

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2) - 6:2FTS 濃度への回帰式の適用 -

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 2) - Application of Linear Regression Equation for 6:2FTS Concentrations -

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においては、一部の 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、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を本報告掲載の別報で報告した。2020年4月、普天間飛行場において泡消火剤流出事故が発生し、5ヶ月後、下流側の湧水で6:2FTSの濃度上昇が確認された。そこで、別報で得られた回帰式を過去の調査結果に適用して解析したところ、6:2FTSの濃度上昇は、積算降水量による濃度変動の範囲を超えており、泡消火剤流出事故による影響の可能性が推測された。

Key words: 有機フッ素化合物 (PFAS), 6:2FTS, 湧水, 回帰分析, 積算降水量, 泡消火剤流出事故

I はじめに

沖縄県環境部では、2016年から有機フッ素化合物（以下、「PFAS」という。）に係る調査を実施している。これまでの調査結果¹⁻¹¹⁾から、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）（ペルフルオロオクタンスルホン酸（以下、「PFOS」という。）及びペルフルオロオクタノ酸（以下、「PFOA」という。）の合計値：50 ng/L以下）を超過する地点が確認されている。2020年4月、普天間飛行場において泡消火剤流出事故が発生し、その翌日に実施した周辺環境調査¹²⁾では、泡消火剤が流出した河川において、高濃度（20,000 ng/L）の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。）が検出された（表1）。2020年9月、普天間飛行場周辺の湧水等においてPFAS調査¹⁰⁾を実施したところ、流出事故現場の下流側の湧水3地点（シチャヌカー、メンダカリヒーガー及びヒヤカーガー）において、6:2FTSの濃度上昇が確認された（図1-図3）。6:2FTSは、泡消火剤が酸化して生成する¹³⁾と報告されているPFASであるため、当時、泡消火剤流出事故による影響の可能性も疑われた。しかし、具体的根拠に乏しく、降水量の変動に伴う通常の濃度変動の範囲内か否かの判別は難しい状況にあり、原因の特定までは至らなかった。

本報告と共に掲載の「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)」(以下、「別

報」という。)において、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、一部の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、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を報告した。

本報では、泡消火剤流出事故後、下流側の湧水において確認された6:2FTSの濃度上昇の原因を解明するため、別報で得られた回帰式を過去の調査結果に適用して解析及び考察を行った。

表1. 2020年4月、普天間飛行場において発生した泡消火剤流出事故の翌日と翌月に実施した、周辺環境調査の結果¹²⁾。

調査地点	採水日 2020年	濃度 (ng/L)			
		PFOS ^{*1}	PFOA ^{*1}	PFHxS ^{*1,2}	6:2FTS ^{*1}
河川①	4月11日	6.3	4.9	3.0	<0.5
真栄原橋	5月14日	4.6	2.9	2.3	1.9
河川②	4月11日	8.3	5.8	4.3	760
宇地泊川合流点下流	5月14日	7.7	3.4	3.9	4.4
河川③	4月11日	23	18	4.9	20,000
大謝名橋上流200m	5月14日	8.7	4.4	4.1	210
湧水①	4月11日	29	7.1	11	<0.5
大謝名メニューカー	5月14日	20	4.4	9.8	<0.5
湧水②	4月11日	63	20	32	6.9
森川公園内湧水	5月14日	40	7.2	19	7.1

^{*1} PFOS及びPFOAは、直鎖体と分岐異性体の合計値。

PFHxS及び6:2FTSは、直鎖体のみ値。

^{*2} ペルフルオロヘキサンスルホン酸 (PFHxS)。

*沖縄県環境部環境保全課

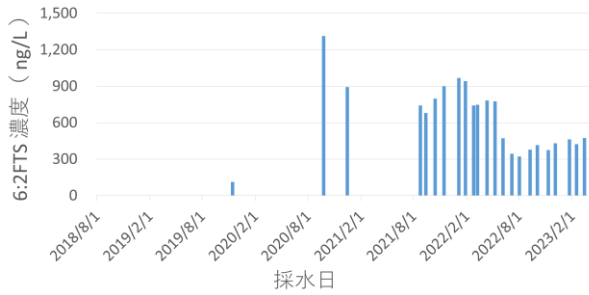


図 1. シチャヌカーにおける6:2FTS濃度の推移.

