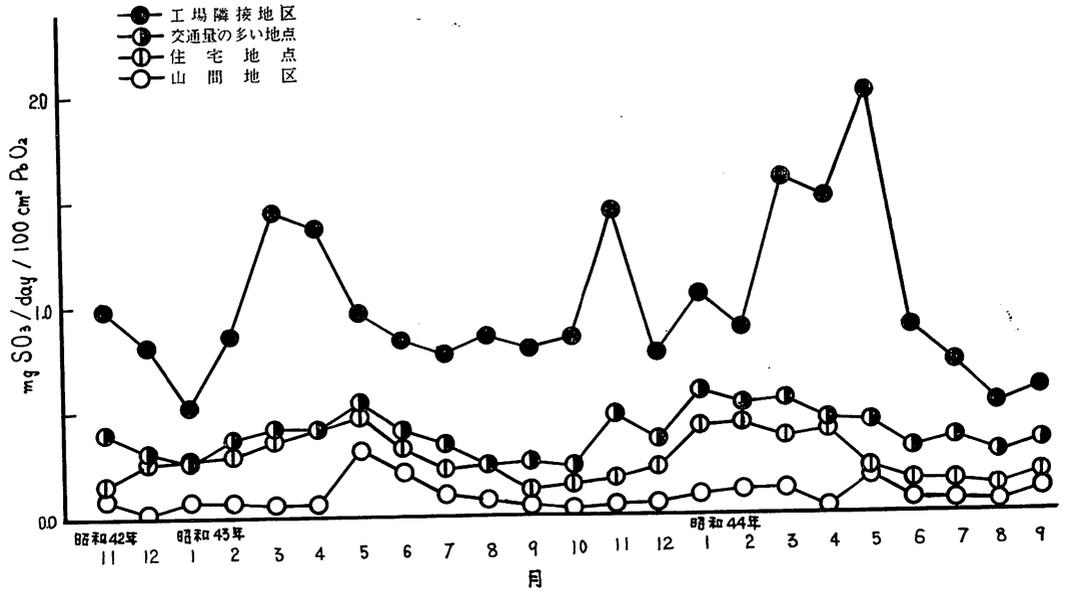
区分	No.	冬 期					春 期			夏 期					年平均		
		11	12	1	2	3	平均	4	5	平均	6	7	8	9		10	平均
工	10	0.19	0.31	0.20	0.07	0.33	0.22	0.15	0.22	0.19	0.33	0.18	0.24	0.24	0.12	0.22	0.22
	18	0.99	0.81	0.52	0.86	1.45	0.93	1.37	0.97	1.17	0.84	0.77	0.85	0.79	0.84	0.82	0.92
交	12	0.43	0.30	0.42	0.42	0.65	0.44	0.53	0.64	0.59	0.67	0.42	0.28	0.32	0.30	0.40	0.45
	15	0.27	0.22	0.13	0.27	0.44	0.27	0.26	0.42	0.34	0.19	0.28	0.16	0.21	0.16	0.20	0.25
	17	0.51	0.42	0.23	0.41	0.16	0.35	0.44	0.55	0.50	0.36	0.33	0.23	0.23	0.24	0.28	0.34
	平均	0.40	0.31	0.26	0.37	0.42	0.35	0.41	0.54	0.48	0.41	0.34	0.22	0.25	0.23	0.29	0.35
住	14	0.11	0.19	0.25	0.25	0.41	0.24	0.60	0.52	0.56	0.28	0.27	0.28	0.24	0.22	0.26	0.30
	16	0.19	0.31	0.29	0.32	0.30	0.28	0.21	0.42	0.32	0.36	0.17	0.20	0.00	0.06	0.16	0.24
	平均	0.15	0.25	0.27	0.29	0.36	0.26	0.41	0.47	0.44	0.32	0.22	0.24	0.12	0.14	0.21	0.27
山	2	0.03	0.00	0.03	0.11	0.07	0.05	0.03	0.41	0.22	0.16	0.04	0.02	0.06	0.00	0.06	0.08
	3	0.12	0.05	0.20	0.04	0.02	0.09	0.15	0.21	0.18	0.29	0.11	0.01	0.05	0.10	0.11	0.11
	13	0.12	0.01	0.00	0.05	0.08	0.05	0.00	0.34	0.17	0.17	0.14	0.17	0.04	0.00	0.10	0.09
	平均	0.09	0.02	0.08	0.07	0.06	0.06	0.06	0.32	0.19	0.21	0.10	0.07	0.05	0.03	0.09	0.10
その他	1	0.17	0.02	0.16	0.01	0.17	0.11	0.15	0.29	0.22	0.15	0.15	0.13	0.13	0.10	0.13	0.14
	4	0.25	0.30	0.17	0.08	0.35	0.23	0.15	0.24	0.20	0.28	0.21	0.06	0.27	0.11	0.19	0.20
	5	0.19	0.31	0.21	0.11	0.11	0.19	0.15	0.18	0.17	0.55	0.15	0.22	0.20	0.12	0.25	0.21
	6	0.21	0.17	0.14	0.02	0.13	0.13	0.18	0.28	0.23	0.23	0.14	0.20	0.11	0.13	0.16	0.16
	7	0.29	0.23	0.05	0.03	0.28	0.18	0.17	0.33	0.25	0.28	0.19	0.19	0.14	0.18	0.20	0.20
	8	-	0.39	0.30	0.55	0.45	0.42	0.41	0.23	0.32	0.26	0.25	0.37	0.24	0.36	0.30	0.35
	9	0.00	0.16	0.25	0.15	0.18	0.15	0.15	0.30	0.23	0.21	0.14	0.24	0.20	0.11	0.18	0.17
	11	0.13	0.10	0.29	0.14	0.44	0.22	0.26	0.29	0.28	0.29	0.15	0.00	0.14	0.09	0.13	0.19
平均	0.18	0.21	0.20	0.14	0.26	0.20	0.20	0.27	0.24	0.28	0.17	0.18	0.18	0.15	0.19	0.20	
全平均		0.25	0.23	0.21	0.22	0.32	0.25	0.30	0.38	0.34	0.33	0.23	0.21	0.20	0.18	0.23	0.26

