

京都府における有害大気汚染物質の実情に関する 一般化線形モデルを用いた解析について

平野 滋章 西村 沙樹

Analysis of the Circumstance of Hazardous Air Pollutants
in Kyoto Prefecture Using Generalized Linear Models

Shigeaki HIRANO Saki NISHIMURA

要 旨

有害大気汚染物質とは、低濃度でも長期曝露により健康に悪影響を及ぼす可能性があると考えられている化学物質であり、大気汚染防止法に基づきそのモニタリングの実施が都道府県等に対して義務付けられている。京都府において、現在モニタリングを実施している久御山局、国道1号局及び国道171号局の3地点において、2011年から共通して測定しているアセトアルデヒド、ホルムアルデヒド、1,3-ブタジエン、ベンゼン、トルエン及びベンゾ[a]ピレンの6物質を対象に、一般化線形モデルを用いて、大気中濃度の地点間の差や経年変化、季節変動、気温との関係性について解析を行った。その結果、いずれの物質も国道1号局が3地点の中で最も濃度が高い傾向があり、久御山局と国道171号局はほとんどの物質では同程度であったが、トルエンは久御山局が、1,3-ブタジエンは国道171号局が高濃度である傾向があった。これには各測定地点の立地環境と物質の発生源の違いが関係していると考えられた。経年変化については、1,3-ブタジエン、ベンゼン及びベンゾ[a]ピレンは、年度を経るごとに減少していく傾向が見られた。その他の物質はほぼ横ばいで推移していた。季節変動については、アルデヒド類は夏季に高濃度になり、気温に対して正の反応を示し、その他の物質については、秋季から冬季に高濃度になり、気温が高くなると低濃度になる傾向があることがわかった。この理由としては、アルデヒド類が大気中で炭化水素から光化学反応で二次生成されることが関係していると考えられる。全国的な枠組みである有害大気汚染物質のモニタリングは、異なる環境条件下におけるデータであるので、一般化線形モデルをはじめとした統計モデルを用いることで、有害大気汚染物質の動態に関する理解が進み、対策がより一層推進されることが期待される。

キーワード：アセトアルデヒド、ホルムアルデヒド、揮発性有機化合物、1,3-ブタジエン、ベンゼン、トルエン、ベンゾ[a]ピレン、多変量解析

Keywords：Acetaldehyde, Formaldehyde, Volatile organic compounds, 1,3-Butadiene, Benzene, Toluene, Benzo[a]pyrene, Multivariate Analysis

はじめに

有害大気汚染物質とは、低濃度でも長期曝露により健康に悪影響を及ぼす可能性があると考えられている化学物質である。1996年5月の大気汚染防止法改正により、こうした物質への対策が制度化され、都道府県等に対して有害大気汚染物質のモニタリングの実施が義務付けられた。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」が選定され、そのうち健康へのリスクが高いと考えられる物質は、「優先取組物質」としてリスト化されている。京都府では、1997年12月から優先取組物質を中心に採取及び測定を開始し、現在では3地点において毎月のモニタリングを実施している。このような長期のモニタリングデータに基づき、2005年に中西ら¹⁾が、2016年に平澤ら²⁾が当時の京都府内の状況について報告している。

環境大気中の有害大気汚染物質の濃度は、測定地点における発生源からの影響、例えば排出量や距離を反映しているだ

けではなく、気象要因や地形といった様々な要因の影響を受けて変動している。そこで、大気汚染の状況や動態を正確に把握するためには、諸要因が対象物質の大気中濃度に対してどのような影響を与えているか理解する必要がある。このような目的のため、統計モデルを用いた解析が有効と考えられる。対象となる観測値を応答変数とし、それに影響し得る要因を説明変数として統計モデルに組み込むことにより、各要因の効果を統計的に調整し、客観的に評価することが可能となる。

一般的な統計モデルである線形回帰モデルでは、対象とする観測値が正規分布に従うことが仮定されている。しかしながら、実際の観測値は、その仮定を満たさないことが多く、その場合、統計的検定における統計量の算出に誤りが生じ、間違った解釈をする恐れがある。この対処法として、誤差構造を任意の指数型分布族の確率分布として扱うことのできる一般化線形モデルを用いることが有効とされている³⁾。また、一般化線形モデルは、リンク関数を用いて線形予測をすることで、指数関数的な応答を示す関係性に対しても、モデルの推定値を直接算出することができるという利点がある。

(令和8年1月27日受理)

