

普天間飛行場周辺の湧水中の有機フッ素化合物に関する研究 (その1) — 積算降水量を用いた有機フッ素化合物濃度の推定 —

知花睦・井上豪・城間一哲・安里モモ・友寄喜貴・仲間大三*・兼本祐作*

Study on Per- and Polyfluoroalkyl Substances (PFAS) in Spring Water around Marine Corps Air Station Futenma (Part 1) - Estimation of PFAS Concentrations based on Accumulated Precipitation -

Chikashi CHIBANA, Go INOUE, Ittetsu SHIROMA, Momo ASATO,
Nobutaka TOMOYOSE, Daizo NAKAMA* and Yusaku KANEMOTO*

要旨：普天間飛行場周辺の湧水や地下水では、環境省の指針値（暫定）（PFOS及びPFOAの合計値：50 ng/L以下）を超過する地点が確認されている。しかしながら、湧水や地下水中の有機フッ素化合物（PFAS）濃度は変動を伴うため、傾向変動を把握することは容易ではなく、PFAS濃度の変動要因についても不明であった。そこで、普天間飛行場周辺の湧水6地点で実施したPFASの毎月調査の結果を解析したところ、PFAS濃度と積算降水量との間に有意な相関（ $p < 0.05$ ）が認められ、普天間飛行場周辺の湧水中のPFAS濃度の変動は、積算降水量の変動が一因であることが示唆された。また、有意な相関が認められたPFAS濃度の実測値と、積算降水量を用いた回帰式から算出した推定値との割合（実測値/推定値）から、積算降水量による濃度変動の影響を除いたPFAS濃度の傾向変動を把握することが可能と思われた。

Key words：有機フッ素化合物（PFAS）、湧水、回帰分析、積算降水量、傾向変動、Mann-Kendall 傾向検定

I はじめに

Per- and Polyfluoroalkyl Substances（以下、「PFAS」という。）とは、ペルフルオロオクタンスルホン酸（以下、「PFOS」という。）やペルフルオロオクタン酸（以下、「PFOA」という。）、ペルフルオロヘキサンスルホン酸（以下、「PFHxS」という。）などを含む有機フッ素化合物の総称である。PFOSやPFOAなど一部のPFASは、環境中に放出されるとほとんど分解されないため、その環境残留性や生物蓄積性から、永遠の化学物質（Forever Chemicals）とも呼ばれ、人への有害性が懸念されている。残留性有機汚染物質に関するストックホルム条約（以下、「POPs条約」という。）では、2009年にPFOS、2019年にPFOA、2022年にPFHxSを対象物質に追加し、国内では、2020年に環境省が要監視項目として指針値（暫定）（PFOS及びPFOAの合計値：50 ng/L以下）を設定した。

沖縄県環境部では、2016年から有機フッ素化合物環境中実態調査¹⁾を開始し、当研究所では、2017年に有機フッ素化合物の環境汚染調査²⁾を報告した。これまでの調査結果からは、普天間飛行場や嘉手納飛行場周辺の湧水や地下水、河川水で高濃度のPFASが確認されており、これら試料中のPFAS濃度は、変動を伴うことが分かっている³⁾。しかし、その変動の具体的な原因については不明であり、

PFAS濃度の傾向変動を把握することも容易ではなかった。県環境部では、2021年から普天間飛行場周辺の有機フッ素化合物汚染源の推定・絞込みを行うため、専門家会議を設置して検討を重ねており、当研究所では、専門家会議の助言を受けて、2021年8月から普天間飛行場周辺の湧水6地点においてPFASの毎月調査を実施している。

地下水位は一般に、降水量等の影響を受けて変動し、雨が降れば水位が上昇、渇水になれば水位が低下することが知られており、地下水中の硝酸性窒素濃度の変化量と降水量の変化量には正の相関がある⁴⁾ことが報告されている。そのため、湧水中のPFAS濃度も、地下水位の変動、つまり、湧水量や降水量の影響を受けて変動している可能性が考えられた。そこで本報では、普天間飛行場周辺の湧水6地点におけるPFASの毎月調査の結果を基に、湧水中のPFAS濃度と積算降水量との関係について解析し、積算降水量を用いたPFAS濃度の推定を試みた。

II 方法

1. 調査方法

(1) 調査及び解析対象期間

調査及び解析対象期間は、PFASの毎月調査を実施した、2021年8月から2023年3月までの計20ヶ月間とした。

*沖縄県環境部環境保全課

(2) 調査地点等

調査地点は、図1に示す普天間飛行場周辺の湧水6地点(チュンナガー、シチャヌカー、メンダカリヒーガー、ヒヤカーガー、森川公園湧水、大謝名メヌカー)とし、湧水地点の名称は、専門家会議で使用している名称に統一した。降水量は、湧水6地点に最も近い胡屋観測所のデータを使用した。



図1. 普天間飛行場周辺の湧水6地点と、胡屋観測所の位置図。

(3) 調査対象物質

調査対象物質は、POPs条約の対象物質であるPFOS, PFOA及びPFHxSと、泡消火剤が酸化して生成する⁹⁾と報告されている1H,1H,2H,2H-ペルフルオロオクタンスルホン酸(以下、「6:2FTS」という。)の4物質とした。なお、PFOS, PFOA及びPFHxSに関しては、直鎖体(以下、「直鎖」という。)と分岐異性体(以下、「側鎖」という。)を区別して測定したことから、実際には、PFAS 4物質、計7項目(PFOS直鎖, PFOS側鎖, PFOA直鎖, PFOA側鎖, PFHxS直鎖, PFHxS側鎖及び6:2FTS)を調査対象物質とした。

以降、PFOSと記載する場合は、PFOS(直鎖+側鎖)を指し、区別する場合は、PFOS直鎖, PFOS側鎖と記載する。また、PFOA及びPFHxSも同様の記載とする。なお、6:2FTSは、分離した側鎖のピークが確認されず、直鎖のみを測定したことから、6:2FTSと記載した。

2. 分析方法

(1) 試薬

標準物質は、Wellington社製の混合標準液(PFAC-MXB, 各成分2 µg/mL, メタノール溶液)と標準液(6:2FTS,

50 µg/mL, メタノール溶液)をメタノールで希釈して、標準混合メタノール溶液(各200 ng/L)を調製した。サロゲート物質は、同社製の有機フッ素化合物ラベル化体の混合標準液(MPFAC-MXA, 各成分2 µg/mL, メタノール溶液)と標準液(M2-6:2FTS, 50 µg/mL, メタノール溶液)をメタノールで希釈して、サロゲート混合メタノール溶液(各2,000 ng/L)を調製した。

その他、メタノール(PFOS・PFOA分析用), 酢酸アンモニウム(1 mol/L, HPLC用), ぎ酸(約99%, LC/MS用)は富士フィルム和光純薬社製, アセトニトリル(アセトニトリルPlus-, LC/MS用)は関東化学社製, 超純水にはMilli-Q水(メルク社製)を用いた。

(2) 前処理方法

試料は、予備も含め、15 mLポリプロピレン製(以下、「PP製」という。)容器2本に採取した。採取に当たり、容器は共洗いせず、可能な限り、湧水を直接採取した。直接採取ができない場合は、ステンレス製のバケツを湧水で十分に共洗った上で使用した。

採取した試料は、15 mL PP製容器に10 mLを分取し、サロゲート混合メタノール溶液50 µL(各2,000 ng/L)を添加した。PP製シリンジを用いて、あらかじめ1.5 mLのアセトニトリルと2.5 mLの超純水で予備洗浄したPP製ディスクフィルター(0.2 µm)で、サロゲート添加試料をろ過し、別の15 mL PP製容器で受けた。1.5 mLのアセトニトリルと2.5 mLの超純水でシリンジ内部とディスクフィルターを洗浄し、その洗液をろ過した試料に合わせ、超純水で15 mLに定容して、分析試料とした(図2)。

なお、試料が検量線の範囲を超える場合は、分取量を適宜変更し、範囲内に収まるよう試料を希釈して、分析試料を調製した。

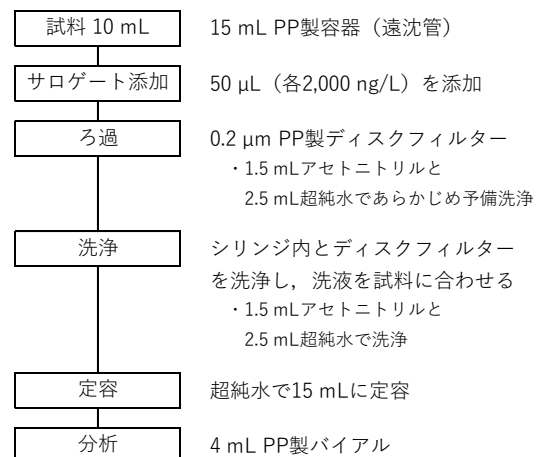


図2. 試料の前処理方法。

(3) 装置及び測定条件

高速液体クロマトグラム (HPLC) 条件を表 1 に、質量分析計 (MS) 条件を表 2 に示す。

表 1. 高速液体クロマトグラム (HPLC) 条件.