第1表 イオウ酸化物汚染度測定結果(2)

(昭和43～44年)

単位 mg SO<sub>2</sub>/day/100cm<sup>2</sup>PbO<sub>2</sub>

区分	No.	冬 期					春 期			夏 期					年平均	全平均	
		11	12	1	2	3	平均	4	5	平均	6	7	8	9			平均
工	10	0.37	0.41	0.35	0.39	0.33	0.37	0.30	0.25	0.28	0.40	0.25	0.23	0.26	0.29	0.32	0.27
	18	1.44	0.76	1.04	0.88	1.59	1.14	1.50	2.00	1.75	0.88	0.71	0.51	0.58	0.67	1.08	1.00
交	12	0.55	0.35	0.65	0.49	0.69	0.55	0.47	0.70	0.59	0.39	0.58	0.38	0.36	0.43	0.51	0.48
	15	0.41	0.30	0.51	0.54	0.38	0.43	0.34	0.26	0.30	0.21	0.14	0.23	0.36	0.24	0.33	0.29
	17	0.44	0.39	0.57	0.54	-	0.49	0.52	0.33	0.43	0.30	0.32	0.20	0.26	0.27	0.39	0.36
	平均	0.47	0.35	0.58	0.52	0.54	0.49	0.44	0.43	0.44	0.30	0.35	0.27	0.33	0.31	0.41	0.38
住	14	0.21	0.20	0.40	0.40	0.36	0.31	0.47	0.25	0.36	0.21	0.15	0.11	0.21	0.18	0.27	0.29
	16	0.12	0.23	0.41	0.46	0.35	0.31	0.30	0.16	0.23	0.08	0.13	0.10	0.14	0.11	0.23	0.23
	平均	0.17	0.22	0.41	0.43	0.36	0.31	0.39	0.21	0.30	0.15	0.14	0.11	0.18	0.15	0.25	0.26
山	2	0.00	0.00	0.00	0.16	0.05	0.04	0.01	0.04	0.03	0.00	0.05	0.02	0.00	0.02	0.03	0.06
	3	0.09	0.13	0.21	0.16	0.25	0.17	0.09	0.36	0.23	0.17	0.01	0.06	0.16	0.13	0.15	0.13
	13	0.03	0.03	0.07	0.00	0.04	0.03	0.00	0.11	0.06	0.02	0.09	0.05	0.18	0.11	0.06	0.07
	平均	0.04	0.05	0.09	0.11	0.11	0.08	0.03	0.17	0.11	0.06	0.05	0.04	0.11	0.09	0.08	0.09
その他の	1	0.21	0.13	0.46	0.33	0.31	0.29	0.22	0.11	0.17	0.25	0.14	0.10	0.18	0.17	0.22	0.18
	4	0.18	0.10	0.44	0.45	0.41	0.32	0.09	0.00	0.05	0.18	0.04	0.00	0.05	0.09	0.18	0.19
	5	0.18	0.12	0.30	0.05	0.42	0.21	0.08	0.03	0.06	0.22	0.07	0.30	0.13	0.18	0.17	0.19
	6	0.23	0.11	0.28	0.31	0.34	0.25	0.16	0.17	0.17	0.22	0.08	0.14	0.15	0.15	0.20	0.18
	7	0.10	0.07	0.39	0.33	0.34	0.25	0.17	0.03	0.10	0.20	0.08	0.06	0.15	0.12	0.17	0.19
	8	0.65	-	0.76	1.51	0.46	0.85	0.58	0.37	0.48	-	0.23	0.35	0.32	0.30	0.58	0.42
	9	0.30	0.22	0.36	0.31	0.43	0.32	0.13	0.19	0.16	0.23	0.09	0.27	0.22	0.20	0.25	0.21
	11	0.10	0.06	0.16	0.15	0.16	0.13	0.19	0.09	0.14	0.05	0.08	0.02	0.18	0.08	0.11	0.15
平均	0.24	0.12	0.39	0.43	0.36	0.31	0.20	0.12	0.17	0.19	0.10	0.16	0.17	0.16	0.23	0.21	
全平均	0.31	0.21	0.41	0.41	0.46	0.36	0.31	0.30	0.31	0.23	0.18	0.17	0.22	0.20	0.29	0.27	



