

宮城県保健環境センター課題評価調書

○事前評価

整理番号 経-新1 微生物部

宮城県におけるカンピロバクター属菌の疫学調査及び検査法の検討

..... 1

○事後評価

整理番号 経-終1 微生物部

下水等に流入する腸内細菌科細菌の薬剤耐性化に関する研究

..... 7

整理番号 経-終2 生活化学部

LC-MS/MSによる麻痺性貝毒分析法の検討

..... 16

整理番号 経-終3 水環境部

公共用水域におけるPFOS及びPFOAの調査

..... 25

課題評価調書(事前評価)

令和 5年 6月20日

評価の種類	事前評価		
整理番号	経新1	研究課題名	宮城県におけるカンピロバクター属菌の疫学調査及び検査法の検討
研究分野	食品衛生、生活衛生の安全対策に関する研究	研究区分	経常研究
担当部名	微生物部	研究代表者名	矢崎 知子
計画立案 課室・公所名	保健環境センター		
共同研究機関 ・協力機関	公益社団法人 宮城県医師会健康センター	研究期間	令和6年～7年度
研究経費	総額	936千円	

1 研究目的・計画等

(1) 研究目的・背景

カンピロバクターによる食中毒は、近年、細菌性食中毒の中で最多であり、令和4年における細菌性食中毒事件数の72%を占めている。また、県内においても散发下痢症患者から多数分離されており、平成27-29年度に実施された厚生労働科学研究補助金(食品の安全確保推進研究事業)「食鳥肉におけるカンピロバクター汚染のリスク管理に関する研究」では、アクティブサーベランスデータを用いた推定により、宮城県の食品由来下痢症疾患の患者数推定結果は、食中毒患者報告数より大幅に多いことが明らかにされている。

流通鶏肉の4~6割がカンピロバクターに汚染されているとの報告があり、本県でのモニタリングにおいても国産鶏肉の約75%、輸入鶏肉の約25%からカンピロバクターが検出されている。しかしながら、食中毒発生時に鶏肉を原因食材と断定するには、喫食した鶏肉からの分離株と患者由来株の同一性を明らかにする必要がある。

そこで、本調査研究では、県内に流通する鶏肉から分離した菌株と散发下痢症患者由来株(検査機関より分与)を精査、比較することにより、県内でのカンピロバクター感染の地域や時期による実態を調査し、流通鶏肉との関連を明らかにすることを目的とする。さらに、菌株の同一性を確認する手法として用いる、血清型別試験や遺伝子型試験法について、新たな方法の試行・導入により、検査精度の向上及び検査時間の短縮を検討し、食中毒発生時の迅速な対応に役立てる。

(2) 研究計画

・令和6年度

- ① 県内流通鶏肉(50件程度)からカンピロバクター属菌を分離同定する。なお、カンピロバクターの検出率を上げるため、主に国産鶏肉を調査対象とし、食中毒事例や患者報告の多い春から秋(6月

～10月)に調査を実施する。また、調査が網羅性を持つよう、可能な限り流通の異なる鶏肉を偏りなく調査対象とする。菌株分離状況により、調査件数の追加や買い上げ先の変更等を行う。

- ② 散発下痢症患者及び①より分離されたカンピロバクター属菌のうち *Campylobacter jejuni* (*C. jejuni*) について PCR 法による血清型別試験 (改良 Penner PCR 法) を実施し、従来法との比較を行う。

・令和7年度

- ① *C. jejuni* 分離株について遺伝子型別試験等を実施する。
- ② 遺伝子型別試験については *flaA* 遺伝子等をターゲットとしたシーケンスによる遺伝子型別法を試行し、従来法 (PFGE 法) との解析結果を比較する。
- ③ 必要に応じて、流通鶏肉からのカンピロバクター属菌の分離同定を追加で実施する。
- ④ 菌株精査の結果から、県内のカンピロバクター感染の実態、及び流通鶏肉との関連を考察する。

(3) 期待される成果と波及効果

- ・鶏肉及び患者からの分離株の血清型別試験及び遺伝子型別試験を行うことにより、居住地域、時期によるカンピロバクター感染の実態、及び流通鶏肉との関連を把握することが可能となる。
- ・得られた結果について、保健所、食品等事業者、県民へ還元することにより、鶏肉由来のカンピロバクター感染発生予防に対する知識の普及・啓発に役立てることが可能となる。
- ・血清型別試験に改良 Penner PCR 法を導入して検査精度の向上と検査時間の短縮を図ることにより、食中毒事件調査時に原因食材推定の根拠となる情報を迅速に提供することが可能となる。
- ・遺伝子型別試験について、現法の PFGE 法に替わる手法を導入することができる。

(4) 使用する主な分析機器

ふ卵器、サーマルサイクラー、パルスフィールドゲル電気泳動システム、DNA シーケンサー

2 県の施策体系と研究課題との関連

(1) 施策体系

本研究は、食の安全性の確保のため食品衛生に関する施策として掲げられた「令和5年度宮城県食品衛生監視指導計画」の「第3重点取組 2 食中毒の防止 (2)」及び「第4監視指導 6 食中毒等健康被害発生時の対応 (1)」に関連し実施するものである。即ち「県内に流通する食品を対象に、食中毒の病因物質となりうるカンピロバクター・ノロウイルス、サルモネラ等による汚染状況を調査し」「食中毒の発生を未然に防止する」ことに加え、「食中毒事案の原因調査等については専門的な知見を踏まえて実施する」に基づくものである。

(2) 施策と研究課題との関連

カンピロバクターによる食中毒事例は宮城県でも例年発生しており、散発下痢症患者からのカンピロバクター検出も多く認められている。県内に流通する鶏肉のカンピロバクター侵淫状況に加え、鶏肉からの分離株と患者由来株の関連を明らかにすることにより、保健所における衛生指導時の根拠、及び消費者や食品等事業者への注意喚起を促すことができる。さらに、検査精度を向上させ、検

査時間を短縮することで、食中毒発生時の迅速な対応へ役立てることができる。

(3) 担当課名

食と暮らしの安全推進課

3 従事時間割合

		業務全体に占める当該研究の従事割合 (%) (従事日数 (日/年))
研究代表者	矢崎 知子	15 % (38 日/年)
共同研究者	山口 友美	10 % (25 日/年)
	工藤 剛	5 % (13 日/年)
	木村 葉子	5 % (13 日/年)
	山谷 聡子	12 % (30 日/年)
当該研究に必要な延べ従事日数 (人・日/年)		119 人・日/年

