＜報　文＞

福岡市における有害大気汚染物質モニタリング調査結果の解析*

副田　大介**・佐野　七穂**・松本　弘子**

キーワード　①有害大気汚染物質　②経年変化　③クラスタリング　④因子分析

要　　旨

福岡市における有害大気汚染物質の経年変化や測定地点の特徴把握を目的としてモニタリング結果の解析を行った。有害大気汚染物質の経年変化は，1,2-ジクロロエタンを除いて減少もしくは横ばいの傾向を示した。地点間の違いを調べるために，因子分析を行ったところ，本市の大気に影響を及ぼす因子として，工業由来や自動車排出ガス，二次生成の影響を表す因子が推定され，因子得点によるクラスタリングを用いることにより，地点間の類似性やそれぞれの地点ごとに影響を与えている因子が明らかとなった。

1. はじめに

平成8年5月に大気汚染防止法が改正され，低濃度であるが長期曝露によって人の健康を損なうおそれのある有害大気汚染物質への対策が制度化された。これを受けて対象物質リストの作成と見直しが続けられ，平成22年10月の中央環境審議会において，「有害大気汚染物質に該当する可能性がある物質」として248物質，このうち「当該物質の有害性の程度や我が国の大気環境の状況等に鑑み健康リスクがある程度高いと考えられる物質」として23の優先取組物質が選定され，地方公共団体によってモニタリング調査が実施されている。本稿では，福岡市における有害大気汚染物質の経年変化や測定地点の特徴把握を目的としてモニタリング結果の解析を行ったので報告する。

2. 調査方法

2.1 調査対象地点

福岡市は，人口約160万人の商業都市である。モニタリング調査は，毎年，市内の大気常時監視測定局4地点で行っており，平成27年度までは，香椎局，吉塚局，西新局，南局，平成28年度以降は香椎局，千鳥橋局，西新局，大橋局で実施した。測定局の位置を図1に示す。香椎局，吉塚局，南局は一般環境大気測定局（一般局）であり，千鳥橋局，西新局，大橋局は自動車排出ガス測定局（自排局）である。また，千鳥橋局は国道3号線の交差点に近接し，付近を福岡都市高速道路が通っている。

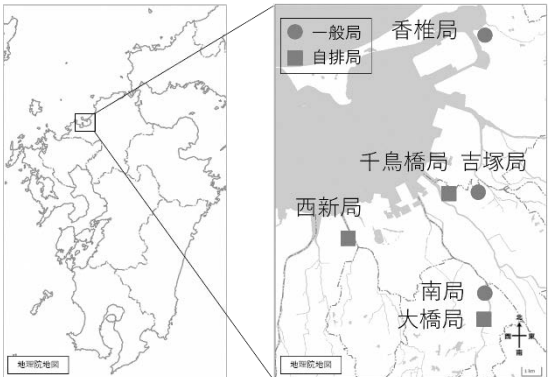

図1　福岡市内の有害大気汚染物質測定地点図

西新局及び大橋局についても，それぞれ主要な幹線道路である市道千代今宿線交差点や県道福岡筑紫野線沿道に近接している。

2.2 調査対象物質及び測定方法

優先取組物質23物質からダイオキシン類を除き，「クロム及び三価クロム化合物」及び「六価クロム化合物」は合わせて「クロム及びその化合物」とした調査対象物質21物質を表1に示し，環境基準や指針値（以下，「環境基準等」という。）が設定されている物質については，その値も示した。