本稿では、2011年度から2022年度に測定したデータを用いて一般化線形モデルにより京都府における有害大気汚染物質の大気中濃度の地点間の差や経年変化、季節変動の傾向を示すとともに、気温との関係性について解析を行ったので、その結果について報告する。

方法

1. 対象データ

対象地点は、現在モニタリングを実施している府内3地点とした。場所を図1に示す。久御山局は府南部の都市近郊の一般環境地点であるが、町道の交差点に近接しているうえ、近傍に国道や工業団地が存在しているため、発生源の影響が比較的大きいと考えられる地点である。国道1号局及び国道171号局はどちらも府南部の交通量の多い沿道に立地しているため、移動発生源の影響が大きいと想定される。国道1号局の西側には自動車解体工場等が集積しており、固定発生源の影響も大きいと考えられる。一方で、国道171号局は大規模事業所からも離れており、後背が三川合流地点付近の桂川に面しているため、固定発生源の影響は小さいと考えられる。

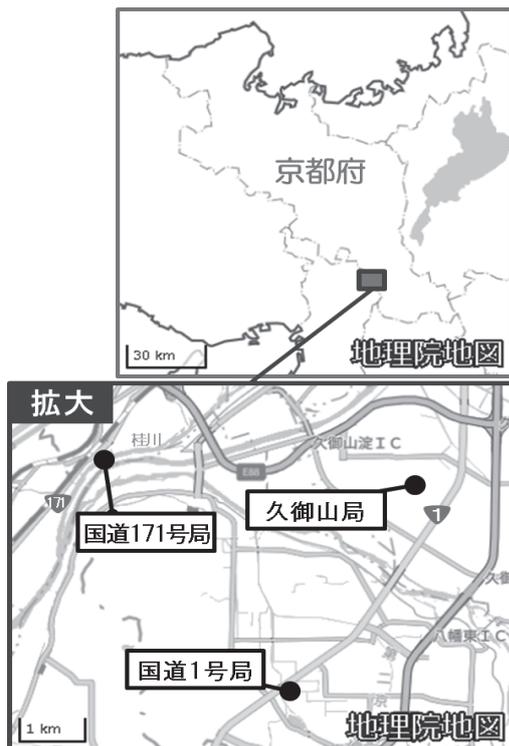


図1. 有害大気汚染物質の測定地点の地図（地理院地図を加工して作成）

対象物質は、京都府で測定している物質のうち、対象地点で共通して測定しているアルデヒド類のアセトアルデヒドとホルムアルデヒド、揮発性有機化合物（以下「VOC」という。）の1,3-ブタジエン、ベンゼン及びトルエン、多環芳香族炭化水素のベンゾ[a]ピレンの6物質とした。これらの

物質は自動車排ガスや工業活動が主な発生源と考えられており、都市部や交通量の多い地域における大気環境のリスク評価において重要な指標とされている。対象物質の大気中濃度の測定については、有害大気汚染物質測定方法マニュアル（環境省水・大気環境局大気環境課、2021年3月）に従い、毎月1回、平日に試料を24時間採取し、分析を行った。

対象期間は、対象物質のトルエンの測定を開始した2011年4月から2023年3月までの12年間とした。この期間中、すべての対象物質において欠損値はなかった。

気温については、試料採取と並行して温度ロガーにより24時間1分値を計測したものの平均を日平均値として解析に用いた。

なお、これらのデータについては、国立研究開発法人国立環境研究所の環境展望台ホームページ (<https://tenbou.nies.go.jp/gisplus/download.html>) で公表されている。

2. 統計解析

統計解析にはR (ver.4.4.2)を用いた。なお、統計的検定においては、有意水準は5%とした。

対象物質の大気中濃度について、それぞれShapiro-Wilk検定を行ったところ、すべての物質において有意水準未満 ($p < 0.001$)であったため、測定値は正規分布に従わないと判断した。そこで、誤差構造にガンマ分布を仮定し、リンク関数をlogとした一般化線形モデルをglm関数により生成し解析した。

対象物質の地点間の差や経年変化及び年内変動を検証するため、応答変数を対象物質の大気中濃度とし、測定地点、測定年度及び測定月を説明変数としたモデルについて解析を行い、carパッケージのAnova関数を使用し、F検定（タイプII型）による逸脱度分析によって効果の有意性を検証した⁴⁾。この時、測定年度及び測定月はどちらも質的変数として扱った。なお、これらの説明変数について多重共線性は見られなかった。加えて、地点間の違いを検証するため、モデルに対してmultcompパッケージのglht関数を使用し、多重比較（Tukey法）を行った。

