

沖縄県のバックグラウンド地点における大気中ベンゼン濃度の変動要因に関する検討

友寄喜貴

Study on Varying Factors of Ambient Benzene Concentrations at the Background Site, Okinawa

Nobutaka TOMOYOSE

要旨： 沖縄県のバックグラウンド地点として位置付けられる南城市大里における 2004～2016 年度の有害大気汚染物質調査結果から、大気中ベンゼン濃度の経年変動を確認したところ、2004～2014 年度にかけて増加傾向、その後 2014～2016 年度にかけて減少傾向にあった。PM_{2.5} 濃度でも同様の経年変動を示しており、越境大気汚染の影響が一因であることが示唆された。重回帰分析を用いて、ベンゼン濃度の変動要因を検討した結果、ベンゼン濃度は PM_{2.5} 濃度と気象因子（降水の有無および気温）から概ね予測可能となる結果が得られた。この予測式を用いて、真の年平均値の推計を試みた。

Key words： 大気中ベンゼン，経年変動，越境大気汚染，重回帰分析

I はじめに

有害大気汚染物質は、大気汚染防止法により「継続的に摂取される場合には人の健康をそこなうおそれがある物質で大気汚染の原因となるもの」と定められている。

2017 年度の所報において、沖縄県におけるバックグラウンド地点と位置付けられる南城市で実施した 13 年間（2004 年度～2016 年度）の有害大気汚染物質調査結果を基に、有害大気汚染物質の優先取組物質（21 物質）の状況および経年変動等について報告した¹⁾。同報告で、2004～2014 年度にかけて、大気中ベンゼン濃度の全国平均が減少傾向にあるのと対照的に、南城市では増加傾向にあり、2014～2016 年度にかけては減少傾向に転じていたこと、その変動傾向は微小粒子状物質（以下、「PM_{2.5}」という。）のそれと類似していたことを報告した。

本報では、沖縄県のバックグラウンド地点（南城市）における大気中ベンゼン濃度の変動要因について、さらに検討した内容を報告する。

II 方法

1. 調査地点

調査地点について、図 1 に示す。一般環境における調査地点のひとつとして、沖縄県南城市に位置する当研究所（2016 年度時点：2017 年度から新庁舎（うるま市）へ移転）の屋上（地上高 8m）にて試料採取を実施した。同地点は周囲を原野に囲まれ、集落の主要道路からは約 300m 離れており、自動車排出ガスの影響が少ない地点である。近傍に主要幹線道路や大規模な発生源等もないため、バックグラウンド地点として位置付けることができる。

2. 解析対象期間

当研究所では 2001 年度から同地点での調査を実施していたが、2003 年度に測定条件等の見直しを行ったため、測定データの継続性を考慮し、2004 年度から庁舎移転（2016 年度末）までの 13 年間で解析対象期間とした。

3. 試料採取および測定方法

大気試料の採取および測定は、有害大気汚染物質測定方法マニュアル²⁾および環境省の定めた事務処理基準³⁾に準拠した。2004 年 4 月から 2017 年 3 月までの毎月 1 回 24 時間連続採取し、容器採取-ガスクロマトグラフ質量分析法により、ベンゼン等の揮発性有機化合物を同定・定量した。

測定結果は、事務処理基準³⁾に準じ、年平均値（年 12 回測定の算術平均値）として、環境基準を評価した。

4. 偏相関および重回帰分析

ベンゼン濃度の変動要因を検討するため、統計解析ソ

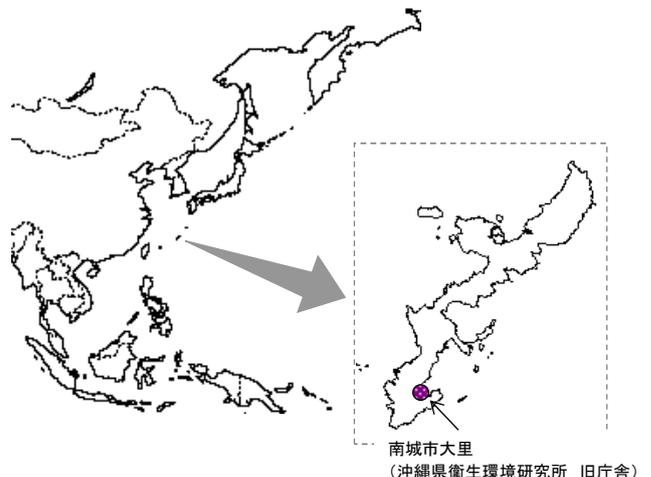


図 1. 調査地点.