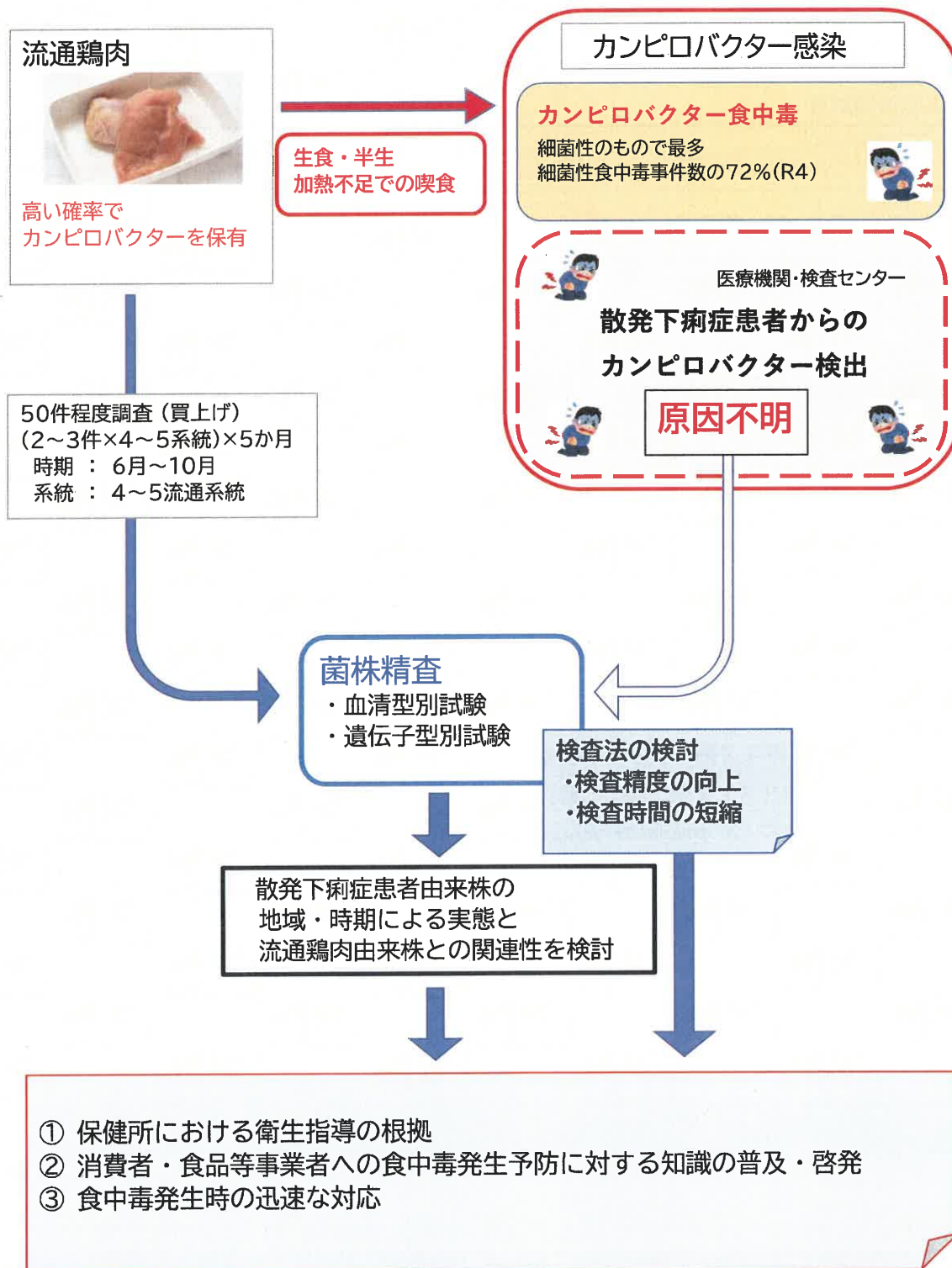
4 関係文献・資料名

- ・小林妙子他、宮城県保健環境センター年報 34 : 47-51、2016
- ・平成 27-29 年度 厚生労働科学研究補助金 (食品の安全確保推進研究事業) 「食鳥肉におけるカンピロバクター汚染のリスク管理に関する研究」
- ・今野貴之他、国内の *Campylobacter jejuni* 血清型別に対応した改良 Penner PCR 型別法 Jpn. J. Food Microbiol.、 38(3)、 123-128、 2021
- ・Qian Zhang 他 High-Throughput *flaA* Short Variable Region Sequencing to Assess *Campylobacter* Diversity in Fecal Samples From Birds. Front Microbiol. 2018 Sep 25;9:2201.

5 添付資料

別添のとおり

宮城県におけるカンピロバクター属菌の疫学調査及び検査法の検討



所要額積算内訳

保健環境センター (単位:千円)

調査研究 課題名	宮城県におけるカンピロバクター属菌の疫学調査および検査法の検討 (2024)	部名	微生物部
節区分	計画額	算出基礎	
8 旅費	50	日本食品微生物学会 (R6東京:2泊3日)	@ 49,770 × 1人 49,770
10-1 需用費	468	培地、免疫血清、試薬等	
		発育サプリメント(カンピロバクター増菌用)	@ 11,000 × 1箱 11,000
		CCDA培地(カンピロバクター分離用)	@ 25,300 × 1本 25,300
		CCDAサプリメント(カンピロバクター分離用)	@ 23,000 × 1箱 23,000
		血液寒天基礎培地No.2(カンピロバクター分離用)	@ 18,000 × 1本 18,000
		カンピロバクター免疫血清	@ 84,000 × 1箱 84,000
		カンピロバクター感作血球調整試薬	@ 25,410 × 1箱 25,410
		PCR、遺伝子解析用試薬費用	
		Multiplex PCR Assay kit 100回用	@ 40,000 × 2箱 80,000
		プライマー	@ 5,000 × 27種 135,000
		鶏肉買い上げ	@ 400 × 50パック 20,000
			0
			0
			0
		ガソリン代	@ 155 × 20L 3,100
			計 424,810
			税込10% 467,291
13 使用料	0	@ × 往復	0
		@ × 往復	0
		@ × 往復	0
		計	
18 負担金	10	日本食品微生物学会	@ 10,000 × 1人 10,000
計	528		

所要額積算内訳

保健環境センター（単位：千円）

調査研究 課題名	宮城県におけるカンピロバクター属菌の疫学調査および検査法の検討 (2025)	部名	微生物部
節区分	計画額	算出基礎	
8 旅費	53	(1)日本臨床微生物学会 (R7) 横浜で試算	@ 53,000 × 1人 53,000
10-1 需用費	342	培地、免疫血清、試薬等 血液寒天基礎培地No.2(カンピロバクター分離用)	@ 18,000 × 1本 18,000
		PCR、シーケンス、遺伝子解析用試薬費用 AutoSeq G-50 50本入り	@ 35,800 × 2箱 71,600
		MicroSpin™ S-300 HR Columns 50本	@ 40,000 × 1箱 40,000
		BigDye™ Terminator v3.1 Cycle Sequencing Kit 100反	@ 150,000 × 1箱 150,000
		パルス用制限酵素 Kpn1	@ 25,000 × 1箱 25,000
		日本臨床微生物学会抄録代	@ 2,000 × 1 2,000
		鶏肉買い上げ	@ 400 × 10パック 4,000
			計 310,600
			税込10% 341,660
13 使用料	0	@ × 往復	0
		@ × 往復	0
		@ × 往復	0
			計 0
			0
18 負担金	13	日本臨床微生物学会負担金	@ 13,000 × 1人 13,000
計	408		

課題評価調書(事後評価)

令和5年10月24日

評価の種類	事後評価		
整理番号	経-終1	研究課題名	下水等に流入する腸内細菌科細菌の薬剤耐性化に関する研究
研究分野	感染症予防対策に関する研究	研究区分	経常研究
担当部名	微生物部	研究代表者名	山口 友美
計画立案課室・公所名	保健環境センター		
共同研究機関・協力機関	中南部下水道事務所	研究期間	令和3年度～4年度
研究経費	総額	468千円	

1 研究目的・背景

薬剤耐性菌は臨床や家畜・農業分野における広範囲な抗菌薬の過剰使用により、ヒトのみならず、家畜や食肉への広がりも懸念されている。さらに、薬剤耐性菌を保菌しているヒトや家畜の排泄物を介して環境中に拡散すると考えられている。

2016年4月に公表された「薬剤耐性アクションプラン」においても、ヒト、動物、食品及び環境等から分離される薬剤耐性菌に関する統合的な「ワンヘルス動向調査」を実施することが明記されるなど、薬剤耐性対策には医療や獣医療、畜水産、食品衛生などの分野における一体的な取組(ワンヘルスアプローチ)が重要となる。

当所においても、平成29～30年度に「市中における薬剤耐性腸内細菌科細菌の保菌状況調査」を実施し、検査対象者の13.6%が第3世代セファロスポリン系薬に耐性である腸内細菌科細菌(ESBL産生菌やAmpC産生菌)を保菌していることを明らかにした。さらに、平成30～31年度には「食品に由来する腸内細菌科細菌の薬剤耐性化に関する研究」を実施しており、食品における薬剤耐性菌の汚染実態についても調査を行った。

そこで本研究では、「ワンヘルス動向調査」の対象となるヒト、動物、食品及び環境のうち、調査をまだ実施していない環境(特に下水流入水)について、薬剤耐性腸内細菌科細菌の汚染実態を調査する。

2 研究成果

(1) 成果

県内の下水処理施設において、令和3年4月から令和4年12月まで月1回下水流入水を採取し、薬剤耐性菌の中でも近年特に問題視されている「カルバペネマーゼ産生腸内細菌科細菌(CPE)」を対象として菌分離を実施したところ、64菌株が分離された。

1回の検査で分離されたCPEは0～7株であり、分離されなかったのは令和4年10月及び11月の2

検体のみであった。菌種の内訳は、*E. coli*が17株(27%)、*E. roggkampii*が11株(17%)、*K. variicola*が7株(11%)、*E. asburiae*、*E. ludwigii*、*K. oxytoca*、*R. ornithinolytica*がそれぞれ4株(6%)、その他が7菌種13株であった。検出されたカルバペネマーゼ遺伝子は、NDM型が最も多く43株(67%)、GES型が20株(31%)、KPC型が1株(2%)で、IMP型、OXA-48型及びVIM型は検出されなかった。さらにシーケンス解析により、検出されたカルバペネマーゼ遺伝子のタイピングを実施したところ、NDM型ではNDM-5が最も多く38株であり、これ以外に検出されたNDM型はNDM-9(4株)とNDM-1(1株)のみであった。GES型ではGES-24が13株と最も多く、これ以外にはGES-5(4株)とGES-5-like(3株)が検出された。GES-5-likeは、GES-5とアミノ酸配列が2か所異なっており、新しいタイプの耐性遺伝子と考えられたため、DDBJ(DNA Data Bank of Japan)へ塩基配列の登録を行い(Accession No: LC763412)、NCBI(National Center for Biotechnology Information)により新規のGES型耐性遺伝子としてアレル番号「GES-58」が付与された。