また、季節性を表す気象要因として気温に着目し、対象物質の大気中濃度に対し、測定地点と測定年度に加え、試料採取日の日平均気温を説明変数としたモデルについて解析し、上記と同様にF検定による逸脱度分析によって効果の有意性を検証した。この時、測定年度は質的変数として扱った。なお、これらの説明変数について多重共線性は見られなかった。

結果

一般化線形モデルを用いた対象物質の大気中濃度に対する測定地点、測定年度及び測定月の効果検証の結果を表1に示す。アセトアルデヒド、1,3-ブタジエン、ベンゼン、トルエン及びベンゾ[a]ピレンについては、いずれの効果も有意であった。ホルムアルデヒドは測定地点及び測定月の効果が有意であったが、測定年度の効果は有意ではなかった。

表1. 対象物質の大気中濃度を目的変数とし、測定地点、測定年度及び測定月を説明変数とした一般化線形モデルに対するF検定(タイプII型)の結果(有意水準5%未満)

物質名	説明変数	自由度	F値	p値
アセトアルデヒド	地点	2	4.18	<u>0.016</u>
	年度	11	4.92	<u>< 0.001</u>
	月	11	3.63	<u>< 0.001</u>
ホルムアルデヒド	地点	2	4.12	<u>0.017</u>
	年度	11	1.55	0.11
	月	11	19.0	<u>< 0.001</u>
1,3-ブタジエン	地点	2	30.7	<u>< 0.001</u>
	年度	11	12.3	<u>< 0.001</u>
	月	11	23.2	<u>< 0.001</u>
ベンゼン	地点	2	21.5	<u>< 0.001</u>
	年度	11	14.7	<u>< 0.001</u>
	月	11	39.7	<u>< 0.001</u>
トルエン	地点	2	71.8	<u>< 0.001</u>
	年度	11	3.82	<u>< 0.001</u>
	月	11	4.26	<u>< 0.001</u>
ベンゾ[a]ピレン	地点	2	6.35	<u>< 0.001</u>
	年度	11	5.30	<u>< 0.001</u>
	月	11	18.4	<u>< 0.001</u>

1. 大気中濃度の地点間の違いと経年変化

各物質について、測定地点ごとの年平均濃度の推移を図2に示し、地点間の大気中濃度の多重比較の結果を表2に示す。

測定地点による大気中濃度の大小関係は表2において地点間比較の傾きを表す推定値の正負から読取ることができ、物質ごとに傾向が異なることがわかった。アルデヒド類の大気中濃度は、どちらも傾向は一致しており、国道1号局は国道171号局に比べて有意に高濃度であったが、久御山局は他の地点とは有意な違いはなかった。1,3-ブタジエンの大気中濃度は、国道1号局>国道171号局>久御山局の順で高濃度であった。トルエンの大気中濃度は、国道1号局>久御山局>国道171号局の順で高濃度であり、図2からもこの傾向が顕著であることが伺える。ベンゼン及びベンゾ[a]ピレンについては、国道1号局が他の地点に比べて有意に高濃度であり、久御山局と国道171号局には差がなかった。

経年変化については、表1で年度による有意な効果が見られなかったホルムアルデヒドは、図2からも年度による変

動がほとんどなく横ばいで推移していることがわかる。アセトアルデヒド及びトルエンについては、図2からも年度ごとに大きく変動していたが、一貫した傾向は見られなかった。1,3-ブタジエン、ベンゼン及びベンゾ[a]ピレンは、図2からも2011年に比べ減少傾向であることがわかった。

2. 大気中濃度の年内変動と気温との関係

各物質の地点ごとの12年間の月平均濃度を図3に、大気中濃度と試料採取日の日平均気温の関係を図4に示し、一般化線形モデルを用いた対象物質の大気中濃度に対する測定地点、測定年度及び日平均気温の効果検証の結果と推定値を表3に示す。

表3. 対象物質の大気中濃度を目的変数とし、測定地点、測定年度及び気温を説明変数とした一般化線形モデルに対するF検定(タイプII型)の結果と推定値(有意水準5%未満)