第4図 二酸化イオウ汚染の区分別平均月別推移

第2表 気象観測値(秋田气象台における測定値)

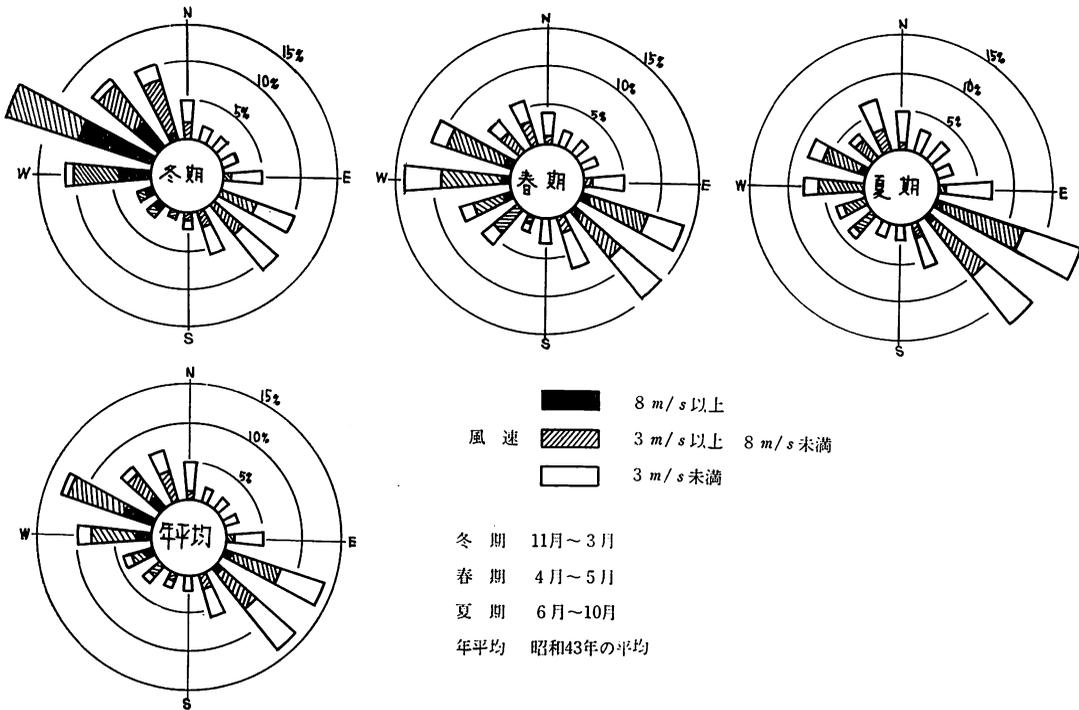
年月	風速 [m/s]		気温 [°C]			湿度 [%]	降水量 [cm]
	最大	平均	最高	最低	平均		
42 11	16.7	4.44	18.2	- 1.3	6.70	70.8	163.9
12	14.8	4.65	10.9	- 5.8	1.06	77.5	202.3
43 1	17.0	6.58	8.0	- 9.8	-0.17	73.5	133.0
2	15.0	4.66	6.9	-11.5	-1.20	74.8	109.5
3	13.2	4.76	16.3	- 4.8	4.04	69.3	80.0
4	9.5	3.15	19.1	- 0.6	9.53	71.2	106.0
5	10.5	3.52	24.4	2.9	13.73	74.8	146.5
6	13.2	3.30	28.8	8.6	19.18	73.8	78.0
7	11.5	3.91	32.9	10.5	23.39	75.9	81.0
8	10.5	3.16	31.7	15.5	23.37	82.1	338.0
9	9.0	3.51	27.3	9.6	19.59	74.3	82.5
10	11.8	3.00	26.2	2.9	11.74	74.1	100.5
11	14.5	4.01	18.5	- 1.6	8.12	74.8	141.5
12	14.7	4.14	16.4	- 4.2	4.49	76.2	155.5
44 1	13.2	4.64	8.7	- 7.4	-1.11	75.5	120.5
2	14.8	4.74	12.3	- 8.8	-0.78	81.5	61.0
3	15.7	4.48	17.9	- 7.1	1.49	68.2	73.5
4	14.2	3.84	20.7	- 1.9	8.30	73.3	206.0
5	12.7	4.43	25.5	1.6	13.89	67.2	120.0
6	11.2	3.40	30.4	8.1	17.95	79.3	84.0
7	11.2	3.24	31.9	13.8	22.75	78.3	202.0
8	11.8	2.93	30.9	15.1	23.43	82.0	243.5
9	11.0	2.56	29.4	8.1	18.58	77.6	153.5