装置	LC : Shimadzu Nexera X2 LC-30AD
分離カラム	ChromaNik Technologies Inc. SunShell C30 2.6 µm I.D. 2.1 mm×100 mm
トラップカラム	Shimadzu Shim-pack Scepter C18-120(G) 3 µm 2.1 mm×10 mm
濃縮時送液	A : 0.1% ぎ酸 (100%)
洗浄液	B : アセトニトリル (100%)
溶離液	C : 2 mM酢酸アンモニウム D : アセトニトリル 0 - 5 min C:D=90%:10% 5 - 20 min C:90% → 0% (D:10% → 100%) 20 - 25 min C:0% (D:100%) 25 - 30 min C:90% (D:10%)
流量	0.25 mL/min
カラム温度	40 °C (トラップカラム, 分離カラム)
試料注入量	2 mL (トラップカラムを用いたオンライン濃縮)

表 2. 質量分析計 (MS) 条件.

装置	MS : Shimadzu LCMS-9030 (四重極-飛行時間型質量分析装置)
イオン化法	ESI法 Negative
測定モード	TOF及びMS(Q)/MS(TOF)
定量	精密質量による目的物質のMonoisotopic Mass±20 ppmによる面積とサロゲート化合物との面積比を用いる
調査対象物質	炭素数 面積の算出に用いる質量範囲 (m/z)
PFOA	8 412.9581 - 412.9747
MPFOA (IS)	8 416.9715 - 416.9881
PFHxS	6 398.9286 - 398.9446
MPFHxS (IS)	6 402.9370 - 402.9532
PFOS	8 498.9202 - 498.9402
MPFOS (IS)	8 502.9335 - 502.9537
6:2FTS	8 426.9594 - 426.9764
M2-6:2FTS (IS)	8 428.9660 - 428.9832

※ 標準液は、直鎖のみで構成されているため、直鎖で作成した検量線により、分離したピークを側鎖として定量した。

(4) 定量下限値, 回収率等

定量下限値は、S/N 比が 10 以上であることを確認し、PFAS 4 物質, 計 7 項目全て、0.3 ng/L とした。また、測定の際は、検量線 (最低濃度: 0.3 ng/L) の相関係数が $r = 0.995$ 以上であることを確認し、サロゲート物質の回収率と、試料への混合標準の添加回収率が、概ね 70-120% の範囲内に収まることを確認した。

3. 解析方法

(1) 各 PFAS 濃度と積算降水量との相関の確認

各 PFAS 濃度と降水量との相関については、日降水量と積算降水量を比較したところ、積算降水量で安定した相関が得られたことから、本報では、各 PFAS 濃度と積算降水量との関係について解析を行った。

降水量については、気象庁のホームページ⁷⁾から、胡屋観測所の日降水量を入手して使用した。積算降水量については、試料の採水日を 1 日目として、n 日前までの日降水量の合計値を n 日積算降水量とした。(n は、積算降水量の積算日数に該当し、10, 20, 30, …, 360 までの 10 間隔とした。)

次に、毎月調査 20 ヶ月分の各 PFAS 濃度と、それに対応する n 日積算降水量との相関係数を算出し (表 3)、有意な相関 ($p < 0.05$) が認められた PFAS 濃度について、回帰分析を行った。相関係数に関しては、PFAS 濃度が定量下限値未満 ($< 0.3 \text{ ng/L}$) の場合は「0 ng/L」として計算した。なお、積算降水量を用いた各 PFAS 濃度の回帰分析については、シチャヌカーにおける PFOS 直鎖濃度を例に説明する。

表 3. シチャヌカーにおける PFOS 直鎖濃度と n 日積算降水量との相関係数.

採水日	PFOS直鎖濃度 (ng/L)	積算降水量 (mm)				
		10日	20日	110日	120日	130日
2021/8/25	220	43	96	1,360	1,372	1,467
2021/9/13	210	95	108	1,428	1,436	1,468
2021/10/15	230	59	66	974	1,098	1,386
2021/11/15	540	37	38	379	668	699
⋮	⋮	⋮	⋮	⋮	⋮	⋮
2022/12/5	360	87	138	848	895	1,046
2023/1/23	330	48	48	736	753	794
2023/2/16	490	15	76	720	756	823
2023/3/16	500	29	32	431	496	595
シチャヌカーのPFOS直鎖濃度と n日積算降水量との相関係数		-0.37	-0.25	-0.88	-0.91	-0.93

(2) 積算降水量を用いた各 PFAS 濃度の回帰分析

回帰分析に用いる積算降水量については、相関係数の絶対値が最大となる積算降水量 (以下、「回帰分析用積算降水量」という。) を用いた。表 3 及び図 3 の例では、「130 日積算降水量」($r = -0.93, p < 0.001$) が、回帰分析用積算降水量に該当する。

次に、シチャヌカーの PFOS 直鎖濃度と回帰分析用積算降水量との散布図から得られる一次近似式を、シチャヌカーにおける PFOS 直鎖濃度の回帰式とした (図 4)。

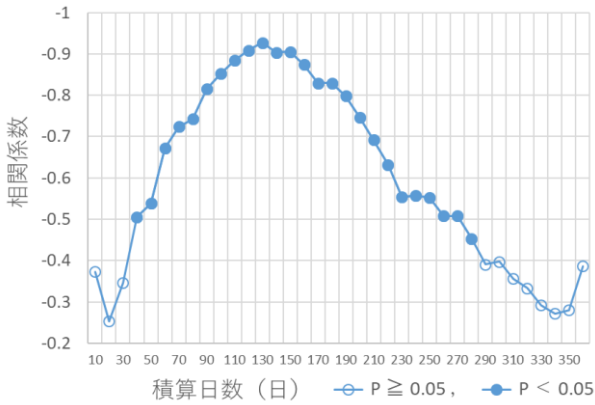


図3. シチャヌカーにおけるPFOS直鎖濃度とn日積算降水量の相関係数と、積算日数との関係。

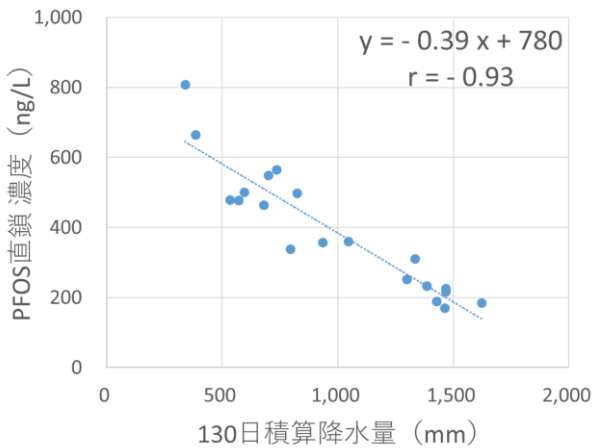


図4. シチャヌカーにおけるPFOS直鎖濃度と回帰分析用積算降水量との散布図と、一次近似式(回帰式)。

(3) 回帰式から各PFAS濃度の推定値を算出

シチャヌカーにおけるPFOS直鎖濃度の推定値については、日毎の回帰分析用積算降水量の値を算出し、それを回帰式に代入して算出した(図5)。

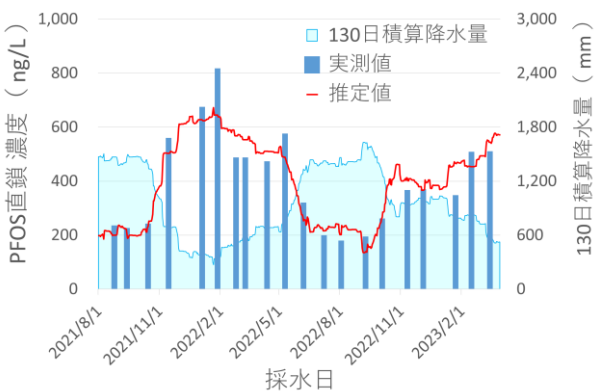


図5. シチャヌカーにおけるPFOS直鎖濃度の実測値と、積算降水量を用いた回帰式から算出した推定値。

(4) 各PFAS濃度の実測値と推定値の割合

シチャヌカーにおけるPFOS直鎖濃度の実測値と推定値の割合(実測値/推定値)の一次近似式を作成し(図6), その一次近似式の傾きから、傾向変動を把握することを試みた。また、時系列(一定間隔)データのトレンド判定に広く用いられているMann-Kendall傾向検定⁸⁾についても併せて行い、検定を用いた傾向変動の判定についても試みた。