測定方法は環境省「有害大気汚染物質等測定方法マニュアル」[1)]に基づき，各地点で月1回24時間の連続採取と測定を実施した。

*Analysis of Hazardous Air Pollutants monitoring data in Fukuoka City

**Daisuke SOEDA, Nanaho SANO, Hiroko MATSUMOTO（福岡市保健環境研究所）Fukuoka City Institute of Health and Environment

表1　調査対象物質

優先取組物質	環境基準（指針値）	優先取組物質	環境基準（指針値）
ベンゼン	3 μg/m³	1,3-ブタジエン	(2.5 μg/m³)
トリクロロエチレン	130 μg/m³	マンガン及びその化合物	(140 ng Mn/m³)
テトラクロロエチレン	200 μg/m³	アセトアルデヒド	(120 μg/m³)
ジクロロメタン	150 μg/m³	塩化メチル	(94 μg/m³)
アクリロニトリル	(2 μg/m³)	クロム及びその化合物	-
塩化ビニルモノマー	(10 μg/m³)	酸化エチレン	-
クロロホルム	(18 μg/m³)	トルエン	-
1,2-ジクロロエタン	(1.6 μg/m³)	ベリリウム及びその化合物	-
水銀及びその化合物	(40 ng Hg/m³)	ベンゾ[a]ピレン	-
ニッケル化合物	(25 ng Ni/m³)	ホルムアルデヒド	-
ヒ素及びその化合物	(6 ng As/m³)		

2.3 調査期間

解析対象とした調査期間は平成10年度から令和2年度までの23年間とした。但し，酸化エチレンについては平成12年度，塩化メチル及びトルエンについては平成24年度の測定開始年度以降を解析対象とした。

2.4 解析方法

対象物質のうち，検出下限値未満のものは下限値の1/2の値とした。得られたデータはR version4.0.0[2)]に供し，ward法によるクラスタリング及びヒートマップの作成，並びに因子分析を実施した。因子分析はRのpsychパッケージ[3)]における関数faによって行った。因子分析は物質の大気中濃度から共通因子を抽出し，物質にどのような影響を与えているか評価する手法である。本研究では因子抽出法として因子分析に広く用いられている最尤法，回転法としてプロマックス回転，因子得点の算出に回帰法を選択した。

3. 結果及び考察

3.1 経年変化

環境基準等が設定されている物質について，測定地点毎の経年変化を全国平均（一般環境）の経年変化と合わせて図2-1，2-2に示す。調査初期である平成10年度のベンゼンを除き，調査期間中に環境基準等を超過した物質はなかった。

ベンゼンは，平成10年度に吉塚局，西新局，南局で環境基準の3μg/m³を超過したものの，その後全地点で減少が見られ，令和2年度は0.58～0.78μg/m³であった。また，同じく減少傾向を示す1,3-ブタジエンは，平成10年度は0.19～0.46μg/m³であったが令和2年度は0.029～0.082μg/m³であった。この2物質は，一般局より自排局の濃度が高く類似の傾向を示した。2物質の主な発生源は自動車排出ガスの可能性が高いと考えられ，濃度の減少については，平成12年1月からガソリン中のベンゼンの許容限度が5体積%以下から1体積%以下に改正されたことなど規制の強化が影響していると考えられる。