4. 考 察

4.1 地点別イオウ酸化物汚染度

全測定地点の2年間の平均は、最低：0.06，最高：1.00，平均：0.27であった。この結果を二酸化鉛汚染度判定標準<sup>9)</sup>により判定すると，“普通度の汚染”が1点，他はすべて“軽微な汚染”以下であり，ほとんどイオウ酸化物の汚染はないと考えられる。

汚染の風向による顕著な変化はみられなかった。これは川崎など高度汚染地区に比較して排出されるイオウ酸化物の絶対量の少なさによるもので，点汚染源は多少あるがブロック的汚染源がないため，わずかな風によっても希釈され，捕集されないものと考えられる。



第5図 風 向 風 速 頻 度 図

4.1.2 交通量の多い地点および住宅地

汚染の程度は，工場隣接地区について交通量の多い地点，つぎに住宅地の順であり，これら5地点の最高値は0.70，平均値はそれぞれ0.38および0.26である。これらの地点におけるイオウ酸化物は家庭燃料に由来するものと考えられ，交通量の多い地点では，さらに自動車などの排気ガスによる分が上積みされた形になっている。

4.1.3 山 間 部

この地点は汚染が，まったくないといえる。最大値で0.41とあるがむしろ例外的で，ほとんどの値が0に近く

4.1.1 工場隣接地区

No.10は，最高値：0.41，平均値：0.27で住宅地程度の汚染である。これは隣接工場の性格上，重油の燃焼排ガスからのイオウ酸化物しか考えられず，このように低い結果が得られたものと思う。（第4図：工場地区の平均の中には入れていない。）

No.18は全測定地点のうち最も高い値を示し，平均値で1.00，最高：2.00と測定されている。この測定値はWilsdonらの換算式によると，平均：0.035ppm，最高：0.066ppmとなり，先に決定した“亜硫酸ガスの環境基準”値を上まわることになる。これは南方に位置する茨島工場地区の工場排ガス中のイオウ酸化物によるものと考えられる。

未汚染清浄地区といえよう。

4.1.4 その地の地点

これらの地点の大部分は新設事業所群の建設予定地の周辺に位置している。いずれも住宅地より低い値が測定されているが，今後これらの事業所が稼動することにより，今とは違った汚染を呈すると予想される。

例外としてNo.8は，本校屋上に取り付けたもので，学校の化学実験室でイオウ化合物（硫化水素，二酸化イオウなど）を年中排出しており，またガスや重油の消費も相当量と考えられ，平均値で0.42と，全18地点中3番目に高い値が測定されている。また44年2月に1.51と