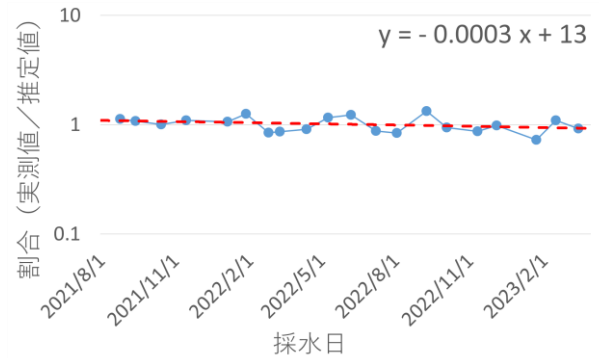


図6. シチャヌカーにおけるPFOS直鎖濃度の実測値と推定値の割合(実測値/推定値)と、その一次近似式。

(5) 各PFAS濃度の合計値の回帰分析

各PFAS濃度の回帰分析に加え、湧水6地点における、PFOS、PFOA、PFHxS及び6:2FTS濃度の合計値(以下、「ΣPFAS濃度」という。)についても、(1)から(4)と同じ回帰分析を行った。

III 結果

1. 調査結果

普天間飛行場周辺の湧水6地点におけるPFASの毎月調査の結果について、図7に概要を示し、附表1に詳細を示す。

(1) PFAS濃度の平均値

ΣPFAS濃度の平均値は、チュンナガー(1,800 ng/L) > シチャヌカー(1,500 ng/L) > メンダカリヒーガー(910 ng/L) > ヒヤカーガー(320 ng/L) > 森川公園湧水(87 ng/L) > 大謝名メヌカー(44 ng/L)の順であった。

各PFAS濃度の平均値は、チュンナガーのPFOS(1,100 ng/L) > メンダカリヒーガーのPFOS(670 ng/L) > シチャヌカーの6:2FTS(600 ng/L) > シチャヌカーのPFOS(560 ng/L) > チュンナガーのPFHxS(490 ng/L)の順であった。

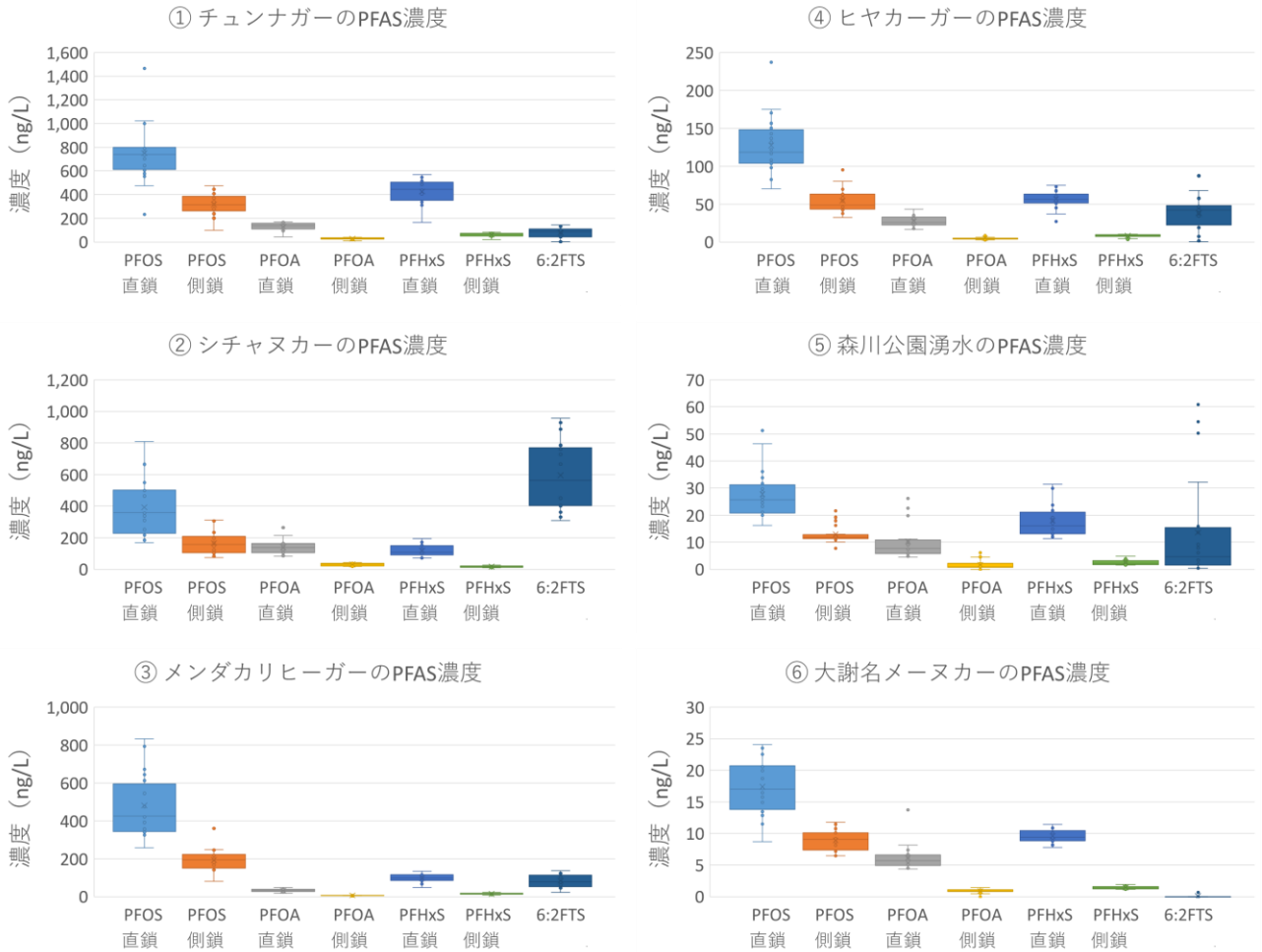


図7. 普天間飛行場周辺の湧水6地点におけるPFASの毎月調査の結果概要.

(2) PFAS 濃度の構成比の平均

POPs 条約対象物質 (PFOS, PFOA 及び PFHxS) の構成比の平均と変動係数を表4に示す。なお、6:2FTSに関しては、POPs 条約等の規制対象物質には含まれず、また、各湧水地点における構成比も大きく異なるため除外した。

PFAS 濃度の構成比の平均は、PFOS (64%) > PFHxS (23%) > PFOA (13%) の順であった。

表4. 湧水6地点における POPs 条約対象物質 (PFOS, PFOA 及び PFHxS) の構成比の平均と変動係数.

湧水地点名	各湧水地点の					
	PFOS		PFOA		PFHxS	
	構成比 平均	変動 係数	構成比 平均	変動 係数	構成比 平均	変動 係数
チュンナガー	62%	0.08	9%	0.16	29%	0.12
シチャヌカー	63%	0.07	20%	0.14	16%	0.12
メンダカリヒーガー	81%	0.03	5%	0.17	14%	0.15
ヒヤカーガー	65%	0.08	12%	0.15	24%	0.17
森川公園湧水	57%	0.10	15%	0.29	28%	0.09
大謝名メヌカー	59%	0.08	16%	0.21	25%	0.12
湧水6地点の平均	64%		13%		23%	
湧水地点間の変動係数	0.12		0.39		0.25	

(3) PFAS 直鎖と側鎖濃度の割合の平均

PFAS 直鎖と側鎖濃度の割合 (直鎖濃度/側鎖濃度) の平均と変動係数を表5に示す。なお、6:2FTSに関しては、側鎖のピークが確認されないため除外し、PFAS 濃度が定量下限値未満 (<0.3 ng/L) の場合は、「欠測」とした。

PFAS 直鎖と側鎖濃度の割合の平均は、PFHxS (6.9) > PFOA (5.7) > PFOS (2.3) の順であった。

表5. 湧水6地点における PFAS 直鎖と側鎖濃度の割合 (直鎖濃度/側鎖濃度) の平均と変動係数.