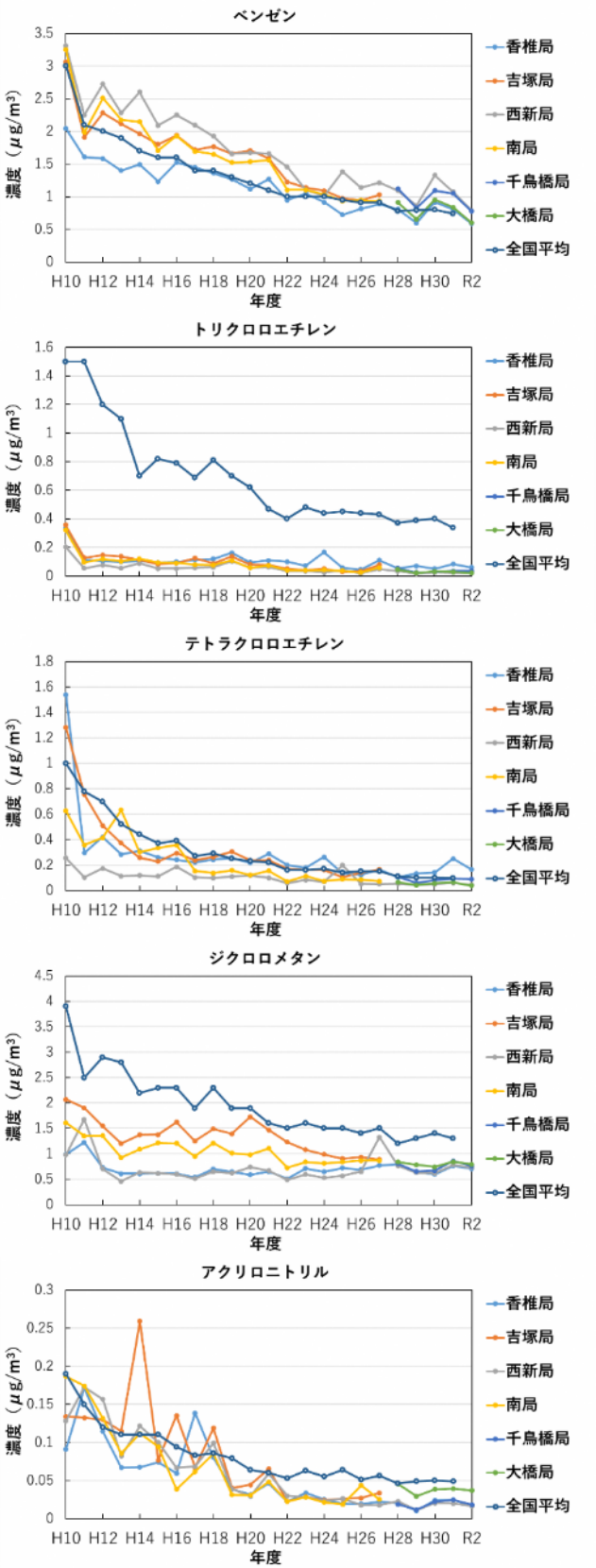

図2-1　有害大気汚染物質の大気中濃度の経年変化

トリクロロエチレン，テトラクロロエチレン，アクリロニトリルは長期的に減少傾向であり，トリクロロエチレンについては，期間を通して全ての測定局で全国平均より濃度が低く，テトラクロロエチレン，アクリロニト