さらに、CPEとして分離された64株の薬剤感受性試験を行ったところ、すべての株が6薬剤以上に耐性を示し、10薬剤以上に耐性である株は58株(91%)、15薬剤以上は29株(45%)であった。保有遺伝子型別に耐性と判定された薬剤数を比較すると、GES型の株はすべて6~12薬剤に耐性であり、NDM型では11~18薬剤に耐性、1株のみ検出されたKPC型は14薬剤に耐性であった。NDM型の中には、19薬剤中18薬剤に耐性を示す株も7株存在しており、NDM型の株がGES型の株より耐性となる薬剤が多いことが確認された。また、GES型、NDM型ともにCTX-M同時保有株は保有していない株に比べ、耐性薬剤数が多い傾向がみられた。

今回の研究では、当初の想定を上回る株数のCPEが検出されたことにより、ヒトや食品由来として検出されていたESBL産生菌に関しては、下水における解析を十分に行うことができなかったが、本研究で検出した下水由来のESBL産生菌については約200株保存しており、今後、これらの株を解析することによってヒトや食品由来株との比較・考察をしていきたい。

また、宮城県内(仙台市を除く)においては、病原体サーベイランスを開始してから患者由来株でCPEは検出されていない。下水流入水からIMP型CPEが検出されなかった点においては、宮城県における患者由来株の状況と同様の結果であったと考える。しかし、NDM型やGES型が検出された点については、サンプリング箇所を増やすこと、調査を継続して行うことで、状況を見極めていきたいと考えている。

併せて、患者分離株の検査は病原体サーベイランスとして今後も継続して実施していくが、このサーベイランスは、カルバペネム耐性腸内細菌科細菌感染症(CRE)が感染症の原因菌と疑われ5類感染症として届出があった場合に行われるものであり、無症状の保菌者についてはその手段がなく調査することは難しい。そこで、現在どのようなCPEが潜在しているのかを把握するためには、下水流入水を対象とした調査が必要であり、特にCPEについては、未知の耐性遺伝子も多いと考えられることから継続的な調査を実施し、今後発生し得るCRE感染症に備える必要があると考える。

(2) 成果の活用と波及効果

CPEは近年注目されている薬剤耐性菌の中でも、医療機関や環境中での拡散が最も懸念される耐性菌である。今回の研究で、宮城県内の下水中に存在するCPEが保有するカルバペネマーゼ遺伝子の種類を調査したところ、国内のCRE患者由来株から最も多く検出されているIMP型(国内型CPE)は検出されなかった。2017年より当部で実施しているCRE病原体サーベイランスにおいても、2023年3月末現在、宮城県(仙台市を除く)内のCRE患者由来株からCPEは検出されておらず、これらのことから、IMP型

CPEは宮城県内ではそれほど拡散していない状況が推測できる。しかし、国内の患者由来株では数%しか検出されていないNDM型(海外型CPE)が67%と多く検出された結果は、すでに県内にNDM型CPEが浸淫していることを示しており、これらの結果を県民及び医療機関等への還元することで、CPEに対する注意喚起を促すことができると考える。さらに、国内では分離例の少ないNDM型やGES型の薬剤感受性試験の結果について公表することにより、今後発生する可能性のあるNDM型及びGES型CPE感染症患者の治療に有用な情報となるものと考ええる。

(3) 使用した主な分析機器

- ・PCR装置及び電気泳動装置
- ・DNAシーケンサー

3 県の施策体系と研究課題との関連

(1) 施策体系

「宮城県感染症予防計画」の「第2 感染症の発生の予防のための施策」、「第3 感染症のまん延の防止のための施策」に関連して実施するものである。さらに、「第6 感染症及び病原体等に関する調査及び研究」、「2 調査及び研究の推進」、「(3) 地方衛生研究所は、感染症対策の調査・研究、試験検査、感染症及び病原体等に関する情報の収集、分析及び公表を行い、感染症及び病原体等の技術的かつ専門的中核機関としての役割を果たす。」とした方針に基づくものである。

(2) 施策と研究課題との関連

カルバペネム耐性腸内細菌科細菌(CRE)は2014年9月に感染症法に基づく5類全数把握対象疾患として新たに追加されるなど、現在最も注目されている薬剤耐性菌の一つである。宮城県(仙台市を含む)では、毎年10~30例程度のCRE感染症が報告されているが、生活環境や動物における保菌状況は不明である。「宮城県感染症予防計画」の中で、感染症の発生の予防やまん延防止のための対策においては、事前対応型行政の構築を推進しており、CREをはじめとする薬剤耐性菌の拡散防止を県民に促すためには本研究が必要である。

(3) 担当課名

疾病・感染症対策課

4 研究計画

(1) 当初の研究計画

・令和2年度

下水流入水及び動物関連施設の排水を対象に以下の検査を実施する。

- ・カルバペネマーゼ遺伝子の検出及びカルバペネム耐性菌の分離・同定
- ・ESBL産生菌及びAmpC産生菌の分離・同定・耐性遺伝子の検出

・令和3年度

令和2年度の調査を継続して行うとともに、耐性菌の遺伝子型別等の詳細な検査を実施する。

(2) 研究計画変更の内容と経緯

令和2年度から調査を実施する予定であったが、令和2年2月より新型コロナウイルス感染症に係るPCR検査業務量が増加したため、令和2年度は調査を中止し、令和3～4年度の2年間で調査を実施した。

また、食肉衛生検査所及び動物愛護センターにおいて、施設の排水を採取し検査を行うこととしていたが、新型コロナウイルス感染症に係るPCR検査に対応する必要があること、下水流入水のみでも調査に十分なデータを得ることが可能であると考えられることから、両施設での調査は見送ることとした。

5 従事時間割合

		業務全体に占める当該研究の従事割合（％） （従事日数（日／年））	
		研究計画時	期間中実績（年平均）
研究代表者	山口 友美（ ）	15％（ 38 日/年）	20％（ 50 日/年）
共同研究者	矢崎 知子（ ）	10％（ 25 日/年）	10％（ 25 日/年）
	工藤 剛（後藤 郁男）	10％（ 25 日/年）	12％（ 30 日/年）
	水戸 愛（ ）	10％（ 25 日/年）	6％（ 15 日/年）
	（ ）	％（ 日/年）	％（ 日/年）
当該研究に要した延べ従事日数 （人・日／年）		113人・日/年	120人・日/年

6 関係文献・資料等

(1) 関係文献・資料名

- ・薬剤耐性（AMR）対策アクションプラン（2016-2020） 国際的に脅威となる感染症対策関係閣僚会議 平成28年4月5日
- ・薬剤耐性ワンヘルス動向調査 年次報告書2018 平成30年11月29日 薬剤耐性ワンヘルス動向調査検討会
- ・Gomi R、 et al.: Characteristics of Carbapenemase-Producing Enterobacteriaceae in Wastewater

Revealed by Genomic Analysis. Antimicrobial agents and chemotherapy 2018 Apr 26; 62(5).
pii:e02501-17

(2) 研究成果の外部への発表の状況

- ・第38回宮城県保健環境センター研究発表会 令和5年3月3日 Web開催

7 添付資料

別添のとおり

下水等に流入する腸内細菌科細菌の薬剤耐性化に関する研究

【背景と目的】

薬剤耐性菌対策にはヒトや動物, 環境などの垣根を越えた取り組みが必要である…ワンヘルス・アプローチ



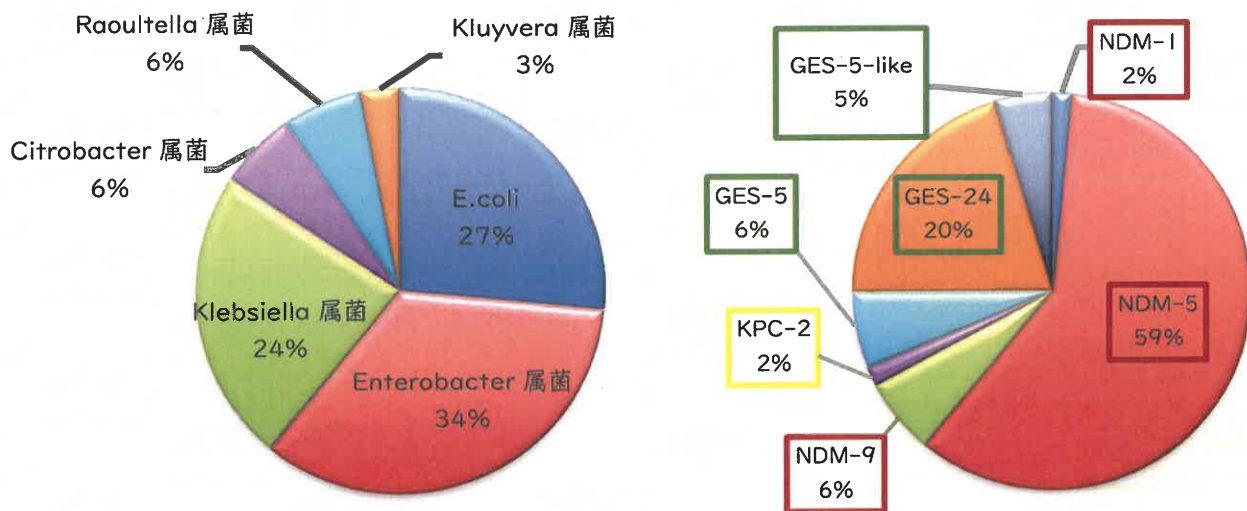
過去の研究ではヒト及び食品における薬剤耐性菌の状況を明らかにしており, 今回は環境(特に下水中)における薬剤耐性菌について現状を調査する