フト「エクセル統計 2012」を用い、偏相関および重回帰分析を行った。変数として用いた沖縄气象台（那覇）における気象データは、気象庁ホームページ⁴⁾から入手した。PM_{2.5}質量濃度は、自動測定機による沖縄局（中部保健所）での測定結果を使用した。1,3-ブタジエン濃度は、有害大気汚染物質調査の一環として、ベンゼン測定時に同時定量した結果を用いた。

ベンゼン、PM_{2.5}、1,3-ブタジエン濃度および降水量は、対数正規分布に近い分布を示したため、濃度および降水量の対数を用いて、偏相関および重回帰分析を行った。

III 結果および考察

1. 大気中ベンゼン濃度の経年変動

沖縄県南城市における大気中ベンゼンの年平均濃度の推移について、図2に示す（既報¹⁾からの抜粋）。比較のため、全国の一般環境測定局における平均値⁵⁾（以下、「全国平均」という。）を併せて示した。

2004～2014年度にかけて、ベンゼン濃度の全国平均が減少傾向にあるのと対照的に、南城市では増加傾向にあった。2014～2016年度にかけては減少傾向に転じていた。なお、調査期間を通して、環境基準（3 μg/m³）を達成していた。

2004～2016年度のPRTR集計結果を確認したところ、沖縄県におけるベンゼンの届出排出量及び届出外排出推計量の合計が増加傾向にある物質はみられなかった⁶⁾。そのため、大気中ベンゼンの経年的増減パターンは、県内での産業活動に起因するものとは考えにくい。

南城市におけるこれまでの調査研究において、ベンゼン等の越境大気汚染が示唆されている⁷⁻⁹⁾。ベンゼンは、比較的大気中での寿命が長く、大陸側からの汚染気塊が沖縄島へ流入する際、高濃度になる現象がみられる。また、沖縄県におけるPM_{2.5}の観測結果から、PM_{2.5}の越境大気汚染が示唆されている¹⁰⁾。

PM_{2.5}とベンゼンの経年変動を比較するため、2011年度を基準とした濃度比の変動を図3に示す（既報¹⁾からの抜粋）。沖縄県におけるPM_{2.5}質量濃度の測定は、沖縄局（中部保健所）で2011年度に開始したのが最も古い。図3には、沖縄局における2011年度以降のPM_{2.5}質量濃度を有害大気汚染物質の調査日に合わせて集計した年平均値を示した。図3に示したとおり、ベンゼンの経年的な増減パターンが、PM_{2.5}のそれと類似していたこと（相関係数 r=0.77）から、越境大気汚染による影響が一因となっているものと考えられた。

2. 大気中ベンゼン濃度の季節変動

2004年4月から2017年3月までの経月変動を図4に示す。季節変動を明確にするため、3ヶ月移動平均を併せて示した。ベンゼン濃度は、太平洋側からの風向が卓越する夏期に低く、大陸側からの風向が卓越する冬期に高くなる季節変動がみられた。