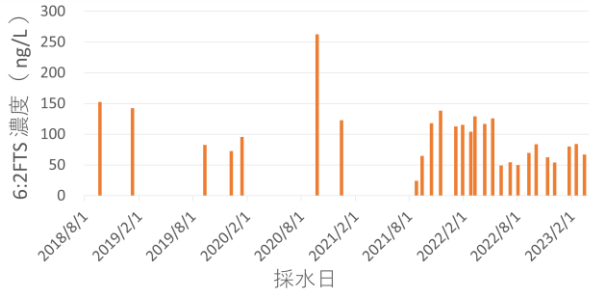


図 2. メンダカリヒーガーにおける6:2FTS濃度の推移.



図 3. ヒヤカーガーにおける6:2FTS濃度の推移.

II 方法

1. 調査概要

(1) 調査地点等

調査地点（6:2FTSの濃度上昇が確認された下流側の湧水3地点）及び泡消火剤流出事故現場を図4に示す。なお、調査地点番号及び調査地点名に関しては、別報と記載を統一した。

(2) 調査結果

委託業務で分析した2021年8月以前の調査結果^{1)~11)}を本報附表1に示す。6:2FTSに関しては、分離した分岐異性体のピークが確認されないため、直鎖体（以下、「直鎖」という。）のみを測定した。また、2020年度以前のPFAS調査では、PFOS、PFOA及びPFHxSに関しては、直鎖のみを測定した。なお、調査途中の見直し等により、調査地点及び調査項目によって、調査開始時期が異なっている。



図 4. 調査地点、泡消火剤流出事故現場等の位置図.

6:2FTSの濃度上昇が確認されたのは、②シチャヌカー、③メンダカリヒーガー及び④ヒヤカーガーの湧水3地点。調査地点番号及び調査地点名は、別報と記載を統一した。河川①、河川②、河川③、湧水①（=別報⑤）及び湧水②（=別報⑥）は、流出事故翌日の調査地点。

当研究所で分析した2021年8月以降の調査結果については、別報附表1に示した。

2. 解析方法

(1) 解析対象物質

解析は、2020年9月に濃度上昇が確認された6:2FTSを対象とした。

(2) 回帰分析について

解析は、別報「3. 解析方法」を基本とし、本報では、回帰分析に用いる期間（以下、「回帰対象期間」という。）を変更させながら回帰分析を行ったため、回帰対象期間を明記した。なお、Mann-Kendall 傾向検定に関しては、時系列（一定間隔）データのトレンド判定に用いられることから、調査間隔が一定ではない本報の調査結果では実施しなかった。

III 結果と考察

1. シチャヌカーの6:2FTS濃度について

(1) 回帰対象期間を変更した回帰分析

別報では、回帰対象期間をPFASの毎月調査を実施した20ヶ月（2021年8月～2023年3月）に固定し、PFAS濃度と積算降水量との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。）を用いて回帰分析を行った。この条件下におけるシチャヌ

カーの 6:2FTS 濃度の実測値と推定値に関しては、回帰対象期間の前半 (2021 年 8 月 - 2022 年 1 月) では実測値が推定値を上回り、後半 (2022 年 6 月 - 2023 年 3 月) ではそれが下回る様子が確認された (図 5)。