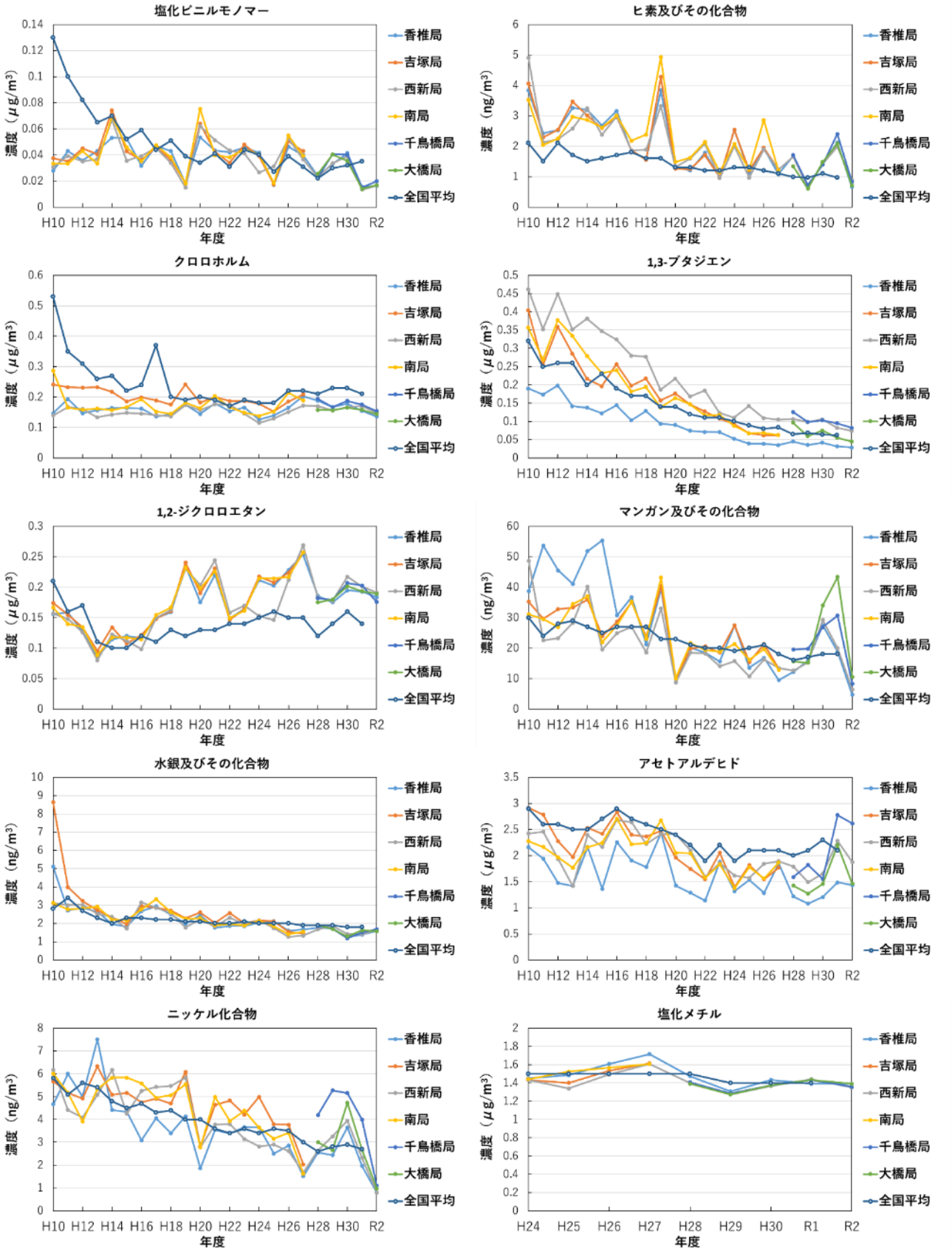

図2-2　有害大気汚染物質の大気中濃度の経年変化

リルについては，全国平均の濃度と同程度に推移した。また，ジクロロメタン，塩化ビニルモノマー，クロロホルム，塩化メチルは横ばい傾向を示しており，測定局の濃度は全国平均と同程度であった。

1,2-ジクロロエタンは長期的に増加傾向がみられた。この物質は，塩化ビニルモノマーの合成原料等として使

表2　調査対象物質の大気へのPRTR届出排出量

物質（ベンゾ[a]ピレン除く）	大気への届出排出量(kg/年)			
	福岡市		福岡県	
	H13年度	R2年度	H13年度	R2年度
ベンゼン	8,745	5,507	296,996	59,574
トリクロロエチレン	0	0	34,800	15,100
テトラクロロエチレン	4,100	0	31,770	31,500
ジクロロメタン	82	430	612,946	134,988
アクリロニトリル	0	0	6,160	597
塩化ビニルモノマー	0	0	1,040	12
クロロホルム	300	386	5,910	1,292
1,2-ジクロロエタン	0	0	15,300	3,621
水銀及びその化合物	0	0	0	0
ニッケル化合物	0	0	118	37
ヒ素及びその化合物	0	3	4	11
1,3-ブタジエン	0	0	0	0
マンガン及びその化合物	0	0	1,091	736
アセトアルデヒド	0	0	300	310
塩化メチル	0	0	200,000	0
クロム及びその化合物	21	0	27	199
酸化エチレン	920	0	10,920	64
トルエン	233,463	148,830	6,275,421	2,370,429
ベリリウム及びその化合物	0	0	0	0
ホルムアルデヒド	1	3	28,581	7,066

用され主に化学工業の事業所から排出される[4]が，福岡市のPRTR届出排出量は平成13年度から令和2年度まで0kg/年である（表2）。1,2-ジクロロエタンは全国的に増加傾向にあることが報告されており，大気中の寿命が比較的長いことから，特に九州・山口地方は越境移流の影響を強く受け，濃度上昇の度合いが大きいと指摘されている[5,6]。地点間の差も小さいことから，広域的な影響を受けていることが示唆された。