厚生労働省 薬剤耐性(AMR)対策アクションプラン (2016-2020)より引用

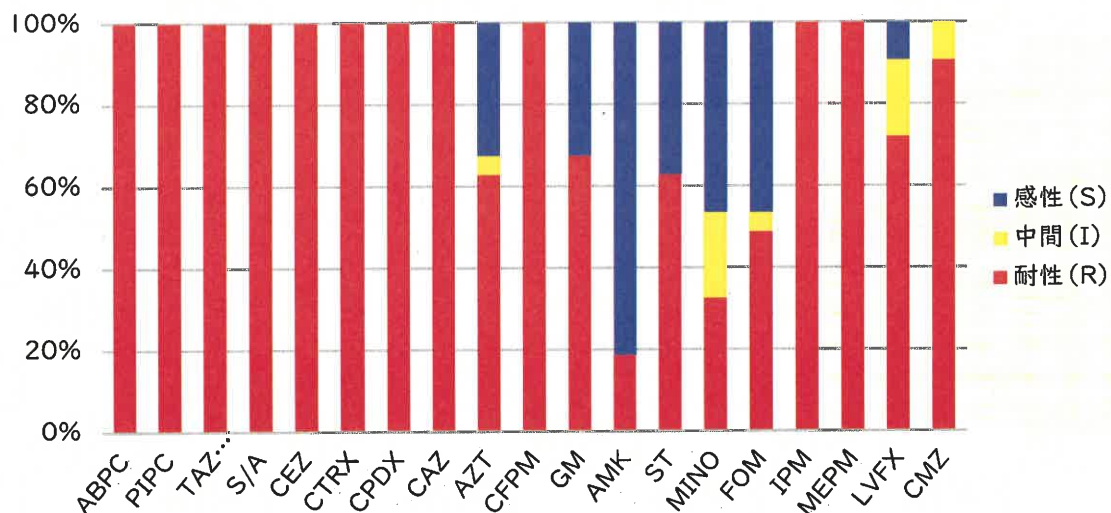
【研究成果】

1. 下水中に存在するカルバペネマーゼ産生腸内細菌科細菌(CPE)の菌種と保有耐性遺伝子



2. CPE (NDM型) の薬剤耐性状況

(n=43)



所要額積算内訳

保健環境センター (単位:千円)

調査研究 課題名	下水等に流入する腸内細菌科細菌の薬剤耐性化に関する研究(2020)			部名	微生物部			
	計画額	最終予算額	決算額		算出基礎			
8 報償費	0	0	0	@	×	時間	0	
9 旅費	0	0	0	@	×	人	0	
11-1 需用費	222	222	217					
				1. 分離培養				
				@	5,350	×	3 個	16,050
				@	16,300	×	2 個	32,600
				@	4,500	×	2 個	9,000
				2. 薬剤感受性試験				
				@	1,800	×	1 個	1,800
				@			1 個	0
				3. 遺伝子検査				0
				@	30,600	×	3 個	91,800
				@	5,600	×	2 個	11,200
				@	5,750	×	2 個	11,500
				@	11,400	×	2 個	22,800
							計	196,750
							税込10%	216,425
計	222	222	217					

所要額積算内訳

保健環境センター (単位:千円)

調査研究 課題名	下水等に流入する腸内細菌科細菌の薬剤耐性化に関する研究 (2021)			部名	微生物部	
	計画額	最終予算額	決算額			算出基礎
7 報償費	0	0	0	@ × 時間	0	
8 旅費	50	50	0	日本感染症学会東日本地方会(2泊3日) ※新型コロナウイルス感染症蔓延のため参加せず	@ 49,020 × 0 人	0
10-1 需用費	2	2	0	日本感染症学会東日本地方会抄録代	@ 2,000 × 0 冊	0
18 負担金	10	10	0	日本感染症学会東日本地方会負担金	@ 10,000 × 0 人	0
計	62	62	0			

所要額積算内訳

保健環境センター (単位:千円)

調査研究 課題名	下水等に流入する腸内細菌科細菌の薬剤耐性化に関する研究 (2022)			部名	微生物部	
	計画額	最終予算額	決算額		算出基礎	
7 報償費	0	0	0		@ × 時間	0
8 旅費	73	73	51	日本臨床微生物学会(2泊3日)	@ 50,500 × 1人	50,500
10-1 需用費	206	206	190	1. 分離培養		
				ETEST イミペネム	@ 11,700 × 2個	23,400
				ETEST メロペネム	@ 11,700 × 1個	11,700
				カジトン培地	@ 4,300 × 2個	8,600
				ドライプレート	@ 40,500 × 1個	40,500
				2. 遺伝子検査		
				QIAGEN Multiplex PCR Plus Kit	@ 29,650 × 2個	59,300
				プライマー	@ 5,650 × 1個	5,650
				プライマー	@ 5,700 × 1個	5,700
				プライマー	@ 5,750 × 1個	5,750
				プライマー	@ 5,850 × 1個	5,850
				プライマー	@ 5,900 × 1個	5,900
					計	172,350
					税込10%	189,585
18 負担金	18	18	10	日本臨床微生物学会負担金	@ 10,000 × 1人	10,000
計	297	297	251			

課題評価調書(事後評価)

令和5年10月24日

評価の種類	事後評価		
整理番号	経-終2	研究課題名	LC-MS/MSによる麻痺性貝毒分析法の検討
研究分野	食品衛生、生活衛生の安全対策に関する研究	研究区分	経常研究
担当部名	生活化学部	研究代表者名	新貝達成
計画立案 課室・公所名	保健環境センター		
共同研究機関 ・協力機関		研究期間	令和2年度～令和4年度
研究経費	総額	1,692千円	

1 研究目的・背景

動物性自然毒のうち、代表的なものとして二枚貝における下痢性貝毒や麻痺性貝毒が挙げられる。これらの検査法については、これまでマウスバイオアッセイ(以下MBA)により行われてきたが、平成27年から下痢性貝毒のみ機器分析法が認められ、当所においても分析法を確立した。一方、麻痺性貝毒は、毒成分に多数の同族体が存在するうえ、サキシトキシンが「化学兵器の禁止及び特定物質の規制等に関する法律」で特定物質に指定されているなど課題が多いことから、未だにMBAが国で定める公定法であり、機器分析法は認められていない。しかし、諸外国では動物愛護の観点からMBAに変わる検査法の開発が進められ、EUなどでは機器分析法を公定法として採用することを検討し、異性体や類縁体の毒性等価係数(TEF)もCODEX規格として採用される見通しとなっている。

また、日本国内でも、イムノクロマト法はスクリーニング検査の手法として、LC-MS/MS法は個別定性および定量により、MBAでは得られない毒成分の組成比などの情報が得られる方法として報告例が増えつつある。

麻痺性貝毒は、主にアレキサンドリウム属のプランクトンにより2～5月により毒化し発生するが、プランクトンは6月頃にシストになり海底で過ごした後、翌年の2月頃に発芽して再びプランクトンになるというサイクルをもっている。宮城県沿岸では、東日本大震災前の3年間にムラサキガイの麻痺性貝毒は発生していなかったが、2012年以降は毎年のように発生しており、今後も貝毒の発生しやすい状況が継続する可能性を示唆している。特に2018年度には、季節を問わず年間を通して、規制値(4MU/g)を超えて検出されるなど、養殖業に甚大な被害を及ぼしている。

さらに、平成31年4月10日には、厚生労働省から「麻痺性貝毒に係る監視指導の強化について」水産部局と連携して出荷規制の徹底を図るとともに、事故の発生防止をお願いするといった内容の通知が発出されている。

MBAによる検査では、マウスの購入に事前の手配を必要とし、少なくとも数日を要する。さらに、マウスを検査のための適正体重に管理するために、最低でも1～2日間訓養する必要があり、緊急性を伴う