物質名	説明変数	自由度	F値	p値	推定値
アセトアルデヒド	地点	2	4.45	<u>0.012</u>	---
	年度	11	5.22	<u>< 0.001</u>	---
	気温	11	34.8	<u>< 0.001</u>	<u>0.014</u>
ホルムアルデヒド	地点	2	4.04	<u>0.017</u>	---
	年度	11	2.09	<u>0.020</u>	---
	気温	11	211	<u>< 0.001</u>	<u>0.031</u>
1,3-ブタジエン	地点	2	26.6	<u>< 0.001</u>	---
	年度	11	11.3	<u>< 0.001</u>	---
	気温	11	131	<u>< 0.001</u>	<u>-0.027</u>
ベンゼン	地点	2	19.0	<u>< 0.001</u>	---
	年度	11	13.0	<u>< 0.001</u>	---
	気温	11	270	<u>< 0.001</u>	<u>-0.031</u>
トルエン	地点	2	67.7	<u>< 0.001</u>	---
	年度	11	4.13	<u>< 0.001</u>	---
	気温	11	4.68	<u>0.031</u>	<u>-0.0078</u>
ベンゾ[a]ピレン	地点	2	5.51	<u>0.004</u>	---
	年度	11	4.41	<u>< 0.001</u>	---
	気温	11	89.3	<u>< 0.001</u>	<u>-0.043</u>

アセトアルデヒドは、一年を通じてほぼ横ばいであったが、2月に有意に低濃度になった。ホルムアルデヒドは、6月から9月に高濃度になり、11月から2月に低濃度になった。気温との関係では、どちらも気温の有意な効果が見られ、モデルの傾きを表す推定値は正の値であったため気温が高くなると高濃度になる傾向があることがわかった。一方、1,3-

表2. 対象物質の測定地点間の多重比較(Tukey法)の結果(有意水準5%未満)

物質名	国道1号局-久御山局		国道1号局-国道171号局		久御山局-国道171号局	
	推定値	p値	推定値	p値	推定値	p値
アセトアルデヒド	0.036	0.77	<u>0.15</u>	<u>0.014</u>	0.11	0.089
ホルムアルデヒド	0.072	0.27	<u>0.13</u>	<u>0.011</u>	0.062	0.38
1,3-ブタジエン	<u>0.37</u>	<u>< 0.001</u>	<u>0.21</u>	<u>< 0.001</u>	<u>-0.16</u>	<u>0.002</u>
ベンゼン	<u>0.22</u>	<u>< 0.001</u>	<u>0.20</u>	<u>< 0.001</u>	-0.017	0.90
トルエン	<u>0.28</u>	<u>< 0.001</u>	<u>0.91</u>	<u>< 0.001</u>	<u>0.63</u>	<u>< 0.001</u>
ベンゾ[a]ピレン	<u>0.27</u>	<u>0.003</u>	<u>0.23</u>	<u>0.017</u>	-0.046	0.85

ブタジエン、ベンゼン、トルエン及びベンゾ[a]ピレンについては、図3から6月と8月に低く、12月と1月を中心に顕著に高濃度になることがわかった。いずれの物質も、気温に対して負の反応が見られ、気温が高くなると低濃度になる傾向があることがわかった。

説明変数に測定月を含めた場合(表1)と、気温を含めた場合(表3)の結果の比較では、ホルムアルデヒドにおいて年度の効果のみ有意性に違いが見られた。図4から、気温との関係から大きく外れる高濃度な点が確認され、これらは2021年3月の久御山局及び国道1号局の結果であった。

考 察

本稿の解析における測定地点の効果は、周辺の発生源の状況を反映していると解釈できると考えられる。いずれの対象物質の大気中濃度も環境基準値もしくは環境指針値を大きく下回っているものの、国道1号局が最も高い傾向であった。同局は沿道に位置しているだけでなく、周辺に工場等が集積していることから、他の2地点と比較して発生源の影響を受けやすい地点であるためと考えられる。