重金属類については，長期的には減少傾向であったが，マンガン及びその化合物，ヒ素及びその化合物は期間を通して全国平均よりも濃度が高い測定局が多く見られた。また令和2年度は重金属類で濃度の減少が観測され，地点間の濃度差も見られない。これは，令和2年2～3月の$PM_{2.5}$濃度が平成30～31年の同時期から30～50%減少したとの報告[7]があるように，令和2年度のCOVID-19に伴うロックダウンが一因になっている可能性が考えられた。

アセトアルデヒドについては，長期的には横ばい傾向ながらも平成29年度～令和元年度にかけて全地点で濃度が上昇している。PRTR排出量の約9割が移動体からの届出外排出量であり[8]，福岡県における移動体による届出外排出量[8,9]は，387,968kg/年（平成13年度），73,432kg/年（平成29年度），62,058kg/年（令和元年度），54,395kg/年（令和2年度）と顕著に減少しているが，長期的な経年変化は横ばい傾向であり，排出量と濃度との相関は認められなかった。これはアルデヒドの発生源として，一次排出より二次生成[10]の影響が大きいことに起因するものと考えられた。

このように福岡市内の有害大気汚染物質の経年変化は，1,2-ジクロロエタンを除き減少もしくは横ばい傾向であった。市内の固定発生源による明確な影響は確認されなかったが，自動車排出ガスによる地域的な影響や二次生成の影響，さらに越境汚染の影響を受けていることが示唆された。

3.2 測定物質間の相関

物質同士の関係性を整理するため，クラスタリング及び相関係数をヒートマップとして図3に示した。データは酸化エチレンの測定を開始した平成12年度から令和2年度までの19物質の年平均値を使用した。

解析の結果，3つのクラスターに大別され，クラスター1は1,2-ジクロロエタンのみであり，クラスター2には自動車排出ガス成分であるベンゼン，1,3-ブタジエン，ベンゾ[a]ピレンや重金属類であるニッケル化合物やマンガン及びその化合物が含まれていた。また，クラスター3には二次生成の影響が示唆されるアセトアルデヒドやホルムアルデヒド，化学工業等で使用される塩化ビニルモノマーやクロロホルムが含まれていた。クラスター1の物質は経年的に増加傾向，クラスター2の物質は減少傾向，クラスター3の物質は横ばい傾向を示していた。