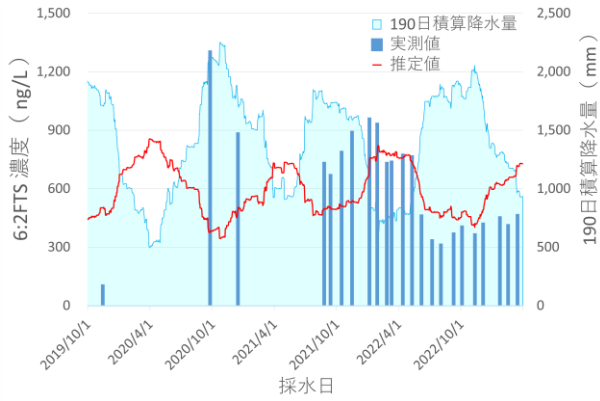


図 5. シチャヌカーの 6:2FTS 濃度の実測値と推定値。【回帰対象期間 (20 ヶ月) : 2021 年 8 月 - 2023 年 3 月】

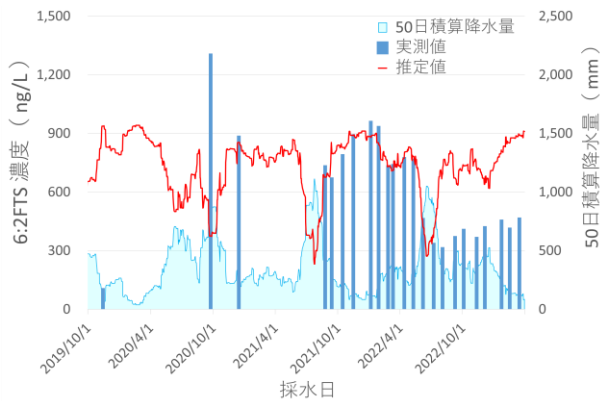


図 6. シチャヌカーの 6:2FTS 濃度の実測値と推定値。【回帰対象期間 (前半 12 ヶ月) : 2021 年 8 月 - 2022 年 7 月】

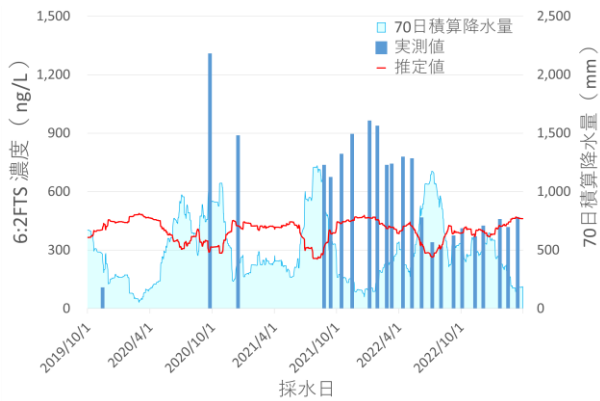


図 7. シチャヌカーの 6:2FTS 濃度の実測値と推定値。【回帰対象期間 (後半 8 ヶ月) : 2022 年 8 月 - 2023 年 3 月】

そこで、20 ヶ月の回帰対象期間を月単位で変更させながら回帰分析を行って、PFAS 濃度と積算降水量との相関係数の絶対値が最大となる回帰対象期間を探し出すことを試みた。その結果、前半 12 ヶ月 (2021 年 8 月 - 2022 年 7 月) と、後半 8 ヶ月 (2022 年 8 月 - 2023 年 3 月) とした場合、相関係数の絶対値が最大となる回帰式が得られた (表 2)。そのため、これらの回帰式から推定値を算出して (図 6, 図 7), 解析及び考察を行った。

表 2. 回帰対象期間を変更させながら回帰分析を実施した時のシチャヌカーにおける 6:2FTS 濃度の回帰式。

回帰対象期間	回帰式	[回帰分析用積算降水量の積算日数]	相関係数
20 ヶ月	$[6:2FTS_{(20)}] = -0.29 \times [190日] + 1000$		-0.59**
前半 14 ヶ月	$[6:2FTS_{(前14)}] = -0.58 \times [70日] + 990$		-0.83***
前半 13 ヶ月	$[6:2FTS_{(前13)}] = -0.57 \times [70日] + 1000$		-0.90***
前半 12 ヶ月	$[6:2FTS_{(前12)}] = -0.66 \times [50日] + 970$		-0.94***
前半 11 ヶ月	$[6:2FTS_{(前11)}] = -0.61 \times [50日] + 950$		-0.89***
前半 10 ヶ月	$[6:2FTS_{(前10)}] = -0.37 \times [60日] + 920$		-0.76**
後半 10 ヶ月	$[6:2FTS_{(後10)}] = -0.12 \times [190日] + 580$		-0.74*
後半 9 ヶ月	$[6:2FTS_{(後9)}] = -0.14 \times [110日] + 520$		-0.90***
後半 8 ヶ月	$[6:2FTS_{(後8)}] = -0.20 \times [70日] + 500$		-0.93***
後半 7 ヶ月	$[6:2FTS_{(後7)}] = -0.32 \times [30日] + 470$		-0.91**
後半 6 ヶ月	$[6:2FTS_{(後6)}] = -0.30 \times [30日] + 460$		-0.89*