湧水地点名	各湧水地点の					
	PFOS		PFOA		PFHxS	
	割合 平均	変動 係数	割合 平均	変動 係数	割合 平均	変動 係数
チュンナガー	2.4	0.14	4.6	0.11	6.9	0.07
シチャヌカー	2.3	0.10	4.6	0.14	7.0	0.07
メンダカリヒーガー	2.5	0.23	5.2	0.20	6.7	0.07
ヒヤカーガー	2.4	0.15	5.9	0.24	7.1	0.09
森川公園湧水	2.1	0.12	7.0	0.52	7.0	0.07
大謝名メヌカー	1.9	0.15	7.0	0.40	6.8	0.10
湧水6地点の平均	2.3		5.7		6.9	
湧水地点間の変動係数	0.08		0.17		0.02	

(4) ΣPFAS 濃度の最大と最小の時期

ΣPFAS 濃度の最大と最小の時期については、湧水地点毎に異なっていた(表6)。2022年6月の調査では、チュンナガーにおいて調査対象期間中の最大濃度であったが、メンダカリヒーガーにおいては最小濃度であった。また、2021年9月の調査では、ヒヤカーガーにおいて調査対象期間中の最小濃度であったが、翌年同月の調査では最大濃度となり、2022年3月の調査では、大謝名メヌカーにおいて最大濃度であったが、翌年同月の調査では最小濃度となった。

表6. 湧水6地点におけるΣPFAS濃度の調査対象期間中の最大及び最小の濃度と時期(試料採水日)。

湧水地点名	ΣPFAS濃度の			
	最大		最小	
	採水日	(ng/L)	採水日	(ng/L)
チュンナガー	2022/6/7	2,500	2022/2/25	570
シチャヌカー	2022/1/28	2,400	2022/8/3	730
メンダカリヒーガー	2021/11/15	1,500	2022/6/7	540
ヒヤカーガー	2022/9/9	550	2021/9/13	190
森川公園湧水	2022/5/10	180	2021/8/25	46
大謝名メヌカー	2022/3/11	55	2023/3/16	30

2. 解析結果

積算降水量との間に有意な相関(p<0.05)が認められたPFAS濃度の回帰分析の結果を表7に示す。

表7. 湧水6地点における各PFAS濃度の回帰式と回帰分析用積算降水量、PFAS濃度と回帰分析用積算降水量との相関係数。

①チュンナガー

回帰式	[回帰分析用積算降水量]	相関係数
[PFOS直鎖] = 0.75	× [50日積算降水量] + 490	0.64**
[PFOS側鎖] = 0.12	× [160日積算降水量] + 180	0.57**
[PFOA直鎖]	—	-0.41
[PFOA側鎖]	—	-0.39
[PFHxS直鎖]	—	-0.33
[PFHxS側鎖]	—	-0.39
[6:2FTS]	—	-0.21
[ΣPFAS] = 0.96	× [50日積算降水量] +1,500	0.45*

④ヒヤカーガー

回帰式	[回帰分析用積算降水量]	相関係数
[PFOS直鎖] = 0.096	× [50日積算降水量] + 94	0.54*
[PFOS側鎖] = 0.020	× [160日積算降水量] + 31	0.55*
[PFOA直鎖]	—	0.35
[PFOA側鎖]	—	0.28
[PFHxS直鎖] = -0.024	× [360日積算降水量] + 120	-0.49*
[PFHxS側鎖] = -0.0044	× [360日積算降水量] + 20	-0.56*
[6:2FTS]	—	0.31
[ΣPFAS] = 0.086	× [140日積算降水量] + 230	0.45*

②シチャヌカー

回帰式	[回帰分析用積算降水量]	相関係数
[PFOS直鎖] = -0.39	× [130日積算降水量] + 780	-0.93***
[PFOS側鎖] = -0.16	× [130日積算降水量] + 320	-0.93***
[PFOA直鎖] = -0.10	× [110日積算降水量] + 220	-0.86***
[PFOA側鎖] = -0.020	× [120日積算降水量] + 49	-0.93***
[PFHxS直鎖] = -0.085	× [120日積算降水量] + 200	-0.91***
[PFHxS側鎖] = -0.013	× [110日積算降水量] + 28	-0.89***
[6:2FTS] = -0.29	× [190日積算降水量] +1,000	-0.59**
[ΣPFAS] = -1.0	× [130日積算降水量] +2,500	-0.85***

⑤森川公園湧水

回帰式	[回帰分析用積算降水量]	相関係数
[PFOS直鎖] = -0.015	× [110日積算降水量] + 40	-0.66**
[PFOS側鎖] = -0.0063	× [90日積算降水量] + 17	-0.64**
[PFOA直鎖] = -0.011	× [110日積算降水量] + 20	-0.67**
[PFOA側鎖] = -0.0030	× [130日積算降水量] + 5	-0.75***
[PFHxS直鎖] = -0.013	× [100日積算降水量] + 28	-0.74***
[PFHxS側鎖] = -0.0020	× [100日積算降水量] + 4	-0.72***
[6:2FTS] = -0.046	× [310日積算降水量] + 120	-0.67**
[ΣPFAS] = -0.081	× [110日積算降水量] + 150	-0.70***

③メンダカリヒーガー

回帰式	[回帰分析用積算降水量]	相関係数
[PFOS直鎖] = -0.32	× [110日積算降水量] + 740	-0.76***
[PFOS側鎖] = -0.25	× [30日積算降水量] + 240	-0.65**
[PFOA直鎖] = -0.031	× [30日積算降水量] + 38	-0.65**
[PFOA側鎖]	—	-0.44
[PFHxS直鎖] = -0.11	× [30日積算降水量] + 120	-0.76***
[PFHxS側鎖] = -0.016	× [30日積算降水量] + 18	-0.68**
[6:2FTS] = -0.070	× [100日積算降水量] + 130	-0.77***
[ΣPFAS] = -0.53	× [100日積算降水量] +1,300	-0.73***

⑥大謝名メヌカー

回帰式	[回帰分析用積算降水量]	相関係数
[PFOS直鎖]	—	-0.26
[PFOS側鎖]	—	0.35
[PFOA直鎖]	—	0.41
[PFOA側鎖] = 0.0012	× [40日積算降水量] + 1	0.67**
[PFHxS直鎖]	—	-0.44
[PFHxS側鎖] = -0.0003	× [170日積算降水量] + 2	-0.52*
[6:2FTS]	—	0.43
[ΣPFAS]	—	0.23

*** : 0.1%有意, ** : 1%有意, * : 5%有意, — : 有意な相関ではないため、回帰式は作成していない。

(1) 有意な相関 ($p < 0.05$) が認められた PFAS

普天間飛行場周辺の湧水 6 地点における PFAS (7 項目) と Σ PFAS (1 項目) の計 48 項目の各 PFAS 濃度について、積算降水量との相関を確認したところ、28 項目の PFAS 濃度と 5 項目 (地点) の Σ PFAS 濃度で、積算降水量との間に有意な相関 ($p < 0.05$) が認められた (表 7)。

Σ PFAS 濃度に関しては、大謝名メヌカー以外の 5 地点で有意な相関が認められ、チュンナガー及びヒヤカーガーでは正の相関 (共に、 $r = 0.45, p < 0.05$)、シチャヌカー、メンダカリヒーガー及び森川公園湧水では負の相関 ($r = -0.70 - -0.85, p < 0.001$) が認められた。