また、久御山局と国道171号局の比較では、多くの物質

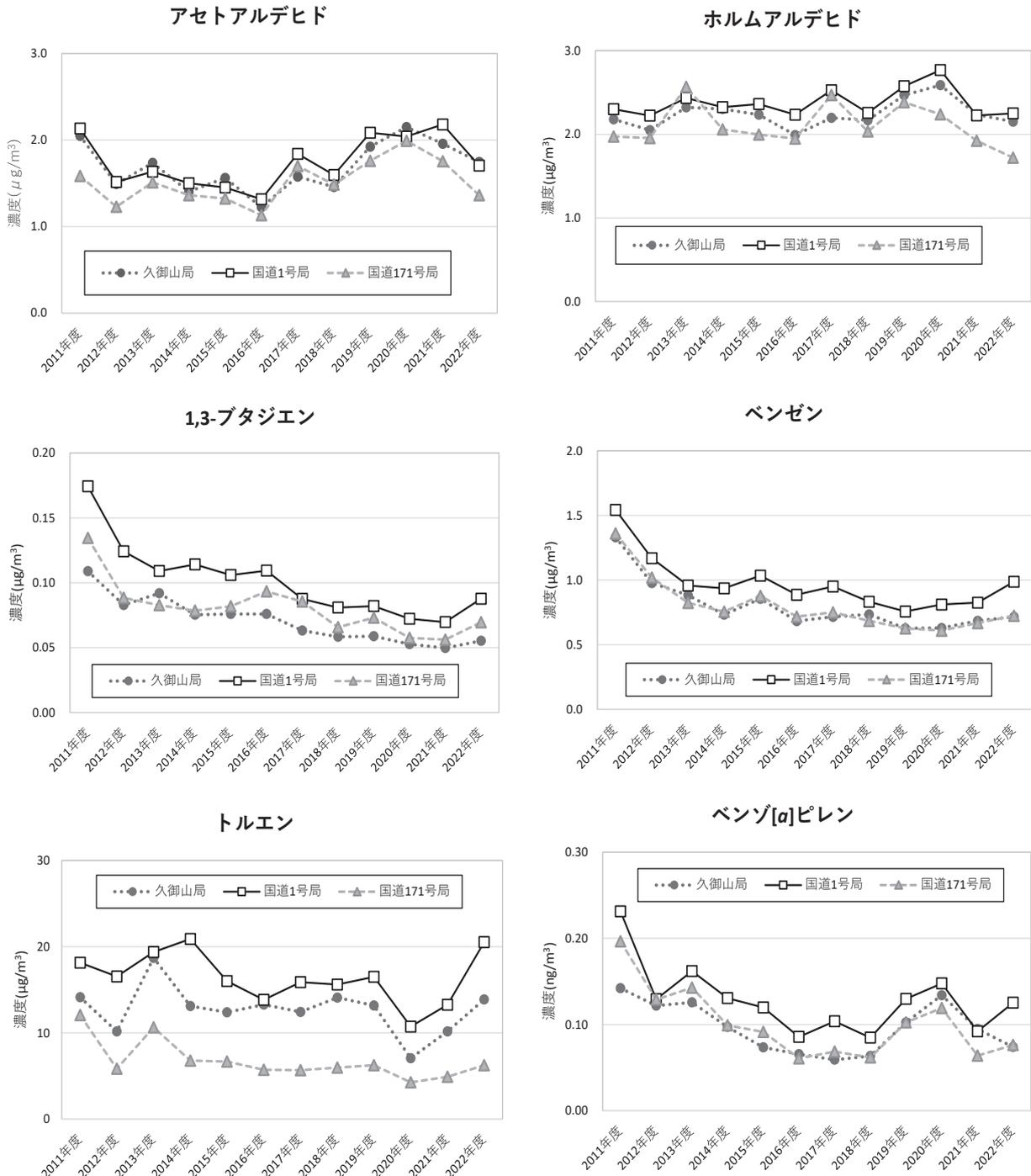


図2. 対象物質の各測定地点における2011年度から2022年度の年平均大気中濃度の推移

が両地点で差がなかったものの、トルエンは久御山局の方が高く、1,3-ブタジエンは国道171号局の方が高かった。このような違いが生じた理由は各物質の発生源の違いと各地点の立地環境から推察できる。1,3-ブタジエンは移動発生源の影響が強いとされているため、沿道にある国道171号局の方が高濃度になり、一方、トルエンは移動発生源以外にも固定発生源からの排出も非常に多い物質であるため、周辺に固定発生源が多い久御山局の方が高濃度となったと考えられる。

本稿では、各効果の主効果のみを説明変数とし、それぞれ

の交互作用は含めなかった。しかし、予備的に測定地点と測定年度の交互作用、測定地点と測定月の交互作用を追加したモデルについて解析したところ、2つの交互作用は有意でなかった。そのため、経年変化及び年内変動は地点による違いがなく、傾向は一貫していると判断した。なお、その際の主効果の有意性については本稿の結果と変わらなかった。

経年変化については、1,3-ブタジエン、ベンゼン及びベンゾ[a]ピレンは、今回の対象期間においても減少傾向が見られ、既報^{1,2)}と照らしても長期的に減少していることがわかつ