場合には大幅なタイムラグが生じる。

そこで、MBA の補完的役割を果たす LC-MS/MS による機器検査法を確立し、麻痺性貝毒による食中毒発生時の検査に備えることを目的とする。

2 研究成果

(1) 成果

・定量については、麻痺性貝毒 12 成分 (GTX1、GTX2、GTX3、GTX4、GTX5、GTX6、dcGTX2、dcGTX3、C1、C2、dcSTX、NEO) 及びフグ毒 (TTX) の合計 13 成分、定性については、上記 13 成分に加え C2 の代謝物 3 成分 (M1、M3、M5-HA) の合計 16 成分の一斉分析法を確立した。

・規制値 (4MU/g) 付近で毒化したアカガイ及び毒化したホタテガイを分析した結果、アカガイについては、麻痺性貝毒 12 成分を分析することで、機器分析と MBA の毒力値が概ね一致し、機器分析の有用性が示された。ホタテガイについては、やや「機器分析値 < MBA 値」の傾向が認められ、M-toxin 等の未だ毒力が明らかにされていない成分の影響が示唆されたことから、今後、機器分析法へ移行する際は、これら毒性未知成分の毒力評価が必要であると考えられた。

・MBA では得られない毒成分の含有量、構成比及びそれらの成分の経時変化を明らかにした。ホタテガイは GTX1、GTX2 が主成分を占め、採取期間中経時的に NEO が増加した。また、8 月下旬以降の一部の試料で TTX が微量検出された。アカガイについては、GTX2 が主成分で 40% 程度を占め、次いで GTX3 が占めた。採取期間中経時的に NEO が増加した。TTX は期間中全く検出されなかった。

・水産技術総合センターとホヤの麻痺性貝毒の器官偏在性に関する共同研究を行い、毒化したホヤの肝臓、腸管内容物、腸、筋肉及び鰓の分析を行った結果、主に肝臓に麻痺性貝毒が蓄積していることを明らかにした。

(2) 成果の活用と波及効果

・アカガイについては機器分析値と MBA 値がほぼ一致し、MBA の代替法としての機器分析法の有用性が示された。一方で、ホタテガイにおいては毒性未評価の代謝物 (M-toxin 等) の毒力寄与の可能性も示唆され、機器分析法の課題も明らかにした。これらの知見は、学会発表及び年報等により全国の衛生研究所と共有していることから、今後、麻痺性貝毒に関する研究及び機器分析法が公定法へ移行する際のバックデータとして活用されることが見込まれる。

・麻痺性貝毒の機器分析法を確立し、本研究により、M-toxin 等の毒性未知成分の毒力評価が必要であるといった知見も得られた。これらを踏まえ、今後国による公定法の検討が考えられるが、麻痺性貝毒分析の公定法が機器分析へ移行した際には、いち早く対応できる体制が整備できた。これにより、麻痺性貝毒を原因とする食中毒が発生した際には、迅速な検査結果の提供や、化学的評価による原因究明が可能となり、本県の施策である、食の安全安心の確保に寄与することができるようになった。

・機器分析によるモニタリング体制の構築により、宮城県沿岸での毒化の状況把握にも貢献できること

が期待される。また、これまでほとんど報告事例がなかった県産二枚貝の毒成分構成比、経時変化及び種間差異等が明らかとなり、これらのデータが本県における麻痺性貝毒発生機序解明の一助となれば、水産業の振興に寄与することも期待される。

(3) 使用した主な分析機器

液体クロマトグラフ-タンデム型質量分析装置 (LC-MS/MS)

3 県の施策体系と研究課題との関連

(1) 施策体系

食の安全安心確保対策の推進 — 食品安全対策の推進 — 食品の衛生対策
— 食中毒防止総合対策事業

(2) 施策と研究課題との関連

本研究の結果より、宮城県において麻痺性貝毒が多発する時期にスクリーニング検査が可能となる。

(3) 担当課名

食と暮らしの安全推進課
水産業振興課、水産業基盤整備課

4 研究計画

(1) 当初の研究計画

・令和2年度

現在明らかになっている麻痺性貝毒成分（カルバメート誘導体グループ：11成分、N-スルフォカルバモイル誘導体グループ：6成分、デカルバモイル誘導体グループ：12成分）のうち、入手可能な成分について、標準品を用いて分析条件等の検討を実施する。特に、N-スルフォカルバモイル誘導体グループの GTX5、GTX6 および C トキシン群は、分析条件によりカルバモイル誘導体に変換され毒性が著しく増大するため、細心の注意を払って分析条件を確立する必要がある。

・令和3年度

県水産林政部で実施している貝毒対策において、ホームページ等で公表されているデータを元に、プランクトン数の上昇など貝毒発生の兆候が認められた場合に、漁業協同組合を通して同一海域の同一ロットの二枚貝を買上げ、その一部について、MBA を実施している登録検査機関に検査委託し、残った同一ロットの二枚貝を当所で機器分析法により検査する。MBA により求めた毒力値と機器分析法により算出した毒力値を比較し、大きな差が生じていないことを確認する。また、これまでの報告例から、日本で発生する麻痺性貝毒においては、サキシトキシンはほとんど含有しないとされているが、毒成分の組成を明らかにすることで検証する。

・令和4年度

毒化している二枚貝類を漁業協同組合から買上げ、機器分析法により麻痺性貝毒検査を実施する。ま

た、可能であればイムノクロマト法との毒力値比較を行う。さらに、麻痺性貝毒として追加される可能性があるテトロドトキシンの同時分析も試みる。

(2) 研究計画変更の内容と経緯

変更なし。

5 従事時間割合

		業務全体に占める当該研究の従事割合 (%) (従事日数 (日/年))	
		研究計画時	期間中実績 (年平均)
研究代表者	新貝 達成	15 % (38 日/年)	24 % (60 日/年)
共同研究者	千葉 美子	6 % (15 日/年)	4 % (10 日/年)
	姉齒 健太朗 (鈴木 優子)	8 % (20 日/年)	2 % (5 日/年)
	()	% (日/年)	% (日/年)
	()	% (日/年)	% (日/年)
当該研究に要した延べ従事日数 (人・日/年)		73 人・日/年	75 人・日/年

6 関係文献・資料等

(1) 関係文献・資料名

- 1) 麻痺性貝毒等に毒化した貝類の取扱いについて，食安発 0306 号第 2 号，平成 27 年 3 月 6 日
- 2) 食品安全委員会：ファクトシート
- 4) 自然毒のリスクプロファイル：二枚貝：麻痺性貝毒，厚生労働省ホームページ
- 3) 鈴木敏之：貝毒の規制値、監視体制と機器分析，食衛誌，Vol.57，117-132，No.5(2016)
- 4) 麻痺性貝毒に係る監視指導の強化について，薬生食監発 0410 第 1 号，平成 31 年 4 月 10 日
- 5) 石川哲朗ほか：東日本大震災後の宮城県気仙沼湾における *Alexandrium* 属の栄養細胞とシストの分布パターンおよび二枚貝類の毒化，日本水産学会誌，81(2)，256-266、(2015)
- 6) 仲谷正：高速液体クロマトグラフィーを用いた麻痺性貝毒成分の分析について，大阪市立環科研報告，平成 20 年度，第 71 集，63-64，(2009)
- 7) Krista M. Thomas et al. : Hydrophilic interaction liquid chromatography-tandem mass spectrometry for quantitation of paralytic shellfish toxins:validation and application to reference materials, Anal Bioanal Chem(2017)409:5675-5687
- 8) Choonsik Shin et al. : Development and validation of an accurate and sensitive LC-ESI-MS/MS Method for the simultaneous determination of paralytic shellfish poisoning toxins in shellfish and Tunicate, Food Control, 77(2017), 171-178
- 9) 沼野聡：LC-MS/MS を用いたホタテガイ中の麻痺性貝毒の分析について、第 54 回全国衛生化学技術協議会年会講演集，138-139(2017)

- 10) 細川葵ほか：簡易測定法を用いた麻痺性貝毒スクリーニング法の検討（第2報）ーイムノクロマトキットの有効性検証ー，第55回全国衛生化学技術協議会年会講演集，134-135(2018)
- 11) 山口瑞香ほか：麻痺性貝毒の食中毒事例について，第55回全国衛生化学技術協議会年会講演集，138-139(2018)
- 12) Satoshi Numano et al. : Temporal Variation of the Profile and Concentrations of Paralytic Shellfish Toxins and Tetrodotoxin in the Scallop, *Patinopecten yessoensis*, Cultured in a Bay of East Japan, *Mar.Drugs*(2019), 17, 653
- 13) 沼野聡：岩手県産ホタテガイの中腸腺に含有する麻痺性貝毒の分析，第56回全国衛生化学技術協議会年会講演集，122-123(2019)
- 14) 山本圭吾ほか：大阪湾で麻痺性貝毒により毒化したアカガイ，トリガイにおける毒量および毒成分の経時変化と種間の差異，日本水産学会誌，83(4)，589-598，(2017)
- 15) 渡邊：麻痺性貝毒とテトロドトキシン測定のための超高速液体クロマトグラフィー質量分析法マニュアル Ver1.01. 水産研究・教育機構(2021)