*** : 0.1%有意, ** : 1%有意, * : 5%有意。

(2) 回帰対象期間別の実測値と推定値の割合

回帰対象期間を 20 ヶ月 (2021 年 8 月 - 2023 年 3 月), 前半 12 ヶ月 (2021 年 8 月 - 2022 年 7 月) 及び後半 8 ヶ月 (2022 年 8 月 - 2023 年 3 月) とした場合の実測値と推定値の割合 (以下, 「割合 (実/推)」という.) を図 8 に示す。

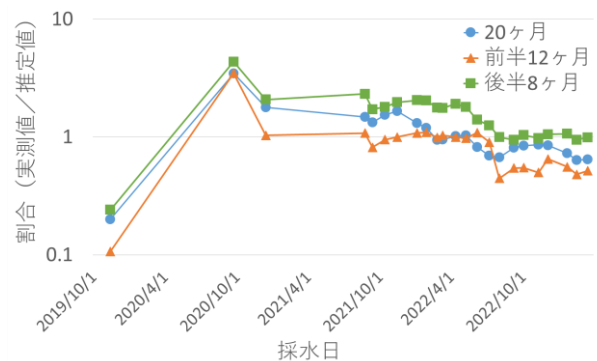


図 8. シチャヌカーの 6:2FTS 濃度の回帰対象期間別の実測値と推定値の割合。

(3) 6:2FTS の濃度上昇について

調査の結果、シチャヌカーにおける 6:2FTS 濃度の実測値は、2019 年 11 月の 100 ng/L から 2020 年 9 月の 1,300 ng/L に大きく濃度上昇していた (附表 1)。

解析の結果、シチャヌカーにおける 2019 年 11 月の 6:2FTS 濃度の割合 (実/推) は、0.1~0.2 程度で、実測値が推定値を大きく下回る濃度であった (図 8)。一方、2020 年 9 月の割合 (実/推) は、3~4 程度の高い値を示し、解析でも、6:2FTS の濃度上昇が確認された。その後、6:2FTS 濃度の実測値は、2020 年 12 月から 2022 年 7 月までは、前半 12 ヶ月の回帰式に概ね一致し (割合 (実/推) は、0.8~1.1 程度)、2022 年 8 月から 2023 年 3 月までは、後半 8 ヶ月の回帰式に概ね一致する (割合 (実/推) は、0.9~1.1 程度) 挙動を示した。また、図 6 及び図 7 においても、2022 年 7 月前後の回帰分析用積算降水量がピークとなる時期を境として、6:2FTS 濃度の実測値は、前半 12 ヶ月の回帰式による推定値に近い値から、後半 8 ヶ月の回帰式による推定値に近い値へ、移行する様子が確認された。

以上のことから、2020 年 12 月から 2023 年 3 月までの 6:2FTS 濃度の変動と割合 (実/推) を、通常の濃度変動の範囲と仮定すると、2019 年 11 月と 2020 年 9 月の実測値は、各回帰式の推定値と大きく乖離しており、通常の濃度変動の範囲を逸脱しているため、その間に何らかの要因 (6:2FTS の突発的な汚染) があつた可能性が示唆された。2020 年 4 月、普天間飛行場において泡消火剤流出事故が発生し、その翌日に実施した周辺環境調査では、泡消火剤が流出した河川において、高濃度 (20,000 ng/L) の 6:2FTS が検出されているため、2020 年 9 月に確認されたシチャヌカーにおける 6:2FTS の濃度上昇は、2020 年 4 月に発生した当該事故による影響の可能性が推測された。また、6:2FTS 濃度の割合 (実/推) が、2022 年 7 月を境に変化した (6:2FTS 濃度の依存する回帰式が、別の回帰式に移行した) 理由については、以下のような現象が起きていた可能性が推測された。例えば、6:2FTS の突発的な汚染により一時的に増大した負荷量が、積算降水量のピーク期 (2022 年 7 月頃) までにある程度流出し、6:2FTS 汚染源そのものの濃度が低下したため、湧水中の濃度が低下した。若しくは、汚染源の 6:2FTS 濃度が低下したことにより、6:2FTS の吸着特性に何らかの変化が生じ、6:2FTS の流出速度が低下して、湧水中の濃度が低下した、等の理由が推測された。