No. 18より高い値が測定されたが、暖房ボイラーの煙が風向の関係で直接吹きつけられたものと思われる。

4.2 風向風速頻度図と汚染との関係

第5図に示した風向風速頻度図ごとに測定値の平均を第3表に示す。昭和42年から43年にかけて、最も燃料消費の大きい冬期よりも、暖房の終わった春期のほうがむしろ大きな測定値を与えている。一般に平均風速と平均イオウ酸化物濃度との関係は逆の相関にあると考えられており、第4表の季節別風速頻度に示したように、冬期と春期とでは風速にかなりの差がみられる。この場合もイオウ酸化物の排出量が少ないために、風向によるイオウ酸化物吹きつけの差よりも、風速が弱まることによる拡散の低下により、冬期より春期の方が高い測定値を与えたものと思われる。

第3表 季節別汚染度の平均

	昭和42~43年			昭和43~44年		
	冬期	春期	夏期	冬期	春期	夏期
工	0.83	1.17	0.82	1.14	1.75	0.67
交	0.35	0.48	0.29	0.49	0.44	0.31
住	0.26	0.44	0.21	0.32	0.30	0.15
山	0.06	0.19	0.09	0.08	0.10	0.09
全平均	0.25	0.34	0.23	0.36	0.31	0.20

第5表 b 値 (b × 10<sup>-4</sup>)

年	月	1	2	3	4	5	6	7	8	9	10	11	12	年平均
S	42											342	345	
	43	318	348	339	368	352	350	329	347	344	369	349	351	347
	44	349	346	348	352	332	349	346	354	373				

全平均値 0.0348

これをもとにして先に決定された“基準値”0.05ppmに相当する本測定値を算出すると、(1)式においてS = 1.44となる。市内各地点について算出してみると、市内全平均で0.009ppm、最も高い測定値を与えたNo. 18で0.035ppmである。なお、No. 18で6回、No. 8で1回、0.05ppmを越える値が測定されたことになり、秋田市は単に軽微な汚染であるといいきれないように思う。

本法による値は1ヶ月の平均であり、これと本質的に測定方法の異なる容量濃度とを直接関連づけるには、さらに検討の余地を残しているがかなり参考になると考えられ、種々データを勘案して、本測定値の単位で1.5を

第4表 季節別風速頻度 (%)

		風速	3 m/s 未 満	3~8 m/s	8 m/s 以 上
昭 和	冬期		32	48	20
42~43年	春期		49	48	3
昭 和	冬期		43	41	16
42~43年	春期		43	51	6

4.3 本測定値と容量濃度との関係

mgSO<sub>3</sub>/day/100cm<sup>2</sup>PbO<sub>2</sub>単位とppm単位との関係については Wilsdon らの研究報告<sup>5)</sup>がある。

この実験式は次のとおりである。

$$V = bS \dots\dots\dots (1)$$

V: 容量濃度 [ppm]

b: 風速・気温による定数

S: mgSO<sub>3</sub>/day/100cm<sup>2</sup>PbO<sub>2</sub>

$$b = 0.531v^{-0.25} (1 - 0.00392t) \dots\dots (2)$$

v: 風速 [ft/hr]

t: 温度 [°C]

英国において、1929~33年の5年間測定し、bの平均値として、0.038を報告している<sup>5)</sup>。秋田市におけるb値は第5表に示したとおりで、平均値: 0.0348を得た。

目安として今後の汚染を見ていくことに意義があると考えられる。

稿を終るに臨み、終始激励せられた当科主任川原良治教授、種々討論いただいた本校教官・鶴田稔氏、ならびに気象関係の資料、ご助言をいただいた、秋田地方気象台・橋本公司氏に謝意を表する。

参 考 文 献

- 1) 寺部本次訳: “大気汚染測定法” (1958) (技報堂)
- 2) 寺部本次, 原四郎, 市橋正之, 宮崎茂之: 工化, 61, 528 (1958)
- 3) 大気汚染研究全国協議会第二小委員会編: “大気

- 汚染の測定", (1962) (コロナ社)
- 4) 厚生省, 通産省: "大気汚染便覧" (1963), (日本公衆衛生協会)
  - 5) B. H. Wilsdon, F. J. Mc Connell : *J. Soc. Chem. Ind.*, **53**, 385 (1934)
  - 6) 大道真男: 分析化学, **13**, 339 (1964)
  - 7) 菅野三郎, 福井昭三, 池田陽夫, 小野芳夫: 衛生化学, **6**, 15 (1958)
  - 8) 菅野三郎, 福井昭三, 池田陽夫, 小野芳夫: 衛生化学, **6**, 20 (1958)
  - 9) 寺郎本次: 防錆管理, **6**, (4), 1 (1962)