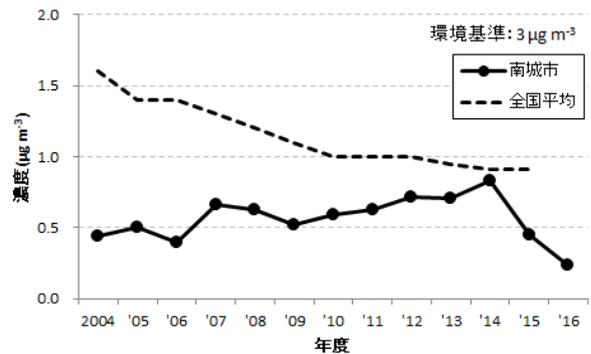


図2. ベンゼンの年平均濃度の経年変動¹⁾。

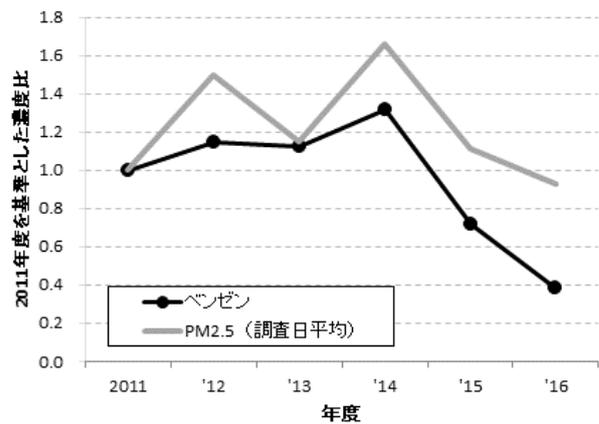


図3. 2011年度を基準としたベンゼンおよびPM_{2.5}の濃度比の経年変動¹⁾。PM_{2.5}濃度はベンゼンの調査日に合わせて集計した年平均値を用いた。

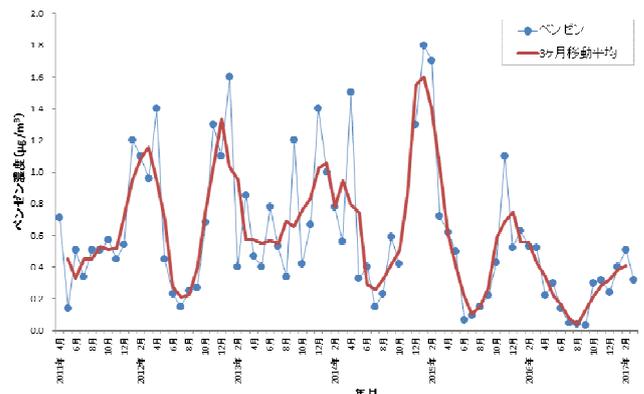


図4. ベンゼン濃度の経月変動。

3. 重回帰分析によるベンゼン濃度変動要因の検討

ベンゼン濃度の変動要因を検討するため、2004年4月から2017年3月までの毎月の測定データを対象に、ベンゼン濃度($\mu\text{g}/\text{m}^3$)と $\text{PM}_{2.5}$ 濃度($\mu\text{g}/\text{m}^3$), 1,3-ブタジエン濃度($\mu\text{g}/\text{m}^3$)および気象因子(風速(m/s)・気温($^{\circ}\text{C}$)・湿度(%)・雨量(mm)・気圧(hPa)・全天日射量(MJ/m^2))の間の関係を確認した。他の変数の影響を取り除いた2変数間の相関関係を調べるため、偏相関を求めた。なお、沖縄県で観測される $\text{PM}_{2.5}$ は越境大気汚染の指標¹⁰⁾, 1,3-ブタジ

ンは近傍からの自動車排出ガスの影響を表す指標¹¹⁾となり得るものと仮定した。ベンゼン等の揮発性有機化合物の大気中濃度は、降雨強度に影響されないという報告があり¹²⁾, 降水による大気からの除去効果が小さいことが窺える。一方、 $\text{PM}_{2.5}$ 等のエアロゾルでは降水による大気からの除去効果が大きいこと¹³⁾が想定される。降水の有無(降水量0.5mm/日未満を「降水無し」とした。)別に、ベンゼン濃度と $\text{PM}_{2.5}$ 濃度の関係を確認したところ、降水有りのほうが降水無しに比べ、 $\text{PM}_{2.5}$ が低濃度となる傾向にあり、降水による $\text{PM}_{2.5}$ の除去効果が示唆された(図5)。そのため、降水の有無により場合分けしたデータセットについて偏相関分析を行った(表1)。

降水無しの場合、ベンゼン濃度は、 $\text{PM}_{2.5}$ 濃度、気温、湿度、気圧および全天日射量との間に有意な偏相関係数が得られた。降水有りの場合、ベンゼン濃度は、 $\text{PM}_{2.5}$ 濃度、気温および全天日射量との間に有意な偏相関係数が得られた。降水の有無に関わらず、ベンゼン濃度と1,3-ブタジエン濃度との間に有意な偏相関は無く、近傍からの自動車排出ガスの影響は小さいことが示唆された。

ベンゼン濃度を目的変数、表1でベンゼン濃度と有意な偏相関を示した変数($\text{PM}_{2.5}$ 濃度、気温、全天日射量; 降水無しの場合は湿度および気圧を追加)を説明変数として、変数増減法(変数選択の基準はp値0.20とした。)により重回帰分析を試みた。その結果、予測式(1)および(2)が得られた。