2. メンダカリヒーガーの 6:2FTS 濃度について

メンダカリヒーガーの 6:2FTS 濃度に関しても、シチャヌカーと同様に、回帰対象期間を月単位で変更させながら回帰分析を行った。その結果、前半 13 ヶ月 (2021 年 8 月-2022 年 8 月) と、後半 15 ヶ月 (2022 年 1 月-2023 年 3 月) とした場合、PFAS 濃度と積算降水量との相関係数の絶対値が最大となる回帰式が得られた (表 3)。

表 3. 回帰対象期間を変更して回帰分析を実施した時のメンダカリヒーガーの 6:2FTS 濃度の回帰式。

回帰対象期間	回帰式	[回帰分析用積算降水量の積算日数]	相関係数
20ヶ月	[6:2FTS ₍₂₀₎]	= -0.070 × [100日] + 130	-0.77***
前半15ヶ月	[6:2FTS _(前15)]	= -0.088 × [90日] + 150	-0.91***
前半14ヶ月	[6:2FTS _(前14)]	= -0.089 × [90日] + 150	-0.92***
前半13ヶ月	[6:2FTS _(前13)]	= -0.093 × [80日] + 150	-0.93***
前半12ヶ月	[6:2FTS _(前12)]	= -0.093 × [80日] + 150	-0.92***
前半11ヶ月	[6:2FTS _(前11)]	= -0.10 × [80日] + 150	-0.92***
後半17ヶ月	[6:2FTS _(後17)]	= -0.065 × [110日] + 130	-0.75***
後半16ヶ月	[6:2FTS _(後16)]	= -0.049 × [200日] + 150	-0.83***
後半15ヶ月	[6:2FTS _(後15)]	= -0.048 × [200日] + 150	-0.84***
後半14ヶ月	[6:2FTS _(後14)]	= -0.047 × [200日] + 150	-0.82***
後半13ヶ月	[6:2FTS _(後13)]	= -0.048 × [200日] + 150	-0.82***

*** : 0.1%有意, ** : 1%有意, * : 5%有意.

調査の結果、メンダカリヒーガーにおける 6:2FTS 濃度の実測値は、2020 年 1 月の 93 ng/L から 2020 年 9 月の 260 ng/L に濃度上昇していた (附表 1)。

解析の結果においても、メンダカリヒーガーにおける 2020 年 9 月の割合 (実/推) は 5~6 程度であるのに対し、それ以外の割合 (実/推) は 0.4~2.1 程度であった (図 9)。これらのことから、2020 年 9 月の 6:2FTS 濃度の実測値は、通常の濃度変動の範囲を超過した濃度上昇であった可能性が示唆された。また、前半 13 ヶ月と後半 15 ヶ月の回帰式は、一部重なる期間があるものの、シチャヌカーの場合と同様に、2022 年 7 月前後の前半 13 ヶ月の回帰分析用積算降水量である 80 日積算降水量がピークとなる時期を境として、6:2FTS 濃度の実測値は、前半 13 ヶ月の回帰式による推定値に近い値から、後半 15 ヶ月の回帰式による推定値に近い値へ、移行しているように思われた (図 10)。更に、2018 年 9 月から 2020 年 1 月にかけて減少傾向で推移していた 6:2FTS 濃度が、2020 年 9 月に一旦上昇し、再び 2020 年 12 月から 2023 年 3 月にかけて減少傾向で推移していく様子も、図 9 から推測された。

以上のことから、メンダカリヒーガーにおける6:2FTS濃度についても、シチャヌカーと同様に、2020年1月から2020年9月までの間に、何らかの6:2FTSの突発的な汚染があった可能性が示唆され、2020年4月に発生した泡消火剤流出事故による影響の可能性が推測された。