各 PFAS 濃度に関しては、シチャヌカーと森川公園湧水の 2 地点において、全ての PFAS 濃度で有意な負の相関が認められた。特にシチャヌカーでは、6:2FTS 濃度以外で有意な強い負の相関 ($r = -0.85 - -0.93, p < 0.001$) が認められた。また、メンダカリヒーガーにおいては、PFOA 側鎖濃度以外で有意な負の相関が認められた。一方、チュンナガー、ヒヤカーガー及び大謝名メヌカーでは、一部の PFAS 濃度にも有意な相関が認められ、ヒヤカーガーにおいては、PFOS と Σ PFAS 濃度は正の相関、

PFHxS 濃度は負の相関であった。なお、有意な相関が認められた PFAS の直鎖と側鎖濃度に関しては、相関の符号 (正負) は同じであった (表 7)。

(2) PFAS 濃度の実測値と推定値の割合

積算降水量との間に有意な相関 ($p < 0.05$) が認められた PFAS 濃度と Σ PFAS 濃度における、実測値と推定値の割合 (実測値/推定値) の一次近似式と、割合 (実測値/推定値) について行った Mann-Kendall 傾向検定の結果を表 8 に示す。なお、平均濃度が 10 ng/L 以下の 5 項目の低濃度 PFAS に関しては、濃度変動の絶対値が小さいこと、また、森川公園湧水の 6:2FTS (平均濃度: 14 ng/L) に関しては、推定値と割合が負となったため、解析対象から除外した。

解析の結果、27 項目の一次近似式のうち、負の傾きは 20 項目、正の傾きは 7 項目、傾きの範囲は -0.0017 - 0.0003 であった。Mann-Kendall 傾向検定については、有意水準 (p 値) 5% として有意差検定を行ったところ、シチャヌカー 4 項目、メンダカリヒーガー 6 項目、森川公園湧水 2 項目の PFAS 濃度で減少傾向の判定となった。

表 8. 湧水 6 地点における各 PFAS 濃度の実測値と推定値の割合 (実測値/推定値) の一次近似式と、Mann-Kendall 傾向検定の判定結果。

①チュンナガー

割合 (実測値/推定値) の一次近似式	Mann-Kendall傾向検定統計量 (S)	判定
[PFOS直鎖] $y = 0.0003 x - 13$	28	
[PFOS側鎖] $y = 0.0003 x - 13$	22	
[Σ PFAS] $y = 0.0003 x - 12$	26	

②シチャヌカー

割合 (実測値/推定値) の一次近似式	Mann-Kendall傾向検定統計量 (S)	判定
[PFOS直鎖] $y = -0.0003 x + 13$	- 34	
[PFOS側鎖] $y = -0.0003 x + 16$	- 58	
[PFOA直鎖] $y = -0.0004 x + 19$	- 28	
[PFOA側鎖] $y = 0.0002 x - 9$	54	
[PFHxS直鎖] $y = -0.0004 x + 20$	- 78*	減少傾向
[PFHxS側鎖] $y = -0.0006 x + 30$	- 120***	減少傾向
[6:2FTS] $y = -0.0015 x + 70$	- 130***	減少傾向
[Σ PFAS] $y = -0.0009 x + 42$	- 128***	減少傾向

③メンダカリヒーガー

割合 (実測値/推定値) の一次近似式	Mann-Kendall傾向検定統計量 (S)	判定
[PFOS直鎖] $y = -0.0008 x + 35$	- 92**	減少傾向
[PFOS側鎖] $y = -0.0004 x + 20$	- 46	
[PFOA直鎖] $y = -0.0008 x + 35$	- 120***	減少傾向
[PFHxS直鎖] $y = -0.0005 x + 23$	- 76*	減少傾向
[PFHxS側鎖] $y = -0.0007 x + 33$	- 102**	減少傾向
[6:2FTS] $y = -0.0007 x + 32$	- 74*	減少傾向
[Σ PFAS] $y = -0.0008 x + 35$	- 100**	減少傾向

④ヒヤカーガー

割合 (実測値/推定値) の一次近似式	Mann-Kendall傾向検定統計量 (S)	判定
[PFOS直鎖] $y = 0.0003 x - 12$	46	
[PFOS側鎖] $y = 0.00008 x - 3$	2	
[PFHxS直鎖] $y = -0.00003 x + 2$	- 18	
[PFHxS側鎖] - (平均濃度: 8 ng/L)	-	-
[Σ PFAS] $y = 0.0002 x - 9$	14	

⑤森川公園湧水

割合 (実測値/推定値) の一次近似式	Mann-Kendall傾向検定統計量 (S)	判定
[PFOS直鎖] $y = -0.0001 x + 6$	- 8	
[PFOS側鎖] $y = -0.0004 x + 19$	- 60	
[PFOA直鎖] $y = -0.0017 x + 76$	- 86**	減少傾向
[PFOA側鎖] - (平均濃度: 2 ng/L)	-	-
[PFHxS直鎖] $y = -0.0006 x + 29$	- 58	
[PFHxS側鎖] - (平均濃度: 3 ng/L)	-	-
[6:2FTS] (推定値と割合が負となったため除外)	-	-
[Σ PFAS] $y = -0.0009 x + 40$	- 70*	減少傾向

⑥大謝名メヌカー

割合 (実測値/推定値) の一次近似式	Mann-Kendall傾向検定統計量 (S)	判定
[PFOA側鎖] - (平均濃度: 1 ng/L)	-	-
[PFHxS側鎖] - (平均濃度: 1 ng/L)	-	-

***: 0.1%有意, **: 1%有意, *: 5%有意, -: PFAS濃度の平均が10 ng/L以下のため、解析対象から除外した。

IV 考察

1. 湧水中の PFAS 濃度の変動要因について

普天間飛行場周辺の湧水 6 地点においては、28 項目の PFAS 濃度と 5 地点の Σ PFAS 濃度で、積算降水量との間に有意な相関 ($p < 0.05$) が認められたことから、これらの PFAS 濃度の変動は、積算降水量の変動が一因であることが示唆された。

文献では、①PFAS は、(雨水等と一緒に) 土壌中を移動する際、土壌中の有機炭素⁹⁾や pH¹⁰⁾等の影響を受ける、②炭素数の大きな PFAS ほど、土壌に強く吸着する¹¹⁾、③PFAS 汚染箇所における土壌中の PFOS, PFOA 及び PFHxS 濃度は、深度が深くなるにつれて減少するが、6:2FTS 濃度に関しては、深度による変化がほとんどない¹²⁾等、PFAS の吸着特性等について報告されている。更に、長期又は短期降水量累計の寄与率の違い等から、普天間飛行場周辺の湧水の流出特性を 3 つの Type に分類し、その分類から、地下水盆の大きさや深さ、地下水の貯留構造(琉球石灰岩層の厚さ)の違い、洞窟への流入や水脈(地下河川)の存在等、湧水の集水域における地下構造を推測した報告¹³⁾もある。

これらの文献や地下水汚染に関するマニュアル¹⁴⁾に加え、普天間飛行場周辺の湧水から高濃度の PFAS が確認されていること、更に、湧水中の PFAS 濃度の変動に積算降水量が影響していること等を勘案すると、汚染箇所(土壌中)に存在する PFAS は、PFAS の吸着特性による影響を受けながら、雨水等と一緒に不飽和帯を移動し、その後、地下水の流れに乗って、地下構造の違いによる影響も受けながら、湧水地点まで移動すると推測される。そのため、シチャヌカーのような PFAS 濃度と積算降水量との相関が強い湧水地点では、PFAS の吸着特性や地下構造の違いによる影響が単純化できる(例えば、吸着特性の影響や、地下水盆等の地下構造の違いによる影響が小さい、或いは、汚染箇所から湧水地点までの経路が複雑ではない、又は、流れが連続的である。)等の理由により、PFAS 濃度が積算降水量の一次近似式で表現できるのではないかと推測された。

2. 湧水中の PFAS 濃度と積算降水量との関係について

PFAS 濃度と積算降水量との相関が強い場合、相関係数と積算降水量の積算日数との関係は、明瞭な山型を示したが(図 3, 軸を反転した場合)、相関が弱い場合は、明瞭な山型を示さなかった(図 8)。本報の解析では、便宜上、相関係数の絶対値が最大となる n 日積算降水量を回帰式に用いたが、有意な相関 ($p < 0.05$) を持つ n 日積算