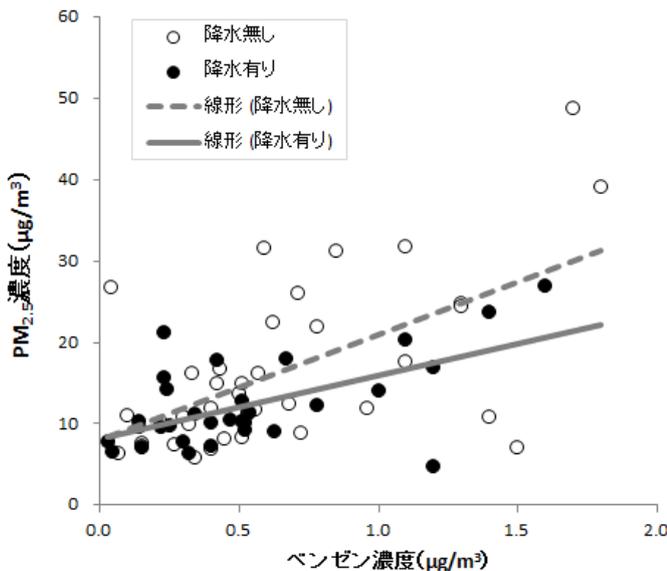


図5. 降水の有無別によるベンゼン濃度と $\text{PM}_{2.5}$ 濃度の関係。降水量<0.5mm/日を降水無しとした。

表1. 偏相関行列(降水の有無別)。表中の斜線の上側には偏相関係数、下側には偏相関の有意性検定を示した。

i) 降水無し (降水量 0.5mm/日未満) n = 38								
	ベンゼン	$\text{PM}_{2.5}$	1,3-ブタジエン	風速	気温	湿度	気圧	全天日射量
ベンゼン		0.372	0.213	0.038	-0.265	0.108	0.156	0.020
$\text{PM}_{2.5}$	*		-0.401	0.047	0.118	-0.429	-0.270	-0.213
1,3-ブタジエン				0.030	0.047	-0.284	-0.325	-0.245
風速					-0.002	-0.097	-0.026	-0.341
気温	**			*		0.443	-0.491	0.343
湿度	**	*			**		-0.322	-0.379
気圧	**			*	**	**		-0.205
全天日射量	**			**	**	*	**	

ii) 降水有り (降水量 0.5mm/日以上) n = 32									
	ベンゼン	$\text{PM}_{2.5}$	1,3-ブタジエン	風速	気温	湿度	気圧	全天日射量	降水量
ベンゼン		0.430	0.079	-0.244	-0.561	-0.188	-0.298	-0.165	0.159
$\text{PM}_{2.5}$	*		0.050	-0.025	0.290	-0.260	-0.001	-0.226	-0.320
1,3-ブタジエン				0.354	-0.079	0.041	0.054	0.220	-0.114
風速					-0.111	-0.406	-0.228	-0.399	0.076
気温	**					-0.006	-0.596	0.413	0.189
湿度							-0.436	-0.511	0.021
気圧					**	*		-0.072	-0.042
全天日射量	**				**				-0.268
降水量									

** : 1%有意, * : 5%有意

- i) 降水無し (降水量 0.5mm/日未満) の場合 (n=38)
 $\log[\text{ベンゼン}] = 0.392 \log[\text{PM}_{2.5}] - 0.039 [\text{気温}] + 0.076$
 …(1)
- ii) 降水有り (降水量 0.5mm/日以上) の場合 (n=32)
 $\log[\text{ベンゼン}] = 0.733 \log[\text{PM}_{2.5}] - 0.053 [\text{気温}] - 0.038$
 …(2)