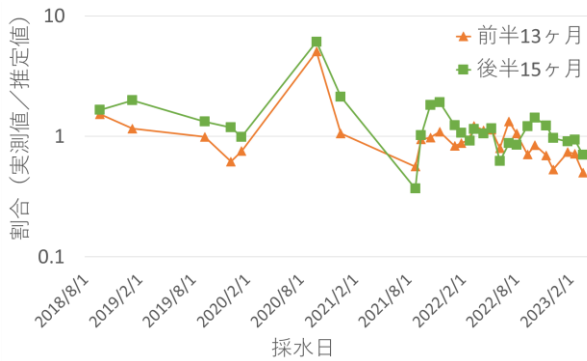


図9. メンダカリヒーガーにおける6:2FTS濃度の回帰対象期間別の実測値と推定値の割合。

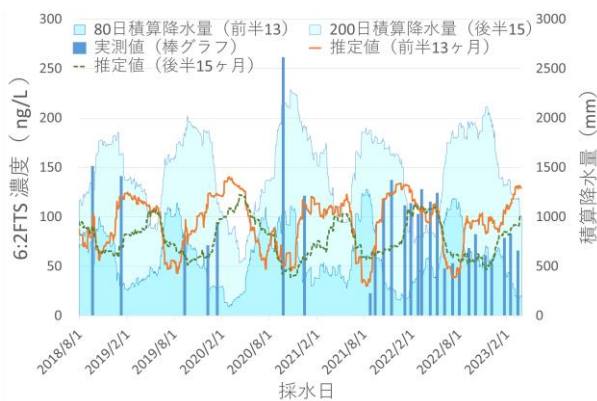


図10. メンダカリヒーガーの6:2FTS濃度の実測値と推定値。【回帰対象期間（前半13ヶ月）：2021年8月－2022年8月】，【回帰対象期間（後半15ヶ月）：2022年1月－2023年3月】

3. ヒヤカーガーの6:2FTS濃度について

ヒヤカーガーの6:2FTS濃度に関しては、積算降水量との間に有意な相関が認められないことから（別報表7）、回帰式を適用した解析は困難であった。しかし、ヒヤカーガーにおける6:2FTS濃度の実測値は、2020年1月の51 ng/Lから2020年9月の270 ng/Lに濃度上昇しており（附表1）、前述のシチャヌカーやメンダカリヒーガーの解析及び考察を勘案すると、通常の濃度変動の範囲を超過していた可能性が推測された。

IV まとめ

泡消火剤の流出事故後、下流側の湧水において確認された6:2FTSの濃度上昇の原因を解明するため、別報で得られた回帰式を過去の調査結果に適用して解析及び考察を行った。その結果、シチャヌカー及びメンダカリヒーガーで確認された6:2FTSの濃度上昇は、実測値と推定値の割合から、積算降水量による通常の濃度変動の範囲を超えた濃度上昇であった可能性が示唆された。そのため、6:2FTSの突発的な汚染による影響の可能性が示唆され、2020年4月、普天間飛行場において発生した泡消火剤流出事故による影響の可能性が推測された。

V 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_tyuukannhoukoku.html >. 2023年8月アクセス。
- 2) 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冬季結果報告について。 < https://www.pref.okinawa.jp/site/kankyo/hozen/mizu_tsuchi/water/pfos-pfoa_h28-result.html >. 2023年8月アクセス。
- 3) 沖縄県環境保全課（2017）平成29年度有機フッ素化合物環境中実態調査の夏季結果報告について。 < https://www.pref.okinawa.jp/site/kankyo/hozen/mizu_tsuchi/water/pfos-pfoa_h29-summer-result.html >. 2023年8月アクセス。
- 4) 沖縄県環境保全課（2017）平成29年度有機フッ素化合物環境中実態調査の冬季結果報告について。 < https://www.pref.okinawa.jp/site/kankyo/hozen/mizu_tsuchi/water/pfos-pfoa_h29-winter-result.html >. 2023年8月アクセス。
- 5) 沖縄県環境保全課（2018）平成30年度有機フッ素化合物環境中実態調査の夏季結果報告について。 < https://www.pref.okinawa.jp/site/kankyo/hozen/mizu_tsuchi/water/pfos-pfoa_h30-summer-result.html >. 2023年8月アクセス。
- 6) 沖縄県環境保全課（2018）平成30年度有機フッ素化合物環境中実態調査の冬季結果報告について。 < https://www.pref.okinawa.jp/site/kankyo/hozen/mizu_tsuchi/water/pfos-pfoa_h30-winter-result.html >. 2023年8月アクセス。