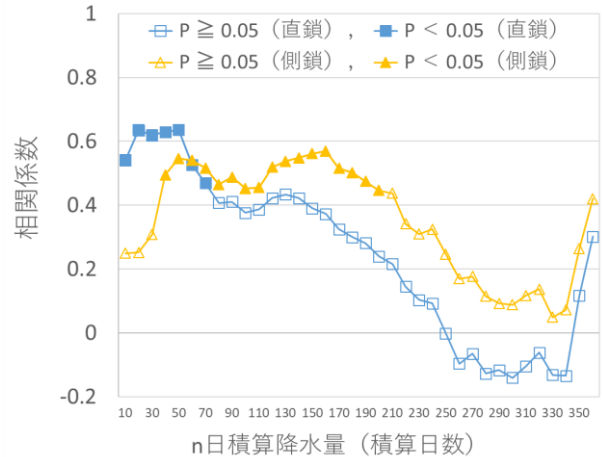


図 8. チュンナガーにおける PFOS 直鎖及び PFOS 側鎖濃度と n 日積算降水量の相関係数と、積算降水量の積算日数との関係。

降水量は他にも複数存在する (n 日積算降水量には幅がある) ため、回帰分析用積算降水量の選定には、更なる検討が必要と思われた。

また、PFAS 濃度と積算降水量との間に有意な相関 ($p < 0.05$) が認められたことから、PFAS 濃度の最大と最小の時期に関しては、積算降水量の最大と最小が影響している可能性が考えられた。積算降水量と負の相関 ($r = -0.76$, $p < 0.001$) が認められたメンダカリヒーガーの PFHxS 直鎖濃度(図 9)では、最大及び最小濃度の時期と、積算降水量の最小及び最大の時期は、概ね一致していた。一方、積算降水量と正の相関 ($r = 0.54$, $p < 0.05$) が認められたヒヤカーガーの PFOS 直鎖濃度(図 10)では、最大及び最小濃度の時期と、積算降水量の最大及び最小の時期は一致していなかった。また、最大及び最小濃度の実測値と推定値の乖離が、他の調査月よりも大きくなっていることから、積算降水量以外の要因、例えば、短期降水量や降雨強度、或いは、地下構造等の要因が影響した可能性が考えられた。なお、 Σ PFAS 濃度の最大及び最小濃度に関しては、各 PFAS 濃度の合算であるため、前述の要因に加え、各 PFAS の吸着特性など様々な要因を踏まえた上で、検討する必要があると思われた。

PFAS 濃度と積算降水量との相関が負の場合は、積算降水量の増加に伴って PFAS 濃度が低下することから、水量の増加によって PFAS が希釈された可能性が推測された。一方、相関が正の場合は、積算降水量の増加に伴って PFAS 濃度も上昇するため、容易には説明がつかず、地下水盆や水脈(地下河川)等の地下構造が複雑に影響している可能性が推測された。なお、ヒヤカーガーのような PFAS 毎に相関の正負が混在する湧水地点において

は、更に、各 PFAS の吸着特性等も大きく又は複雑に影響している可能性が推測された。

有意な相関が認められた PFAS の直鎖と側鎖濃度に関しては、積算降水量との相関係数の符号が同じであることから(表7)、流出特性に関しても、PFAS の直鎖と側鎖は、同様の傾向を示す可能性が示唆された。

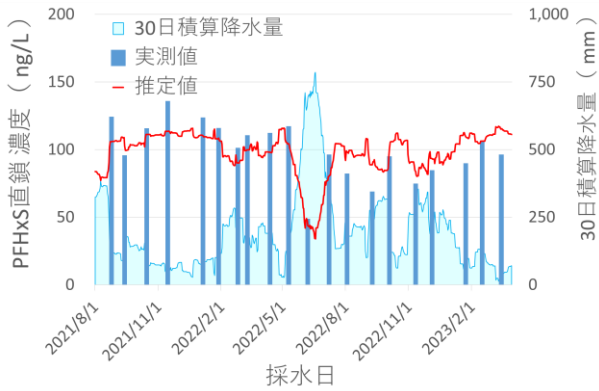


図9. メンダカリヒーガーにおける PFHxS 直鎖濃度の実測値と推定値。

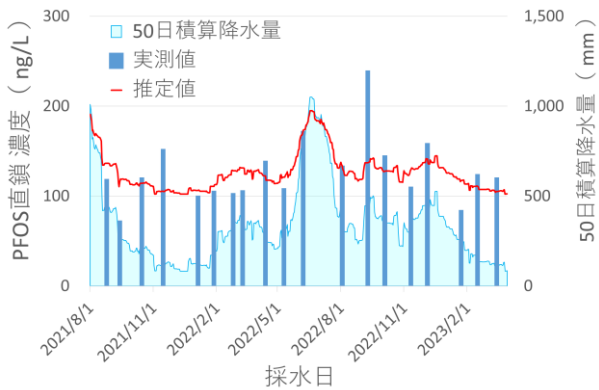


図10. ヒヤカーガーにおける PFOS 直鎖濃度の実測値と推定値。

3. 湧水中の PFAS 濃度の傾向変動について

湧水中の PFAS 濃度は変動を伴うため、PFAS 濃度から傾向変動を把握することは容易ではなかった。しかし今回、PFAS 濃度の変動は積算降水量の変動が一因であることが示唆されたため、以下の考察を行った。

湧水中の PFAS 濃度が、積算降水量のみに依存して変動すると仮定すると、実測値と推定値は完全に一致するため、その割合(実測値/推定値)は1で一定となる。

しかし、PFAS 濃度が、積算降水量に依存しながらも減少傾向にある場合、積算降水量を用いた回帰式から算出した推定値に比べ、実測値は徐々に値が小さくなることか

ら、割合(実測値/推定値)の一次近似式の傾きは負になると想定される。そのため、一次近似式の傾きが負の場合は減少傾向、正の場合は増加傾向と解釈することができ、割合(実測値/推定値)にすることで、積算降水量による濃度変動の影響を除いた PFAS 濃度の傾向変動を把握することが可能と思われた。また、その割合(実測値/推定値)について、Mann-Kendall 傾向検定を行うことで、PFAS 濃度の傾向変動を判定することも可能と思われた。そこで、Mann-Kendall 傾向検定で減少傾向の判定が得られたシチャヌカーの 6:2FTS 濃度と、有意な判定が得られなかったチュンナガーの PFOS 直鎖濃度を例に考察を行った。

(1) シチャヌカーの 6:2FTS 濃度について

シチャヌカーの 6:2FTS 濃度 ($r = -0.59, p < 0.01$) に関しては、解析対象期間の前半では実測値が推定値を上回り、後半ではそれが下回る様子が確認された(図11)。割合(実測値/推定値)の一次近似式を作成すると、その傾きは負となったため(図12)、濃度が徐々に減少している可能性が示唆され、また、Mann-Kendall 傾向検定の結果も、減少傾向の判定となった(表8)。

そのため、シチャヌカーの 6:2FTS 濃度に関しては、積算降水量による濃度変動の影響を除くと、解析対象期間の傾向変動は、減少傾向にあったことが示唆された。

また、Mann-Kendall 傾向検定で減少傾向の判定が得られた他の PFAS 濃度に関しても、シチャヌカーの 6:2FTS 濃度と同様な傾向変動となる可能性が推測された。

(2) チュンナガーの PFOS 直鎖濃度について

チュンナガーの PFOS 直鎖濃度 ($r = 0.64, p < 0.01$) に関しては、シチャヌカーの 6:2FTS 濃度とは異なり、解析対象期間を通して、実測値と推定値は概ね近い値を示した(図13)。割合(実測値/推定値)の一次近似式の傾きは正となったが(図14)、Mann-Kendall 傾向検定では有意水準 5%以上となり、有意な判定は得られなかった(表8)。

そのため、チュンナガーの PFOS 直鎖濃度に関しては、積算降水量による濃度変動の影響を除くと、解析対象期間の傾向変動は、増加傾向とも減少傾向とも言えない状況にあったことが示唆された。

以上のことから、割合(実測値/推定値)の一次近似式の傾き(正負)のみで PFAS 濃度の傾向変動を把握することは容易ではないが、Mann-Kendall 傾向検定も併せ

て行うことで、積算降水量による濃度変動の影響を除いた PFAS 濃度の傾向変動を把握することが、概ね可能と思われた。

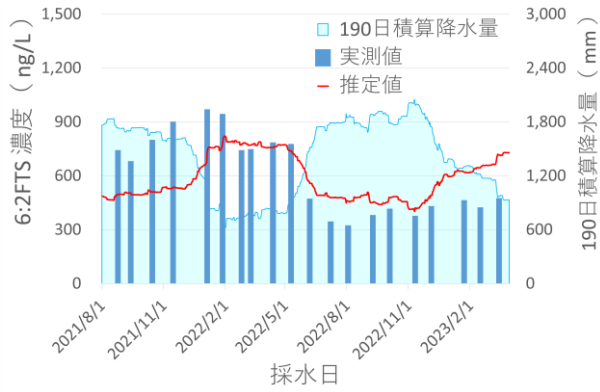


図 11. シチャヌカーにおける 6:2FTS 濃度の実測値と推定値.