予測式(1)および(2)から算出したベンゼン濃度の予測値と実測値の関係を図 6 に示した。相関係数(r)は 0.73 であり、ベンゼン濃度は、PM_{2.5}濃度と気象因子(降水の有無、気温)から、ある程度予測可能となる結果が得られた。予測式(1)および(2)において、PM_{2.5}に関する偏回帰係数は正(>0)であり、PM_{2.5}が高濃度となるほど、ベンゼン濃度が高くなる結果となった。このことから、ベンゼンと PM_{2.5}の発生源は類似していることが想定され、季節変動等を考慮すると、越境大気汚染の影響が示唆された。また、気温に関する偏回帰係数は負(<0)であり、気温が高いほど、ベンゼン濃度が低下しやすい状態にあることが窺えた。気温とベンゼン/PM_{2.5}濃度比(実測値)の関係を図 7 に示した。ベンゼンと PM_{2.5}の発生源が同じであると推定した場合、両者の温度依存性に違いが無ければ、ベンゼン/PM_{2.5}濃度比は気温に関わらず、ほぼ一定の値となることが予想される。しかしながら、図 7 に示したように、気温が高くなるほど、ベンゼン/PM_{2.5}濃度比が小さくなる傾向が確認された。気温が高いほど、PM_{2.5}に比較してベンゼンの濃度低下が大きく、予測式(1)および(2)において気温に関する偏相関係数が負(<0)であることと一致していた。粒子状物質である PM_{2.5}に比べて、揮発性ガスのベンゼンのほうが、温度による拡散の影響を受けやすいことや、気温の高い時期(夏期)

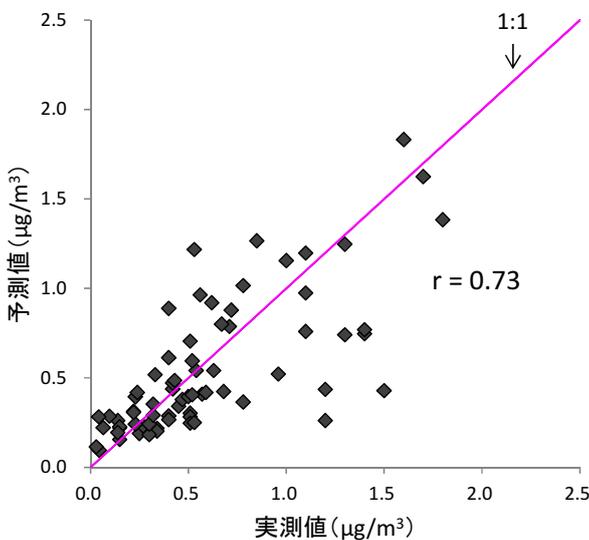


図 6. ベンゼン濃度の実測値と予測値の関係。

には、光化学反応により、ベンゼンの分解が進みやすいのに対し、PM_{2.5}は二次生成が促進されやすくなること等が要因であると推測された。なお、近隣の石油貯蔵施設やガソリンスタンドからのベンゼン揮散による影響があれば、気温の上昇とともにベンゼン/PM_{2.5}濃度比が増加すると考えられるが、逆の結果となったことから、近隣施設等からのベンゼン揮散の影響は少ないことが示唆された。

4. 真の年平均値の推計

ベンゼンを含めた有害大気汚染物質の環境基準を評価する際、年 12 回(毎月 1 回)の測定値を算術平均して求めた年平均値を用いることになっている。しかしながら、この方法では年間の約 3% (=12 日/365 日)に相当する測定データから年平均値を算出し、環境基準を評価していることになり、真の年平均値との乖離が懸念される。PM_{2.5}濃度および気象データについては 24 時間 365 日の自動測定がなされているため、今回得られた予測式(1)および(2)を用いれば、年間 365 日分のベンゼン濃度の推計を試みることができる。この 365 日分のベンゼン濃度から年平均値を算出すれば、より真の年平均値に近い値が得られるものと推察される。

予測式(1)および(2)を用いて、PM_{2.5}濃度および気象データから、毎日のベンゼン濃度を算出し、それらを算術平均して求めた年平均値(予測値)を図 8(A)に示した。図 8(A)には、実測値についても併せて示した(図 2 の 2011~2016 年度データの再掲)。図 8(B)には、PM_{2.5}平均濃度と平均気温について示した。有害大気汚染物質のサンプリングは毎月 1 回の実施であるため、測定値に偏りが生じる恐れがある。月 1 回のサンプリング日が高濃度