(2) 研究成果の外部への発表の状況

- ・第59回 全国衛生化学技術協議会 年会 令和4年10月31日～11月1日
- ・第36回 宮城県保健環境センター 研究発表会 令和3年3月5日
- ・第37回 宮城県保健環境センター 研究発表会 令和4年3月4日
- ・第38回 宮城県保健環境センター 研究発表会 令和5年3月3日

7 添付資料

添付のとおり

LC-MS/MS を用いたホタテガイ及びアカガイの麻痺性貝毒分析について

生活化学部 ○新貝 達成 姉齒 健太朗 千葉 美子 近藤 光恵

1 はじめに

麻痺性貝毒 (PSTs) とは, *Alexandrium* 属などの有毒渦鞭毛藻が産生する神経毒であり, 貝類等はこれらのプランクトンを捕食することで毒化する。

毒化した貝類等が流通しないよう生産段階で監視しており, 検査で規制値 (4MU/g) を超過した場合は, 出荷の自主規制措置が取られる。

本邦の麻痺性貝毒検査の公定法は, マウス毒性試験法 (以下, 「MBA」) であるが, 動物福祉の問題等から国際的に機器分析法への移行が進められている。

本研究は令和 2 年度から LC-MS/MS を用いた分析法 (以下, 「機器分析」) を確立することを目的とし, 検討を行ってきた。今年度は規制値付近で毒化した試料を用いて, 機器分析と MBA の比較を行った。また, C2 の代謝物である M-toxin (以下, 「M」) 及びフグ毒として知られ, 二枚貝からの検出事例もある TTX の同時分析も実施したので報告する。

2 実験方法

2.1 標準品

カナダ NRC 社製 GTX1&4, GTX2&3, GTX5, GTX6, dcGTX2&3, C1&2, 水産研究・教育機構水産技術研究所の NEO&dcSTX 混合溶液, 富士フィルム和光純薬社製 TTX, 東北大学大学院農学研究科にて沼野らが単離・精製した濃度未知の M1, M3, M5-HA を用いた。STX は標準品を使用せずにイオンのモニタリングを行った。

2.2 試料

2022 年シーズンに宮城県内で採取されたホタテガイ及びアカガイのうち, 県又は県漁業協同組合による MBA の検査結果 (以下, 「モニタリング MBA」) で規制値付近の毒化が確認された試料を用いた。

2.3 試験溶液の調製

既報 ¹⁾ に一部変更を加えた方法で調製した。

2.4 装置及び分析条件

MRM 条件は, 既報 ¹⁾²⁾ を参考にし, その他の分析条件は既報 ¹⁾ に一部変更を加えた条件とした。

3 結果及び考察

3.1 機器分析と MBA の毒力値の比較

図 1 に機器分析とモニタリング MBA の毒力値の結果を示す。モニタリング MBA の試料は, 機器分析に供した試料と同一日, 同一地点で採取された試料であるが, 機器分析とモニタリング MBA の試料は同一ホモジネートではない。毒力値について, ホタテガイは「機器分析値 < MBA 値」の傾向であったが, アカガイは一部の試料を除き, 機器分析値と MBA 値がほぼ一致した。

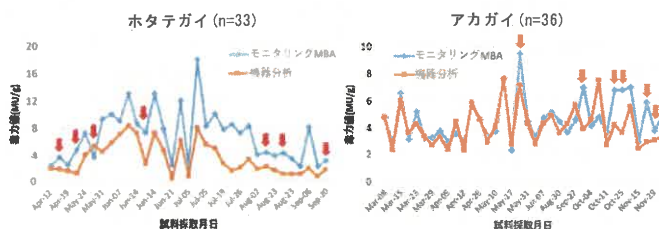


図 1 機器分析とモニタリング MBA の毒力値

次に, 図 1 において赤矢印で示した試料について, 当所で抽出液を調製し, MBA 検査を委託して, 同一ホモジネートでの機器分析と MBA の毒力値の比較を行った。図 2 にその結果を示す。アカガイはいずれの試料も機器分析値と MBA 値がほぼ一致したが, ホタテガイは 3 試料が「機器分析値 = MBA 値」, 4 試料が「機器分析 < MBA」の傾向であった。

そこで, ホタテガイについて, 機器分析と MBA の毒力値の差と未定量成分のピーク面積の相関性を確認したところ, 一部の成分において正の相関が得られ, 毒力値の差分に対する未定量成分の影響が示唆された。

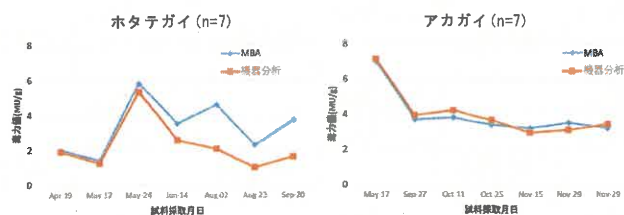


図 2 機器分析と MBA の毒力値

3.2 毒成分組成

ホタテガイは GTX1, GTX 2, アカガイは GTX2, GTX 3 の割合が高く, 夏季以降はいずれの貝種も NEO の増加が見られた。また, ホタテガイについては一部の試料で, 極微量の TTX が検出された。

4 まとめ

アカガイについては機器分析と MBA の毒力値がほぼ一致し, 機器分析の有効性が示された。ホタテガイについては, 未定量成分の影響についてさらなる調査が必要と思われる。

参考文献

- 1) 新貝ら, 宮城県保健環境センター年報, 2021, 39, 43.
- 2) 渡邊, 麻痺性貝毒とテトロドトキシン測定のための超高速液体クロマトグラフィー質量分析法マニュアル ver1.01. 水産研究・教育機構, 2021

所要額積算内訳

保健環境センター (単位:千円)

調査研究 課題名	LC-MS/MSによる麻痺性貝毒分析法の検討(2020)			部名	生活化学部
節区分	計画額	最終予算額	決算額	算出基礎	
7 報償費	0	0	0	@ ×	時間 0
8 旅費	169	169	0	貝毒分析研修会 中央水産研究所(横浜)3泊4日 @ × 人 0 日本食品衛生学会学術講演会(長崎)3泊4日 @ × 人 0 WEB開催となったため参加せず 計 0	
10-1 需用費	478	478	478	1.麻痺性貝毒標準品 CRM-dcGTX2&3 0.5mL @ 56,000 × 2 本 112,000 CRM-GTX5 0.5mL @ 56,000 × 1 本 56,000 CRM-GTX6 0.5mL @ 90,000 × 1 本 90,000 2.試薬 ギ酸 LC/MS用 50mL @ 9,500 × 1 本 9,500 ギ酸アンモニウム LC/MS用 25g @ 19,000 × 1 本 19,000 アセトニトリル LC/MS用 1L @ 7,250 × 3 L 21,750 3.分析用カラム TOSHO TSKgel Amide-80 5μm 2.0mmI.D.×25cm @ 94,000 × 1 本 94,000 4.資材 LCMS品質証明バイアル 褐色ガラス 100本 @ 18,000 × 1 箱 18,000 5.燃料費 ガソリン @ 140 × 100 L 14,000 計 434,250 税込10% 477,675	
11 役務費	7	7	0	1.検体郵送費 チルドゆうパック 宮城県内→宮城県内 @ × 回 0 計画時は使用予定であったが使用せず 計 0	
13 使用料	3	3	3	1.有料道路使用料 利府中IC~鳴瀬奥松島IC @ 610 × 4 往復 2,440 @ × 往復 0 @ × 往復 0 計 2,440	
18 負担金	4	4	3	日本食品衛生学会学術講演会 @ 3,000 × 1 人 3,000 計 3,000	
計	661	661	484		

所要額積算内訳

保健環境センター (単位:千円)

調査研究 課題名	LC-MS/MSによる麻痺性貝毒分析法の検討(2021)			部名	生活化学部			
	計画額	最終予算額	決算額		算出	基礎		
7 報償費	0	0	0	@	×	時間	0	
8 旅費	100	100	64	@	63,820	×	1人	63,820
10-1 需用費	450	450	448	1.麻痺性貝毒標準品				
				@	52,000	×	1本	52,000
				@	52,000	×	1本	52,000
							小計	104,000
							税込10%	114,400
				2.試薬				
				@	800	×	3本	2,400
				@	650	×	1本	650
				@	650	×	3本	1,950
							小計	5,000
							税込10%	5,500
				3.資材				
				@	2,600	×	3本	7,800
				@	18,000	×	3個	54,000
				@	30,000	×	2個	60,000
				@	19,500	×	3個	58,500
				@	25,000	×	1個	25,000
				@	31,500	×	1個	31,500
							小計	236,800
							税込10%	260,480
				4.検体買上				
				@	1,200	×	49 検体	58,800
							小計	58,800
							税込10%	64,680
				5.燃料費				
				@			ガソリン	2,330
							小計(税込)	2,330
							計	447,390
11 役務費	7	7	0	1.検体郵送費				
				@	×		回	0
							計	0
12 委託費	99	99	99	1.検査委託				
				@	9,000	×	10 検体	90,000
							計	90,000
							税込10%	99,000
13 使用料	3	3	2	1.有料道路使用料				
				@	610	×	1回	610
				@	770	×	1回	770
							計	1,380
18 負担金	5	5	2	残留農業分析セミナー(WEB開催)				
				@	2,000	×	1人	2,000
							計	2,000
計	664	664	615					