ヒートマップでは，1,2-ジクロロエタンはすべて負の相関を示す青系統の色で，独立した項目となっていることが示された。また，1,3-ブタジエンとベンゼンは濃い

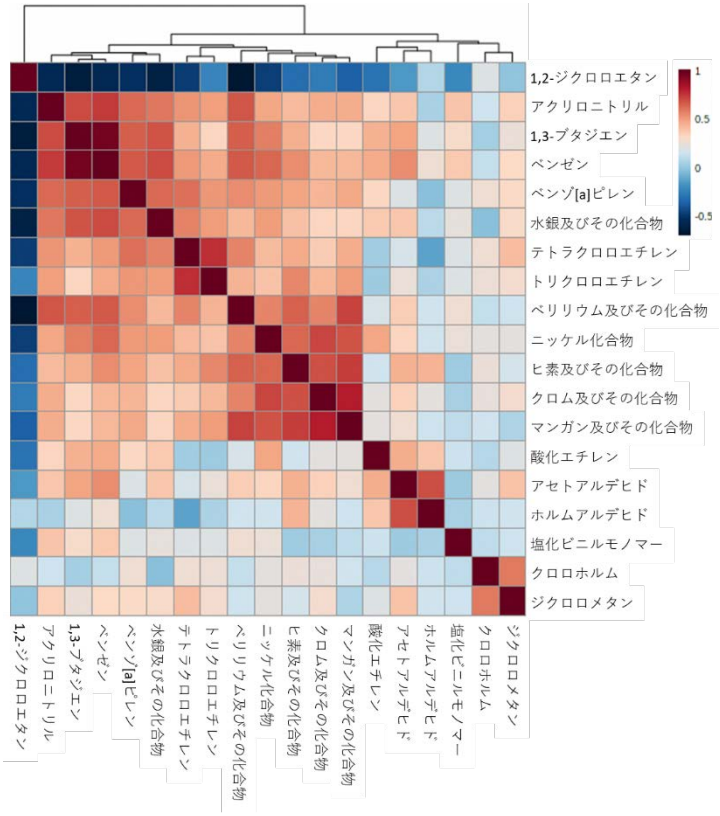

図3　有害大気汚染物質の相関

赤で表示されたことから非常に相関が高く，テトラクロロエチレンとトリクロロエチレン，マンガンとクロムなどの重金属類，アセトアルデヒドとホルムアルデヒドは比較的濃い赤で示され，高い相関があることが分かった。この手法は色で判断することができることから，物質の相関を可視化するのに有効であると考えられる。

3.3 因子分析による地点間比較

3.3.1 使用データと因子数決定

地点間の違いをより詳しく調べる目的で，モニタリング調査結果を基に因子分析を実施した。千鳥橋局，大橋局の測定を開始した平成28年度で期間を区切り，平成12～27年度をⅠ期，平成28年度～令和2年度までをⅡ期とした。因子分析により算出したⅠ期及びⅡ期の因子負荷量を表3，4に示す。因子負荷量とは物質が各共通因子から受ける影響の程度の指標であり，絶対値が大きいほどその影響は強いことを意味する。また，因子負荷量が0.4未満であるアクリロニトリル，水銀及びその化合物，酸化エチレン，塩化ビニルモノマー（Ⅱ期）については，特徴的な因子が無い物質であると見なし，解析対象から除外した。

最終的に表に示した物質について，因子の固有値をプロットしたスクリープロットを作成し，Ⅰ期，Ⅱ期いずれも因子数5に決定した。

3.3.2 発生源の推定

表3，4に示す物質ごとの因子負荷量からそれぞれの因子が示す発生源の推定を試みた。

Ⅰ期因子1，Ⅱ期因子Aと関係が強い物質はマンガン及びその化合物等の重金属類であり，これらは土壌[11]・工業由来[4]の成分であると考えられるが，主要な発生源は不明であった。

Ⅰ期因子2と関係が強いトリクロロエチレン及びテトラクロロエチレンはⅡ期では2物質のみを成分とする因子Dとして分離された。これらは脱脂洗浄剤やクリーニング溶剤の成分であるため[4,12]，地点における工業由来の影響を表していると考えられる。

Ⅰ期因子3，Ⅱ期因子Eと関係が強い物質はホルムアルデヒド，アセトアルデヒドであり，これらは二次生成による影響が大きいという報告[13,14]があることから，二次生成に関する因子と推定した。Ⅰ期因子5，Ⅱ期因子Cではベンゼンや1,3-ブタジエンが主要成分であり，これらは自動車排出ガスに含まれることから地点における自動車排出ガスによる影響を表していると考えられた。またⅠ期因子4やⅡ期因子Bは1,2-ジクロロエタン，クロロホルムが主要成分であり，福岡市での排出量は非常に少なく，広域的な影響を受けている可能性が示唆された。

表3　有害大気汚染物質の因子負荷量（Ⅰ期）

	因子1	因子2	因子3	因子4	因子5
マンガン及びその化合物	1.05	-0.10	-0.12	0.01	-0.06
ベリリウム及びその化合物	0.75	-0.04	-0.01	-0.24	0.17
クロム及びその化合物	0.68	0.20	0.02	0.04	-0.18
ニッケル化合物	0.55	0.16	0.09	0.08	-0.13
ヒ素及びその化合物	0.53	-0.13	0.06	0.26	0.18
テトラクロロエチレン	0.01	0.58	-0.09	-0.04	-0.03
ジクロロメタン	-0.12	0.56	0.11	0.27	0.02
ベンゾ[a]ピレン	0.14	0.56	-0.04	-0.11	0.24
トリクロロエチレン	0.01	0.50	-0.13	0.00	0.03
ホルムアルデヒド	-0.03	-0.20	0.84	0.06	-0.07
アセトアルデヒド	0.02	-0.02	0.81	0.05	0.02
1,2-ジクロロエタン	0.03	-0.19	0.02	0.88	0.10
クロロホルム	-0.01	0.29	0.07	0.55	0.01
ベンゼン	-0.01	0.46	0.18	0.00	0.68
1,3-ブタジエン	-0.06	0.48	0.22	-0.26	0.60
塩化ビニルモノマー	-0.03	-0.02	-0.25	0.22	0.44