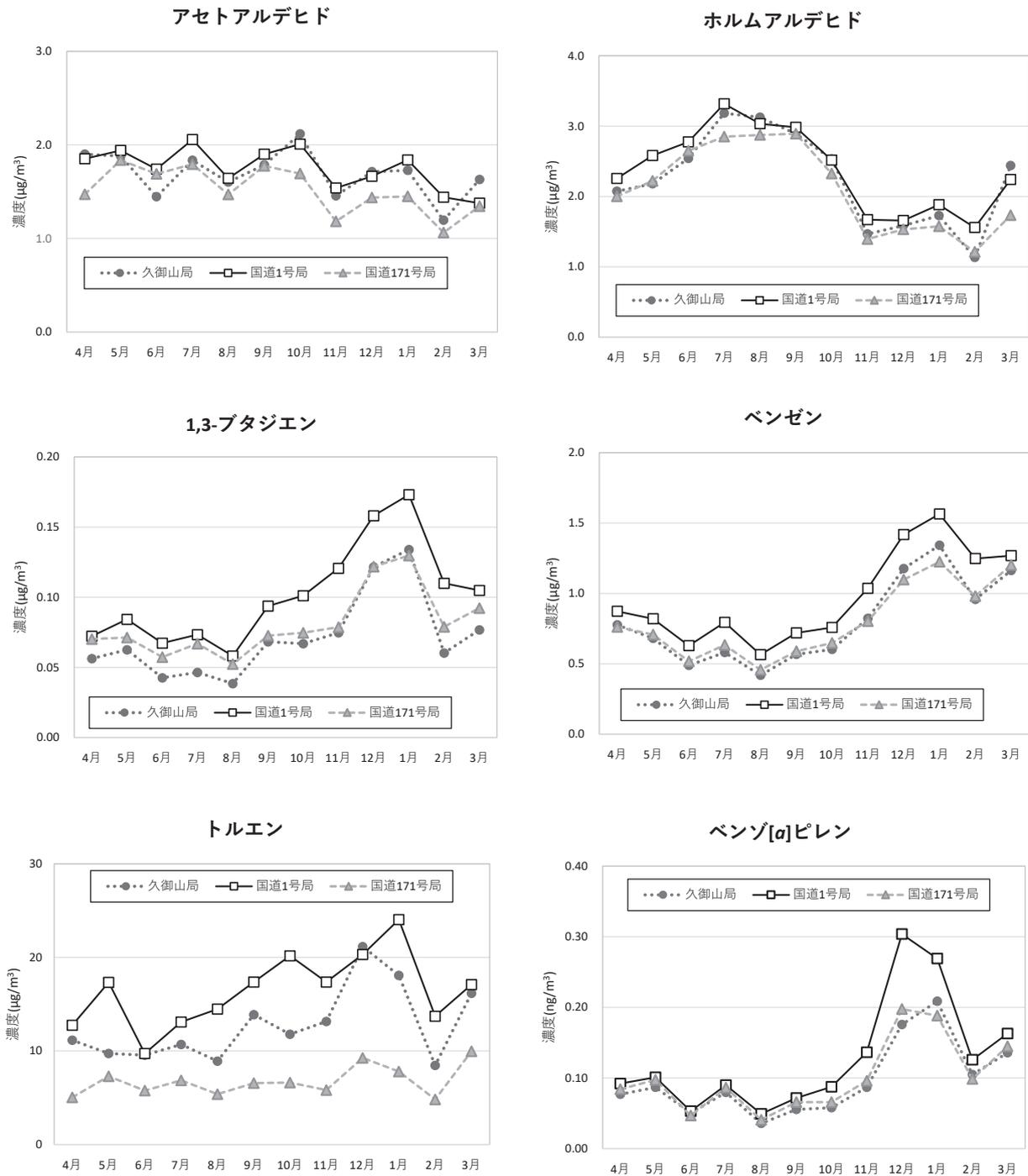


図3. 対象物質の各測定地点における2011年度から2022年度の月平均大気中濃度

た。アルデヒド類については、今回解析した期間において減少は見られなかったが、平澤ら²⁾の報告で2001-2005年度の平均濃度は、アセトアルデヒド2.3-2.4 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ 、ホルムアルデヒド2.6-3.3 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ となっており、長期的に見ればアルデヒド類についても大気汚染状況は改善していると考えられる。トルエンについては、今回解析した2011年度から測定を開始しており、過去に対応するデータがなく、年度による変動が大きく推移していたため、一貫した傾向は掴めなかった。トルエンは、京都府内でも排出量の多い物質であるため、今後も継続的に動態を把握していく必要があると考える。