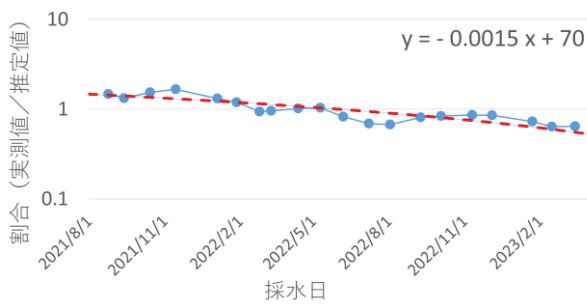


図 12. シチャヌカーにおける 6:2FTS 濃度の実測値と推定値の割合.

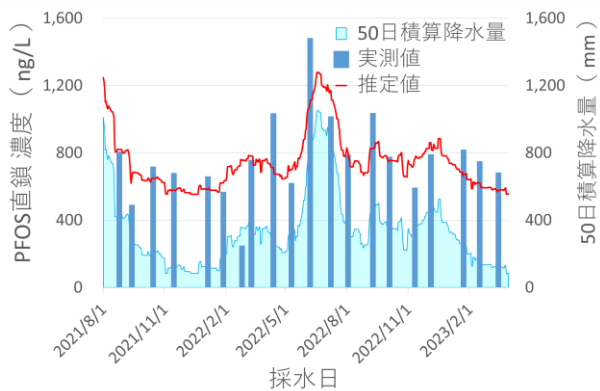


図 13. チュンナガーにおける PFOS 直鎖濃度の実測値と推定値.

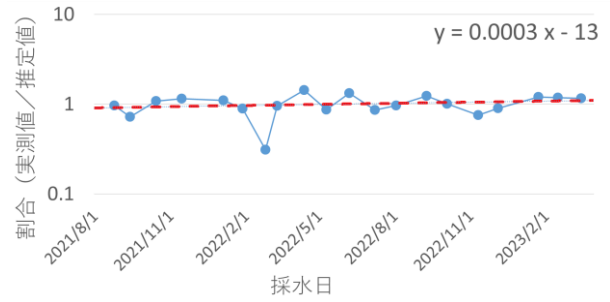


図 14. チュンナガーにおける PFOS 直鎖濃度の実測値と推定値の割合.

V まとめ

普天間飛行場周辺の湧水 6 地点における PFAS の毎月調査の結果を基に、湧水中の PFAS 濃度と積算降水量との関係について解析したところ、以下のことが明らかになった。

1. 普天間飛行場周辺の湧水においては、積算降水量との間に有意な相関 ($p < 0.05$) が認められる PFAS 濃度が確認されたため、これらの PFAS 濃度の変動は、積算降水量の変動が一因であることが示唆された。
2. 有意な相関 ($p < 0.05$) が認められた PFAS 濃度の実測値と、積算降水量を用いた回帰式から算出した推定値との割合 (実測値/推定値) における一次近似式の傾きと、割合 (実測値/推定値) について行った Mann-Kendall 傾向検定の結果から、積算降水量による濃度変動の影響を除いた PFAS 濃度の傾向変動を把握することが、概ね可能と思われた。

<謝辞>

Mann-Kendall 傾向検定を行うに当たり、ご助言及びご協力をいただきました当研究所の田崎盛也氏に、この場を借りて深謝いたします。

VI 文献等

- 1) 沖縄県環境保全課 (2016) 平成 28 年度有機フッ素化合物環境中実態調査の中間報告について. < https://www.pref.okinawa.jp/site/kankyo/hozen/mizu_tsuchi/water/pfos_pfoa_tyuukannhoukou.html >. 2023 年 8 月アクセス.
- 2) 塩川敦司・玉城不二美 (2017) 沖縄島の河川及び海域における有機フッ素化合物の環境汚染調査. 沖縄県衛生環境研究所報, 51: 33-48.
- 3) 沖縄県環境保全課 (2022) 令和 4 年度専門家会議報告書. < <https://www.pref.okinawa.jp/site/kankyo/hozen/> >

- mizu_tsuchi/water/r4_pfos_futenma_research_1.html >. 2023年8月アクセス.
- 4) 公益社団法人日本地下水学会ホームページ. < <http://jagh.jp/> >. 2023年8月アクセス.
 - 5) 平岡透・中川啓・野中尋史・廣田雅春・鈴木祥広 (2021) 都城盆地における地下水中の硝酸性窒素濃度と降水量の関係分析. 水文・水資源学会誌, 34(5): 303-310.
 - 6) Cheng Fang, Mallavarapu Megharaj and Ravendra Naidu (2015) CHEMICAL OXIDIZATION OF SOME AFFFS LEADS TO THE FORMATION OF 6:2FTS AND 8:2FTS. Environmental Toxicology and Chemistry, 34(11): 2625-2628.
 - 7) 気象庁ホームページ, 過去の気象データ検索. < <https://www.data.jma.go.jp/stats/etrn/index.php> >. 2023年8月アクセス.
 - 8) 田子博 (2022) 尾瀬の夏は暑くなっているか?. 群馬県衛生環境研究所年報, 54: 20-26.
 - 9) Christopher P. Higgins and Richard G. Luthy (2006) Sorption of Perfluorinated Surfactants on Sediments. Environ Sci Technol, 40(23): 7251-7256.
 - 10) Hugo Campos Pereira, Malin Ullberg, Dan Berggren Kleja, Jon Petter Gustafsson and Lutz Ahrens (2018) Sorption of perfluoroalkyl substances (PFASs) to an organic soil horizon – Effect of cation composition and pH. Chemosphere, 207: 183-191.
 - 11) 西野貴裕・加藤みか・下間志正・北野大 (2015) 東京都内地下水における有機フッ素化合物の汚染実態と土壌浸透実験における挙動の考察. 環境化学, 25(3): 149-160.
 - 12) Dawit N. Bekele, Yanju Liu, Mark Donaghey, Anthony Umeh, Chamila S. V. Arachchige, Sreenivasulu Chadalavada and Ravi Naidu (2020) Separation and Lithological Mapping of PFAS Mixtures in the Vadose Zone at a Contaminated Site. Frontiers in Water, 2: 597810.
 - 13) 小野尋子 (2020) 水と緑の固有性を継承する沖縄らしい基地跡地利用の実現に向けた実践的研究. 科学研究費助成事業, 研究成果報告書. < <https://kaken.nii.ac.jp/file/KAKENHI-PROJECT-17K06714/17K06714seika.pdf> >. 2023年8月アクセス.
 - 14) 環境省 水・大気環境局 (2013) 地下水汚染の未然防止のための構造と点検・管理に関するマニュアル (第1.1版). 参考資料 11, 地下水汚染のメカニズムと汚染事例. pp. 1-14.