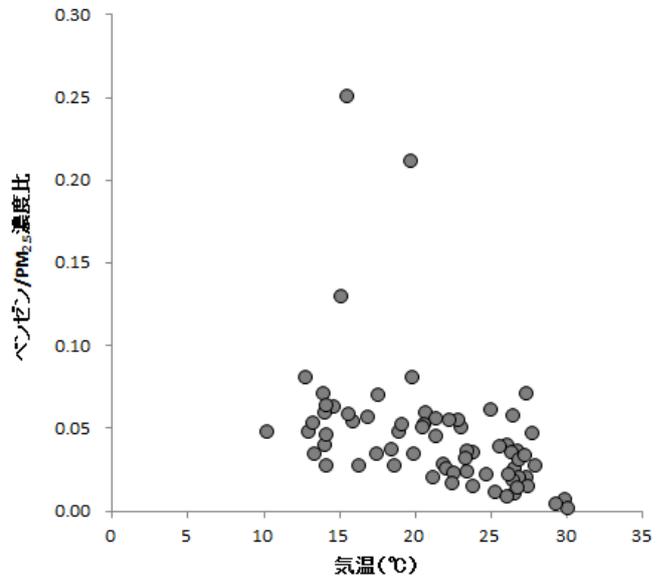


図 7. 気温とベンゼン/PM_{2.5}濃度比の関係。

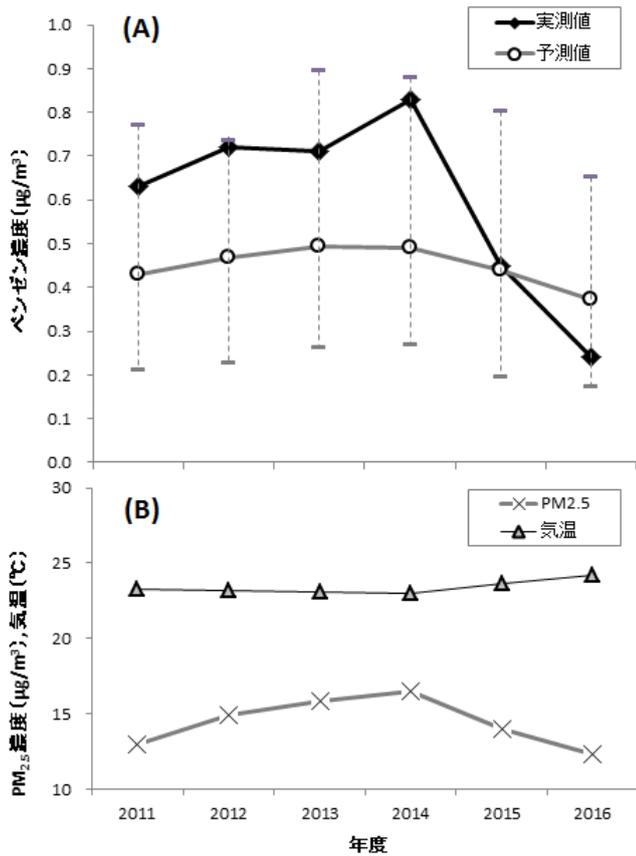


図 8. (A)ベンゼン濃度の年平均値（実測値および予測値）および(B)PM_{2.5} 平均濃度と平均気温の経年変動. (A)のエラーバーの上端は毎月の最高濃度（予測値）の平均値，下端は毎月の最低濃度（予測値）の平均値を示す.

日または低濃度日に極端に偏った場合の濃度範囲を確認するため、予測式を用いて推計した日別のベンゼン濃度について、各月の最高濃度または最低濃度を算術平均した年平均値を図 8 のエラーバーに示した。エラーバーの上端は年間 12 回（毎月 1 回）の測定日が各月の最高濃度日に偏った場合、下端は最低濃度日に偏った場合の年平均値を示している。実測値はエラーバーの範囲内に収まり、予測式がある程度の妥当性を持っていることが確認された。

図 8 において、予測値のほうが真の平均値に近いと仮定すると、2011～2014 年度はベンゼン濃度を過大評価（安全側に評価）し、2016 年度はベンゼン濃度を過小評価していた可能性が示唆された。実測値では 2014 年度から 2016 年度までの 2 年間で、1/3 以下の濃度まで急激に減少（約 70%の低減）しているが、予測値では同じ 2 年間で、約 30%の減少に留まっていた。PM_{2.5} 平均濃度は、2014 年度から 2016 年度までの 2 年間で、約 25%の減少であった。平均気温は、2014 年度から 2016 年度までの 2