季節変動について、今回の解析では全ての物質に対して測定月の有意な効果が見られ、大きく2つの傾向に分かれた。1つ目はアルデヒド類に見られた夏季に高濃度になり冬季に低濃度になる傾向で、2つ目は、逆に夏季に低濃度になり冬季に高濃度になる傾向で、アルデヒド類以外の全ての物質で見られた。このような傾向は、これまで京都府で確認されているものと一致し^{1,2)}、さらには、京都府だけでなく他の地域でも報告されている⁵⁾。この背景には、アルデヒド類が大気中で炭化水素から光化学反応で二次生成されることが関係していると考えられる。大気中でVOC等の物質は光

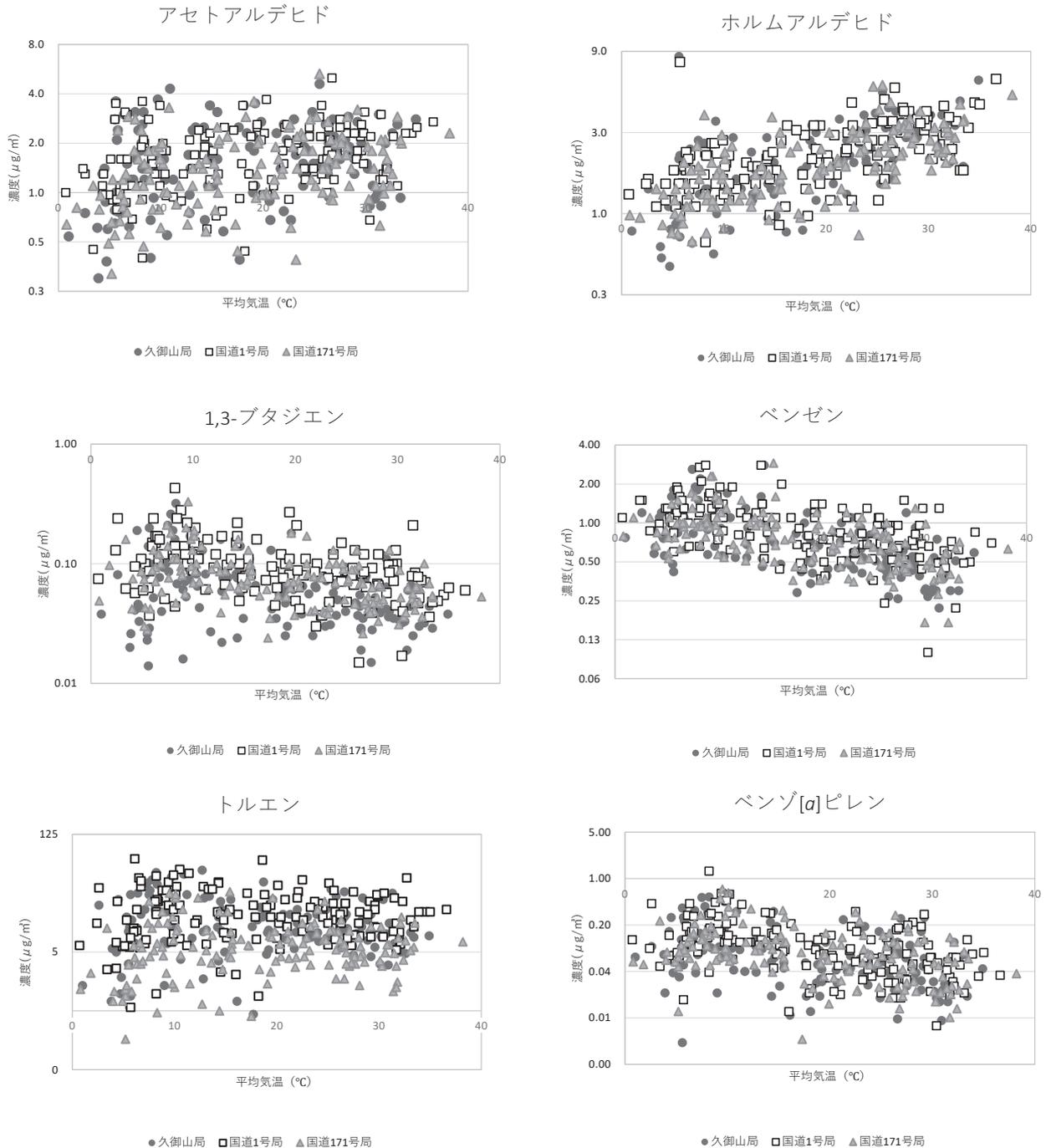


図4. 対象物質の2011年度から2022年度の大気中濃度（対数目盛）と日平均気温の関係。

化学オキシダントの一種であるオゾンにより酸化され、アルデヒド類を生成することが知られている⁶⁾。このことから、夏季には、光化学反応によって1,3-ブタジエン等の物質は消費されて減少し、逆に、アルデヒド類は生成され大気中濃度が増加したものと考えられる。また、この反応は気温が高い時期により活発に発生したと推察される。

本稿では季節性を表す変数として気温を説明変数として用いて解析したが、この方法では気温と交絡する諸要因の効果を除去できないため、結果の解釈については、直接的な因果関係を示さない点に留意する必要がある⁷⁾。今回の場合、光化学反応等を考慮すれば日射量等の気象要因が交絡要因として影響している可能性がある。しかし、気象要因としてモデルに気温を説明変数として組込むことにより、季節の影響をある程度線形的に捉えることが可能になったと考える。

今回の逸脱度分析において、 F 値は全ての効果を含むモデルから対象の効果を除いた時に生じる残差の変化量を用いて算出されており、残差が増えると大きくなる性質がある。残差とはデータの観測値とモデルの予測値との差分であるため、それが増えるということはモデルの予測精度が低くなることを表す。そのため、 F 値が極端に大きいということは、対象の効果を除いた際にモデルの予測精度が著しく低くなることを意味し、対象の効果がモデルにおいて重要であると捉えることができる。