附表1. 普天間飛行場周辺の湧水6地点におけるPFASの毎月調査の結果

①チュンナガー

採水日	濃度 (ng/L)						
	PFOS 直鎖	PFOS 側鎖	PFOA 直鎖	PFOA 側鎖	PFHxS 直鎖	PFHxS 側鎖	6:2FTS
2021/8/25	790	410	140	30	500	73	20
2021/9/13	470	220	110	23	310	46	42
2021/10/15	700	310	130	25	430	70	51
2021/11/15	660	330	160	29	450	73	110
2022/1/5	640	280	150	26	440	68	110
2022/1/28	550	200	98	20	330	50	3.4
2022/2/25	230	97	44	10	160	22	0.7
2022/3/11	740	280	110	27	440	59	76
2022/4/13	1,000	350	160	34	560	77	140
2022/5/10	600	250	110	23	420	61	100
2022/6/7	1,400	440	94	20	350	45	89
2022/7/8	1,000	470	170	39	510	77	89
2022/8/3	770	310	100	24	340	53	99
2022/9/9	1,000	390	140	28	480	72	100
2022/10/4	760	360	160	36	540	83	110
2022/11/11	570	230	94	22	320	49	51
2022/12/5	770	330	110	27	400	56	21
2023/1/23	800	400	150	37	560	73	130
2023/2/16	730	310	130	34	440	60	100
2023/3/16	660	270	140	32	450	67	45

④ヒヤカーガー

採水日	濃度 (ng/L)						
	PFOS 直鎖	PFOS 側鎖	PFOA 直鎖	PFOA 側鎖	PFHxS 直鎖	PFHxS 側鎖	6:2FTS
2021/8/25	110	53	33	4.3	55	9.0	1.7
2021/9/13	70	37	23	2.5	50	7.4	0.3
2021/10/15	110	63	36	5.0	62	10	42
2021/11/15	150	69	38	4.7	62	9.5	38
2022/1/5	98	42	30	3.8	57	8.9	42
2022/1/28	100	39	22	4.2	54	7.8	7.3
2022/2/25	100	46	25	5.0	69	10	1.3
2022/3/11	100	44	24	4.4	57	8.5	43
2022/4/13	130	58	26	5.3	63	8.8	67
2022/5/10	100	42	24	3.4	52	7.5	58
2022/6/7	170	46	17	2.5	27	3.6	57
2022/7/8	170	80	35	8.3	73	10	48
2022/8/3	130	54	24	5.0	55	7.6	46
2022/9/9	230	95	43	9.1	74	10	87
2022/10/4	140	62	27	4.8	60	9.0	42
2022/11/11	100	49	18	3.9	55	6.8	39
2022/12/5	150	70	27	6.0	67	7.9	18
2023/1/23	82	32	16	3.1	36	4.4	44
2023/2/16	120	47	20	4.6	45	6.4	38
2023/3/16	110	48	31	6.4	51	7.0	33

②シチャヌカー

採水日	濃度 (ng/L)						
	PFOS 直鎖	PFOS 側鎖	PFOA 直鎖	PFOA 側鎖	PFHxS 直鎖	PFHxS 側鎖	6:2FTS
2021/8/25	220	100	110	20	99	12	720
2021/9/13	210	83	100	20	83	12	660
2021/10/15	230	120	120	26	100	15	780
2021/11/15	540	240	210	38	150	23	880
2022/1/5	660	300	260	40	190	27	950
2022/1/28	800	310	170	39	170	26	920
2022/2/25	470	200	130	31	130	20	720
2022/3/11	470	190	140	33	130	20	730
2022/4/13	460	180	150	33	130	21	770
2022/5/10	560	230	150	36	160	24	760
2022/6/7	310	100	85	21	87	12	450
2022/7/8	180	85	87	20	75	11	330
2022/8/3	160	75	81	19	71	10	300
2022/9/9	180	81	89	17	71	10	360
2022/10/4	250	120	120	29	100	15	400
2022/11/11	350	140	120	32	100	14	360
2022/12/5	360	160	130	32	100	14	410
2023/1/23	330	140	130	35	100	13	440
2023/2/16	490	200	160	39	120	16	400
2023/3/16	500	200	170	42	150	20	460

⑤森川公園湧水

採水日	濃度 (ng/L)						
	PFOS 直鎖	PFOS 側鎖	PFOA 直鎖	PFOA 側鎖	PFHxS 直鎖	PFHxS 側鎖	6:2FTS
2021/8/25	16	7.7	7.3	<0.3	12	1.7	1.4
2021/9/13	20	11	6.5	0.4	15	2.3	0.3
2021/10/15	23	12	7.6	0.9	16	2.6	7.0
2021/11/15	51	21	20	2.0	23	3.7	32
2022/1/5	36	17	26	4.5	29	4.4	54
2022/1/28	33	16	19	6.0	31	4.2	50
2022/2/25	27	11	9.6	2.3	17	2.4	9.1
2022/3/11	20	11	9.6	1.9	17	2.4	13
2022/4/13	28	12	10	0.5	19	2.6	15
2022/5/10	46	19	22	4.4	30	4.7	60
2022/6/7	20	10	9.1	<0.3	12	1.8	2.3
2022/7/8	23	11	5.0	0.8	12	1.6	0.5
2022/8/3	21	10	4.5	0.7	11	1.5	0.4
2022/9/9	19	12	5.8	0.7	14	1.8	2.0
2022/10/4	25	11	6.0	0.8	15	2.2	2.6
2022/11/11	24	11	5.8	1.0	13	1.7	1.8
2022/12/5	26	12	4.7	0.8	13	1.7	0.4
2023/1/23	25	11	5.9	0.8	14	2.0	3.3
2023/2/16	31	11	7.9	1.8	18	2.2	6.1
2023/3/16	29	12	11	2.7	21	3.3	7.9

③メンダカリヒーガー

採水日	濃度 (ng/L)						
	PFOS 直鎖	PFOS 側鎖	PFOA 直鎖	PFOA 側鎖	PFHxS 直鎖	PFHxS 側鎖	6:2FTS
2021/8/25	390	190	41	7.1	120	18	21
2021/9/13	350	140	38	5.4	94	13	62
2021/10/15	470	210	40	5.9	110	18	110
2021/11/15	830	360	47	6.8	130	21	130
2022/1/5	670	240	37	5.3	120	18	110
2022/1/28	610	220	34	7.0	110	17	110
2022/2/25	480	210	33	6.7	99	14	100
2022/3/11	640	240	38	6.3	100	16	120
2022/4/13	790	190	34	7.0	110	16	110
2022/5/10	540	210	33	6.6	110	16	120
2022/6/7	330	79	18	5.1	47	7.3	46
2022/7/8	330	160	26	6.7	94	14	51
2022/8/3	250	140	25	5.3	80	13	47
2022/9/9	340	140	24	5.2	67	10	66
2022/10/4	420	180	27	5.2	93	14	81
2022/11/11	320	140	26	6.0	73	10	59
2022/12/5	400	160	26	6.5	83	11	51
2023/1/23	420	180	29	6.0	88	11	77
2023/2/16	540	220	31	6.3	100	13	81
2023/3/16	420	160	26	6.0	94	13	64

⑥大謝名メヌカー

採水日	濃度 (ng/L)						
	PFOS 直鎖	PFOS 側鎖	PFOA 直鎖	PFOA 側鎖	PFHxS 直鎖	PFHxS 側鎖	6:2FTS
2021/8/25	15	8.9	13	1.0	10	1.8	<0.3
2021/9/13	17	10	7.3	0.9	10	1.3	<0.3
2021/10/15	14	8.7	5.8	0.7	9.2	1.4	<0.3
2021/11/15	23	11	6.7	0.8	10	1.3	<0.3
2022/1/5	18	9.2	6.6	0.5	11	1.7	<0.3
2022/1/28	22	8.2	6.2	0.5	11	1.9	<0.3
2022/2/25	13	6.4	4.9	0.8	9.4	1.6	<0.3
2022/3/11	24	11	6.3	0.9	11	1.5	<0.3
2022/4/13	12	6.5	6.2	<0.3	9.0	1.5	<0.3
2022/5/10	19	8.7	5.8	0.4	10	1.4	<0.3
2022/6/7	20	9.1	8.1	1.3	9.0	1.3	<0.3
2022/7/8	18	10	5.2	1.4	8.8	1.2	<0.3
2022/8/3	11	6.4	4.3	1.0	8.1	1.1	<0.3
2022/9/9	16	9.3	4.7	0.9	8.4	1.2	0.6
2022/10/4	15	8.1	5.0	1.0	8.8	1.3	0.6
2022/11/11	22	10	5.2	1.1	10	1.4	<0.3
2022/12/5	20	10	5.5	1.2	9.6	1.3	<0.3
2023/1/23	12	7.1	4.9	0.8	7.8	1.1	<0.3
2023/2/16	16	9.1	4.6	0.9	9.3	1.1	<0.3
2023/3/16	8.7	6.4	4.5	0.8	8.4	1.2	<0.3

※ 測定値については、「環境基本法に基づく環境基準の水域類型の指定及び水質汚濁防止法に基づく常時監視等の処理基準について（平成25年3月27日環水大発第1303271号）」に準じ、有効数字2桁（3桁目切り捨て）としている。