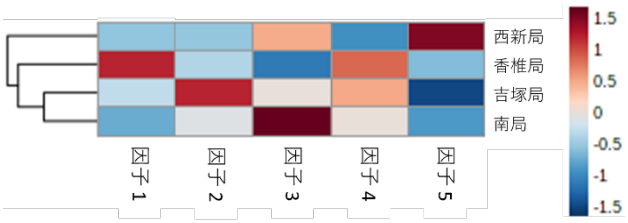

図4　因子得点による地点間比較（Ⅰ期）

表4　有害大気汚染物質の因子負荷量（Ⅱ期）

	因子A	因子B	因子C	因子D	因子E
マンガン及びその化合物	1.10	-0.14	-0.13	-0.02	-0.06
ベリリウム及びその化合物	1.09	-0.14	-0.23	-0.06	-0.08
クロム及びその化合物	0.76	-0.03	0.13	0.07	0.01
ニッケル化合物	0.47	0.08	0.13	-0.04	0.02
ヒ素及びその化合物	0.45	0.33	0.18	0.10	-0.07
1,2-ジクロロエタン	-0.08	1.00	-0.21	-0.14	-0.13
クロロホルム	-0.07	0.74	0.16	0.01	-0.07
ジクロロメタン	-0.09	0.72	-0.03	0.14	0.05
塩化メチル	0.11	0.41	-0.09	-0.06	0.23
ベンゼン	-0.05	0.25	0.85	-0.01	-0.19
1,3-ブタジエン	-0.14	-0.03	0.82	-0.09	-0.05
ベンゾ[a]ピレン	0.03	-0.06	0.50	0.02	0.03
トルエン	0.04	-0.11	0.49	0.00	0.13
トリクロロエチレン	0.01	0.02	-0.04	0.99	0.01
テトラクロロエチレン	-0.03	-0.02	-0.05	0.76	0.00
ホルムアルデヒド	-0.08	-0.05	-0.14	0.01	1.02
アセトアルデヒド	-0.04	0.02	0.14	0.01	0.65

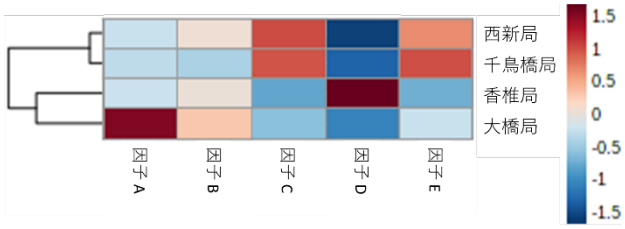

図5　因子得点による地点間比較（Ⅱ期）

3.3.3 因子得点の地点間比較

回帰法により算出した因子得点を用いてRによるクラスタリングを実施し，地点間比較を試みた結果を図4，5に示す。

Ⅰ期では，クラスタリングの結果，一般局の吉塚局及び南局が最も類似しており，ついで香椎局，さらに自排局の西新局が最も類似性が低い結果となった。自排局の西新局は一般局より因子5の自動車排出ガスの影響が大きく，因子1，2，4が低いため，類似性が低くなったと考えられる。南局は因子3は高いものの因子5は低いことから自動車排出ガスの影響は少なく，二次生成の影響が大きいと推察された。また，一般局の香椎局，吉塚局，南局を比較すると，因子得点が最も高いものは，それぞれ，因子1，因子2，因子3であり，各々の測定局に影響を与える発生源が異なっている可能性が示唆された。