今回の結果では、大半の物質は気温の F 値が比較的大きい傾向が見られたため、これらの物質の大気中濃度は、他の要因よりも気温に関連する気象要因の影響を強く受けて変動していたことが推察される。一方で、トルエンだけは測定地点の効果の F 値が大きいという特徴が見られたため、トルエンの大気中濃度は地点による変動が大きいことがわかる。表2の推定値からも、一番高濃度であった国道1号局は、一番低濃度の国道171号局の約2.5 ($\approx e^{0.91}$)倍となり、その変動の大きさが示されている。

有害大気汚染物質のモニタリングは全国的な枠組みで実

施され、膨大なデータの蓄積がある。しかしながら、異なる環境条件下において測定されているため、それらに起因する変動により、本来把握すべき発生源等の影響を過大評価もしくは過小評価している可能性があるため、一般化線形モデルをはじめとする統計モデルを用いて、大気中濃度と各要因との関係性について詳細な解析を進めることにより、大気汚染物質の動態に関する理解が進み、対策がより一層推進されることが期待される。

謝 辞

本モニタリング業務に係る試料採取や分析業務に携わってこられた数多くの職員の皆様にご心より感謝いたします。

引用文献

- 1) 中西貞博, 濱田幸子, 中西理恵, 古山和徳, 河村秀一, 都築英明, 関誠一, 山川和彦. 2005. 京都府における有害大気汚染物質濃度の経年変化と現状について. 京都府保健環境研究所年報, 50, 26-32.
- 2) 平澤幸代, 辻昭博, 日置正, 齋藤義弘. 2016. 京都府における大気中揮発性有機化合物及びアルデヒド類濃度の経年変化. 京都府保健環境研究所年報, 61, 61-67.
- 3) 大東健太郎. 2010. 線形モデルから一般化線形モデル(GLM)へ. 雑草研究, 55(4), 268-274.
- 4) 今泉智通. 2010. Rを用いた一般化線形モデル(仮説検定編): 割合データを例に. 雑草研究, 55(4), 275-286.
- 5) 房家正博, 雨谷敬史, 大浦健, 杉山智彦, 杉崎充, 松下秀鶴. 2001. 富士市における有害大気汚染物質濃度の調査結果について(1)—各種有害化学物質の汚染状況, 相関性および大気常時監視局の地域代表性についての検討—. 環境化学, 11(3), 525-537.
- 6) 秋元肇. 2014. 大気反応化学. 朝倉書店, 東京.
- 7) 竹下和貴, 林岳彦, 横溝裕行. 2022. 哺乳類研究における非実験データセットに対する回帰分析の適用について. 哺乳類科学, 61(1), 69-79.