- 7) 沖縄県環境保全課 (2019) 令和元年度有機フッ素化合物環境中実態調査の夏季結果報告について. < http://www.pref.okinawa.jp/site/kankyo/hozen/mizu_tsuchi/water/pfos-pfoa-r01-summer-result.html >. 2023年8月アクセス.
- 8) 沖縄県環境保全課 (2019) 令和元年度有機フッ素化合物環境中実態調査 (追加調査) の結果報告について. < https://www.pref.okinawa.jp/site/kankyo/hozen/mizu_tsuchi/water/pfos-pfoa-r01-additional-result.html >. 2023年8月アクセス.
- 9) 沖縄県環境保全課 (2019) 令和元年度有機フッ素化合物環境中実態調査の冬季調査結果, 再追加調査結果, 雄樋川調査結果について. < https://www.pref.okinawa.jp/site/kankyo/hozen/mizu_tsuchi/water/pfos-pfoa-r01-winter-result.html >. 2023年8月アクセス.
- 10) 沖縄県環境保全課 (2020) 令和2年度有機フッ素化合物環境中残留実態調査の夏季調査の結果について. < https://www.pref.okinawa.jp/site/kankyo/hozen/mizu_tsuchi/water/pfos-pfoa-r02-summer-result.html >. 2023年8月アクセス.
- 11) 沖縄県環境保全課 (2020) 令和2年度有機フッ素化合物環境中残留実態調査の冬季調査の結果について. < https://www.pref.okinawa.jp/site/kankyo/hozen/mizu_tsuchi/water/pfos-pfoa_r2-winter-result.html >. 2023年8月アクセス.
- 12) 沖縄県環境保全課 (2020) 普天間飛行場泡消火剤漏出事故に伴う環境調査結果について (第4報). < <https://www.pref.okinawa.jp/site/kankyo/hozen/press/press-r2-hutenma-formextinguisher4.html> >. 2023年8月アクセス.
- 13) Cheng F, Mallavarapu M and Ravendra N (2015) CHEMICAL OXIDIZATION OF SOME AFFFs LEADS TO THE FORMATION OF 6:2FTS AND 8:2FTS. Environmental Toxicology and Chemistry, 34(11): 2625-2628.

附表1. 普天間飛行場周辺の湧水6地点におけるPFAS調査の結果 (2021年8月以前の調査結果¹⁻¹¹⁾).

②シチャヌカー				
				濃度 (ng/L)
採水日	PFOS直鎖	PFOA直鎖	PFHxS直鎖	6:2FTS
2019/11/14	320	140	130	100
2020/9/24	230	96	80	1,300
2020/12/15	220	91	78	880

③メンダカリヒーガー				
				濃度 (ng/L)
採水日	PFOS直鎖	PFOA直鎖	PFHxS直鎖	6:2FTS
2016/9/21	680	35	—	—
2017/1/11	670	42	—	—
2017/9/13	590	43	—	—
2018/1/29	640	42	—	—
2018/9/21	600	50	—	150
2019/1/9	730	42	—	140
2019/9/11	490	33	100	80
2019/12/9	840	46	160	70
2020/1/14	650	44	160	93
2020/9/24	420	26	75	260
2020/12/15	710	33	100	120

④ヒヤカーガー				
				濃度 (ng/L)
採水日	PFOS直鎖	PFOA直鎖	PFHxS直鎖	6:2FTS
2016/9/15	180	31	—	—
2017/1/11	94	26	—	—
2017/9/13	120	33	—	—
2018/1/29	160	36	—	—
2018/9/21	150	29	—	75
2019/1/9	170	38	—	52
2019/9/11	170	31	75	66
2019/12/9	130	30	68	26
2020/1/14	140	30	67	51
2020/9/24	100	18	49	270
2020/12/15	100	22	51	49

※ 「—」は, 未調査. 調査の開始時期は, 調査地点及び調査対象物質によって異なる.