所要額積算内訳

保健環境センター（単位：千円）

調査研究 課題名	LC-MS/MSによる麻痺性貝毒分析法の検討(2022)			部名	生活化学部
	計画額	最終予算額	決算額		
7 報償費	0	0	0	@	× 時間 0
8 旅費	83	83	0	@	× 人 0 計 0
10-1 需用費	446	446	446		
					1.麻痺性貝毒標準品
				@	52,000 × 1 個 52,000
				@	36,000 × 2 個 72,000
					小計 124,000
					税込10% 136,400
					2.試薬
				@	1,000 × 1 個 1,000
					小計 1,000
					税込10% 1,100
					3.資材
				@	33,000 × 2 個 66,000
				@	90,909 × 1 個 90,909
				@	25,500 × 1 個 25,500
				@	23,000 × 1 個 23,000
				@	15,500 × 1 個 15,500
				@	2,800 × 2 個 5,600
				@	3,000 × 3 個 9,000
					小計 235,509
					税込10% 259,060
					4.検体買上
				@	1,200 × 36 個 43,200
					小計 43,200
					税込10% 47,520
					5.燃料費
					ガソリン 1,355
					小計(税込) 1,355
					計 445,435
12 委託料	149	149	147	@	9,500 × 14 回 133,000
					小計 133,000
					税込10% 146,300
13 使用料	1	1	0	@	× 往復 0 計 0
18 負担金	0	0	0	@	× 人 0 計 0
計	679	679	593		

課題評価調書(事後評価)

令和5年10月24日

評価の種類	事後評価		
整理番号	経-終3	研究課題名	公共用水域におけるPFOS及びPFOAの調査
研究分野	地球環境、地域環境の総合的管理に関する研究	研究区分	経常研究
担当部名	水環境部	研究代表者名	下道 翔平
計画立案 課室・公所名	保健環境センター		
共同研究機関 ・協力機関		研究期間	令和3年度～令和4年度
研究経費	総額	1,397千円	

1 研究目的・背景

ペルフルオロオクタンスルホン酸(PFOS)及びペルフルオロオクタン酸(PFOA)をはじめとする有機フッ素化合物は、撥水性と撥油性を兼ね備えた性質等から撥水・撥油剤、泡消火剤、界面活性剤として様々な製品に利用されてきた。

しかし、有機フッ素化合物は不揮発性かつ水溶性で水系に移行しやすく、加えて難分解性のため、環境への残留性と生物への蓄積性が問題となっている。

このため、PFOSは平成21年5月に残留性有機汚染物質に関するストックホルム条約(POPs条約)の附属書B(制限)に追加され、平成22年4月には経産省の化学物質の審査及び製造等の規制に関する法律(化審法)の改正により第一種特定化学物質に指定され、一部の用途を除き製造・輸入等が禁止された。さらに、平成30年の化審法政令改正により製造・輸入等が原則禁止となった。また、PFOAは令和元年5月にPOPs条約の附属書A(廃絶)への追加が採択され、令和3年4月に化審法第一種特定化学物質に指定され、製造・輸入等が原則禁止となったが、PFOS又はPFOAを含む製品は市中に一定量残存していると考えられている。

このような背景のもと、令和2年5月に、両物質は人の健康の保護に関連する物質であるが、公共用水域等における検出状況からみて直ちに環境基準とはされず、引き続き知見の集積に努める物質として要監視項目に位置付けられ、指針値(暫定)として「50 ng/L以下」が設定された。

環境省が令和元年度及び2年度に実施した有機フッ素化合物全国存在状況調査の本県のモニタリング地点は白石川、砂押川、岩沼市及び名取市内の地下水のみで、県内の実態は不明である。そこで、県内の環境基準点を中心とした公共用水域(河川等)のPFOS及びPFOAについての水質調査を実施し、今後の環境行政に寄与することを目的とする。

2 研究成果

(1) 成果

- ① 環境省から示された測定方法をもとにしつつ、さらに具体的な条件設定等を加えてPFOS及びPFOAの分析法を確立し、標準作業書を作成した。
- ② 県内の環境基準点を中心とした主要河川等及び地下水における水質調査（令和3年度河川等 26地点、地下水5地点。令和4年度河川等 11地点、地下水5地点）を実施した。
- ③ 河川水等は、37地点中4地点で検出されたが、いずれも指針値（暫定 50ng/L）を下回った。
- ④ 地下水は、6地点中1地点で指針値を上回る値が2か年にわたって検出されたが、他の5地点では検出されなかった。

なお、指針値を上回った地点は、環境省が令和2年度に実施した「有機フッ素化合物全国存在状況調査（以下「環境省調査」という。）」で指針値を上回った地点である。

【河川水等でPFOS又はPFOAが検出された地点の調査結果】

地点名	PFOS (ng/L)	PFOA (ng/L)	PFOS+PFOA (ng/L)
地点A	<2	2.8	4.8
地点B	4.0	<2	6.0
地点C	2.2	2.3	4.5
地点D	<2	2.0	4.0

※調査結果は有効桁数2桁で処理した値を掲載しているため、「PFOS+PFOA」の値は必ずしも「PFOS」及び「PFOA」の結果の合算値とは一致しない。

【地下水でPFOS又はPFOAが検出された地点の調査結果】

採水年月	(参考) 環境省調査 令和2年11月	令和3年6月	令和4年6月
PFOS (ng/L)	120	43	25
PFOA (ng/L)	670	97	54
PFOS+PFOA (ng/L)	790	140	79

※調査結果は有効桁数2桁で処理した値を掲載しているため、「PFOS+PFOA」の値は必ずしも「PFOS」及び「PFOA」の結果の合算値とは一致しない。

(2) 成果の活用と波及効果

環境審議会水質専門委員会に、本調査研究をもとにした有機フッ素化合物暫定指針値超過井戸の調査結果が報告され、令和5年度以降の継続調査が業務として位置づけられた。

(3) 使用した主な分析機器

液体クロマトグラフ・タンデム型質量分析装置（LC/MS/MS）、加圧定量型固相抽出装置

3 県の施策体系と研究課題との関連

<p>(1) 施策体系</p> <ul style="list-style-type: none"> ・宮城県環境基本計画 ・安全で良好な生活環境の確保 ・水環境の保全 ・安全な水環境の保全、清らかな水環境の保全、健全な水環境の保全 <p>(2) 施策と研究課題との関連</p> <p>公共用水域の汚染状況の把握は、「水環境の保全」に寄与するもの。</p> <p>(3) 担当課名</p> <p>環境対策課</p>

4 研究計画

<p>(1) 当初の研究計画</p> <ul style="list-style-type: none"> ・令和3年度 <ul style="list-style-type: none"> ① PFOS及びPFOAに関する分析法の検討 ② 宮城県北部の環境基準点を中心とした県内主要河川 10 地点における水質調査 ③ 地下水 5 地点における水質調査 ・令和4年度 <ul style="list-style-type: none"> ① 宮城県南部の環境基準点を中心とした県内主要河川 10 地点における水質調査 ② 地下水 5 地点における水質調査 ③ 分析結果が、指針値 (50ng/L 以下) を超過した河川及び地下水の周辺における水質調査 <p>(2) 研究計画変更の内容と経緯</p> <p>変更なし</p>
--

5 従事時間割合

		業務全体に占める当該研究の従事割合 (%) (従事日数 (日/年))	
		研究計画時	期間中実績 (年平均)
研究代表者	下道 翔平 ()	14 % (35 日/年)	16 % (40 日/年)
共同研究者	高橋 恵美 ()	10 % (25 日/年)	8 % (20 日/年)
	後藤 つね子 ()	4 % (10 日/年)	4 % (10 日/年)
当該研究に要した延べ従事日数 (人・日/年)		70 人・日/年	70 人・日/年