年間で、約 1℃上昇していた。PM_{2.5} 濃度の減少と平均気温の上昇が、2014 年度から 2016 年度までの予測値の減少傾向に寄与していた。ベンゼン濃度の真の年平均値が 2 年間で 1/3 以下に急激に減少するような排出抑制効果等は想定しがたく、予測値から求めた約 30%程度の減少が現実的であろうと推測された。

今回得られた予測式を用いて、真の年平均値の推計を試みたところ、ベンゼン濃度を含めた有害大気汚染物質の測定値には、サンプリング日の偏りが大きな影響を与えていることが示唆された。ベンゼン等の濃度変動を確認する場合、実測値と真の平均値の間に、ある程度の乖離が存在している可能性を念頭に置き、評価する必要があると思われた。

IV まとめ

沖縄県のバックグラウンド地点として位置付けられる南城市大里において、2004 年度から 2016 年度まで 13 年間実施した大気中ベンゼンの調査結果から、以下のことが明らかになった。

- 1) 大気中のベンゼン濃度は、2004～2014 年度にかけて増加傾向、その後 2014～2016 年度にかけて減少傾向にあった。
- 2) PM_{2.5} 濃度でも同様の経年変動を示しており、ベンゼン濃度の経年変動は、越境大気汚染の影響が一因であることが示唆された。
- 3) ベンゼン濃度は、夏期に低く、冬期に高い季節変動を示した。
- 4) 重回帰分析を用いて、ベンゼン濃度の変動要因を検討した結果、ベンゼン濃度は PM_{2.5} 濃度と気象因子（降水の有無および気温）から概ね予測可能となる結果が得られた。
- 5) 重回帰分析から得られた予測式を用いて、真の年平均値の推計を試みたところ、実測値と真の年平均値の間には、サンプリング日の偏りに起因する乖離が存在する可能性が示唆された。

VI 参考文献

- 1) 友寄喜貴・田崎盛也・城間朝彰・比嘉良作 (2017) 沖縄県南城市における有害大気汚染物質の状況 (2004～2016 年度)。沖縄県衛生環境研究所報, 51: 89-92.
- 2) 環境省 (2011) 有害大気汚染物質測定方法マニュアル.
- 3) 環境省 (2011) 大気汚染防止法第 22 条の規定に基づく大気の汚染の状況の常時監視に関する事務の処理基準.

- 4) 気象庁(2018)過去の気象データ.〈<http://www.data.jma.go.jp/gmd/risk/obsdl/index.php>〉. 2018年6月アクセス.
- 5) 環境省(2016)平成26年度大気汚染状況報告書, pp.180-200.
- 6) 環境省(2017)PRTRインフォメーション広場集計結果. 〈<http://www2.env.go.jp/chemi/prtr/prtrinfor/index.html>〉. 2017年7月アクセス.
- 7) 友寄喜貴・嘉手納恒・与儀和夫(2007)沖縄県における大気中ベンゼンに関する濃度変動要因と集団リスクの推定. 大気環境学会誌, 42: 56-62.
- 8) 嘉手納恒・普天間朝好・友寄喜貴・与儀和夫(2009)沖縄県南城市における大気中揮発性有機化合物調査. 沖縄県衛生環境研究所報, 43: 55-58.
- 9) 比嘉良作・友寄喜貴・城間朝彰・田崎盛也・岩崎綾(2014)南城市大里で観測した揮発性有機化合物(VOCs)からみえる越境大気汚染. 沖縄県衛生環境研究所報, 48: 54-58.
- 10) 城間朝彰・岩崎綾・比嘉良作・田崎盛也・友寄喜貴(2014)2012年度沖縄県における微小粒子状物質(PM_{2.5}). 沖縄県衛生環境研究所報, 48: 50-53.
- 11) 友寄喜貴・与儀和夫(2004)沖縄県における揮発性有機化合物調査(平成15年度). 沖縄県衛生環境研究所報, 38: 61-66.
- 12) 井川学・中田典秀・大河内博(1999)降水中の揮発性有機化合物濃度とその要因. 大気環境学会誌, 34: 211-218.
- 13) 藤田慎一・三浦和彦・大河内博・速水洋・松田和秀・櫻井達也(2014)越境大気汚染の物理と化学. 成山堂書店: 138-145.