Ⅱ期では，クラスタリングの結果，自排局の西新局及び千鳥橋局が最も類似しており，さらに自排局の大橋局及び一般局の香椎局もクラスターを形成した。西新局及び千鳥橋局は，大橋局，香椎局と比べて因子Cの自動車排出ガスと因子Eの二次生成の影響がいずれも高い地点となった。また，大橋局は因子Aの土壌・工業由来の影響が高く，Ⅱ期の香椎局は因子Dの工業由来の影響が高いことが推定される結果となった。

因子得点によるクラスタリング等を用いることにより，それぞれの地点ごとに影響を与えている因子が明らかとなり，特に自動車排出ガスや二次生成の影響によって地点間の特徴が異なることが示唆された。

4. まとめ

有害大気汚染物質の経年変化は、調査初期である平成10年度のベンゼンを除き，環境基準等を超過した物質はなく，1,2-ジクロロエタンを除いて減少もしくは横ばいの傾向を示した。

地点間の違いを調べるために，因子分析を行ったところ，本市の大気に影響を及ぼす因子として，工業由来や自動車排出ガス，二次生成の影響を表す因子が推定された。また、因子得点によるクラスタリング等を用いることにより，それぞれの地点ごとに影響を与えている因子が明らかとなり，特に自動車排出ガスや二次生成の影響によって地点間の特徴が異なることが示唆された。

5. 引用文献

1)　環境省：有害大気汚染物質等測定方法マニュアル，http://www.env.go.jp/air/osen/manual2/（2021.12.15アクセス）
2)　R Core Team：A language and environment for statistical computing, R Foundation for Statistical Computing, Vienna, 2019
3)　Revelle W.：Procedures for Personality and Psychological Research, Northwestern University, Evanston, 2020
4)　環境省：有害大気汚染物質モニタリング地点選定ガイドライン，https://www.env.go.jp/air/osen/law22_kijun/1308304b.pdf（2021.12.15アクセス）
5)　村岡俊彦，豊永悟史，古澤尚英，今村修，北岡宏道：九州・山口地域における有害大気汚染物質濃度の経年変化への越境大気汚染の影響.全国環境研会誌,**38**, 177-187, 2013
6)　村岡俊彦，古澤尚英，今村修，北岡宏道：九州・山口地方における有害大気汚染物質1,2-ジクロロエタン濃度の経年変化への長距離越境大気汚染の影響．大気環境学会誌，**49**，187-197，2014
7)　板橋秀一，王哲，弓本桂也，鵜野伊津志：COVID-19に対する中国のロックダウン期間における$PM_{2.5}$越境輸送の変容．大気環境学会誌，**55**，239-247，2020
8)　福岡県：PRTR集計結果，https://www.pref.fukuoka.lg.jp/contents/prtr-syuukei.html（2022.4.4アクセス）
9)　環境省：PRTRインフォメーション広場，http://www2.env.go.jp/chemi/prtr/prtrinfo/contents/syuukei.jsp（2022.4.4アクセス）
10)　環境省：SPMとオキシダントの生成メカニズム，https://www.env.go.jp/air/osen/voc/materials/101.pdf（2021.10.1アクセス）
11)　村本茂樹，米谷俊彦，平岡直子，青山勲：大気浮遊粒子状物質（SPM）中の天然および人為由来の微量金属の粒径別分布特性．岡山大学資源生物科学研究所報告，**6**，29-41，1999
12)　猪股弥生，梶野瑞王，植田洋匡：2001-2015年における大気中有害大気汚染物質濃度のトレンド解析．大気環境学会誌，**55**，78-91，2020
13)　産業技術総合研究所化学物質リスク管理研究センター：詳細リスク評価書　ホルムアルデヒド，https://unit.aist.go.jp/riss/crm/mainmenu/zantei_0.4/formaldehyde_0.4.pdf（2022.4.11アクセス）
14)　環境省：アセトアルデヒドに係る健康リスク評価について，https://www.env.go.jp/press/108315/1202.pdf（2022.4.11アクセス）