6 関係文献・資料等

(1) 関係文献・資料名

- 1) 環境省 (2016) POPs 残留性有機汚染物質パンフレット
- 2) 独立行政法人製品評価技術基盤機構・経済産業省製造産業局化学物質管理課・厚生労働省医薬・生活衛生局医薬品審査管理課化学物質安全対策室 (2019) 製品含有化学物質のリスク評価ペルフルオロオクタン酸
- 3) 水質汚濁に係る人の健康の保護に関する環境基準等の施行等について (令和2年5月28日付け環水大土発第 2005281 号・環水大土発第 2005282 号環境省水・大気環境局長通知
- 4) 令和元年度 PFOS 及び PFOA 全国存在状況把握調査の結果について (令和2年6月11日) 環境省 HP (<https://www.env.go.jp/press/108091.html>)
- 5) 令和2年度有機フッ素化合物全国存在状況把握調査の結果について (令和3年6月22日) 環境省 HP (<https://www.env.go.jp/press/109708.html>)

(2) 研究成果の外部への発表の状況

- 1) 令和4年度第4回水質専門委員会議 令和5年2月15日
- 2) 第38回宮城県保健環境センター研究発表会「公共用水域におけるPFOS及びPFOAの調査」
下道翔平 令和5年3月3日

7 添付資料

別紙のとおり

1 はじめに

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ン酸（以下「PFOA」という。）は撥水性と撥油性を併せ持つ特異な性質を有していることから、これまで泡消火薬剤や撥水剤等に広く使用されてきた。しかし、化学的に極めて安定性が高く、水溶性かつ不揮発性の物質であるため、環境中に放出された場合には河川等に移行しやすい。また、環境中で分解されにくく、長期的に環境に残留すると考えられており問題となっている。

現在は、残留性有機汚染物質に関するストックホルム条約（POPs条約）の対象となっており、国際的に製造・使用、輸出入が制限・禁止されている。

日本では、令和2年5月28日付け、「水質汚濁に係る人の健康の保護に関する環境基準等の施行等について（通知）」¹⁾（以下「環境省通知」という。）により、公共用水域等の要監視項目にPFOS及びPFOAが追加され、指針値（暫定）としてPFOS及びPFOAの合計値50ng/Lが設定された。また、令和4年12月に水質汚濁防止法施行令の一部を改正する政令が公布され、PFOS・PFOA及びその塩が水質汚濁防止法に規定する「公共用水域に多量に排出されることにより人の健康若しくは生活環境に係る被害を生ずるおそれがある物質（指定物質）」に追加された。

本稿では、環境省通知による測定方法を参考に、宮城県内（仙台市を除く。）の公共用水域等のPFOS及びPFOAの存在状況を把握するために実施した調査結果を報告する。

2 方法

2.1 試料採水

採水は令和3年度及び4年度に実施した。河川水等は、公共用水域環境基準点を中心に37地点、地下水は6地点採水した。

2.2 標準液

PFOS・PFOA混合標準液は、Wellington Laboratories社製L-PFOS（Sodium perfluoro-1-octanesulfonate）50 µg/mL及びPFOA（Perfluoro-n-octanoic acid）50 µg/mLをメタノールで希釈し、混合標準液（0.5 µg/mL）を調製した。

サロゲート混合標準液には、Wellington Laboratories社製M8PFOS（Sodium perfluoro-1-(¹³C₈) octanesulfonate）50 µg/mL及びM8PFOA（Perfluoro-n-(¹³C₈) octanoic acid）50 µg/mLをメタノールで希釈し、サロゲート混合標準液（0.01 µg/mL）を調製した。

2.3 測定方法

図1に試料の前処理操作手順を示す。前処理後はLC/MS/MSにて測定を行った。

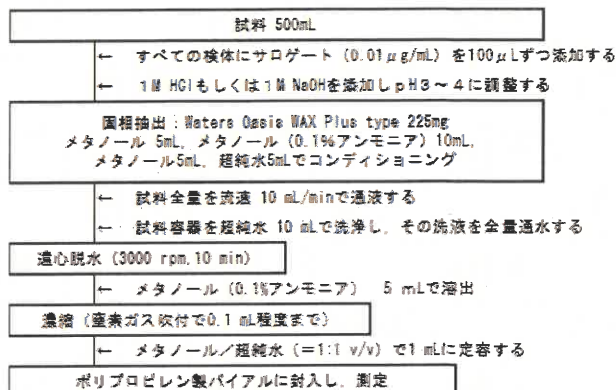


図1 前処理操作手順

3 結果と考察

3.1 測定結果

河川水等は、37地点中4地点で検出されたが、いずれも指針値（50ng/L）を下回った。

地下水は、6地点中1地点で指針値を上回る値が検出されたが、他の5地点では検出されなかった。

なお、指針値を上回った地点は、環境省が令和2年度に実施した「有機フッ素化合物全国存在状況調査（以下「環境省調査」という。）」で指針値を上回った地点である。測定値の一覧を表1に示す。

表1 指針値を上回った地点の測定結果

採水年月	令和2年11月	令和3年6月	令和4年6月
PFOS+PFOA (ng/L)	790*	141	80.0

*環境省調査で公表されている測定値

3.2 考察

地下水で指針値を上回った地点における測定結果（表1）について、減少傾向がみられたが、採水時期が環境省調査は冬季で、本調査は春季であり、季節による変動も考えられることから、今後検証したい。

【参考文献】

- 1)水質汚濁に係る人の健康の保護に関する環境基準等の施行等について（通知）令和2年5月28日付け、環水大水発第2005281号環水大土発第2005282号
- 2)令和元年度PFOS及びPFOA全国存在状況把握調査の結果について 令和2年6月11日 環境省HP (<https://www.env.go.jp/press/108091.html>)
- 令和2年度有機フッ素化合物全国存在状況把握調査の結果について 令和3年6月22日 環境省HP (<https://www.env.go.jp/press/109708.html>)

所要額積算内訳

保健環境センター (単位:千円)

調査研究 課題名	公共用水域におけるPFOS及びPFOAの調査(2021)			部名	水環境部
	計画額	最終予算額	決算額		
10-1 需用費	679	679	679	算出基礎	
				1 試薬類	
				PFOS標準液(ウェリントン社 L-PFOS)	@ 46,800 × 1 個 46,800
				PFOA標準液(ウェリントン社 PFOA)	@ 20,700 × 1 個 20,700
				PFOS内部標準液(ウェリントン社 M8PFOS)	@ 135,000 × 1 個 135,000
				PFOA内部標準液(ウェリントン社 M8PFOA)	@ 180,000 × 1 個 180,000
				2 消耗品	
				スナップキャップ(11mm、100個、アジレント)	@ 1,400 × 5 箱 7,000
				3 LC/MS/MSカラム	
				分析カラム(L-column 2 ODS 粒子径3μm 長さ100mm× 内径2.1mm Cat.No.711170)	@ 47,000 × 1 本 47,000
				分析カラム(L-column 2 ODS 粒子径3μm 長さ100mm× 内径2.1mm Cat.No.711170)	@ 45,000 × 1 本 45,000
				ギャップカラム(ChromaNik Tech. SunShell C18, 2.6μm 長さ75mm×内径2.1mm L1)	@ 64,000 × 1 本 64,000
				ギャップカラム(ChromaNik Tech. SunShell C18, 2.6μm 長さ75mm×内径2.1mm L1)	@ 68,000 × 1 本 68,000
				4 ガソリン代	@ 144 × 24 L 3,456
					計 616,956
					税込10% 678,652
13 使用料	17	17	3	泉IC~古川IC	@ 1,900 × 1 往復 1,900
				多賀城IC~鳴瀬奥松島IC	@ 770 × 1 片道 770
					計 2,670
計	696	696	682		

所要額積算内訳

保健環境センター (単位:千円)

調査研究 課題名	公共用水域におけるPFOS及びPFOAの調査(2022)			部名	水環境部
	計画額	最終予算額	決算額		
節区分	算出基礎				
10-1 需用費	711	711	711		
				1 試薬類	
				メタノール Plus LC/MS用 3L	@ 2,700 × 3 個 8,100
				PFOS標準液(ウェリントン社 L-PFOS)	@ 57,000 × 1 個 57,000
				PFOA標準液(ウェリントン社 PFOA)	@ 26,000 × 1 個 26,000
				PFOS内部標準液(ウェリントン社 M8PFOS)	@ 170,000 × 1 個 170,000
				PFOA内部標準液(ウェリントン社 M8PFOA)	@ 220,000 × 1 個 220,000
				2 消耗品	
				固相カートリッジ50個入(Waters Oasis Wax Plus type 225mg)	@ 46,500 × 3 箱 139,500
				3 分析器具	
				LC用フレキシブルステンレスキャピラリー(内径0.17mm×長さ600mm)	@ 4,250 × 2 本 8,500
				LC用フレキシブルチューブ【緑】(内径0.17mm×長さ105mm)	@ 4,760 × 2 本 9,520
				4 ガソリン代	@ 154 × 48.6 L 7,484
					計 646,104
					税込10% 710,715
13 使用料	17	17	4	多賀城IC~松島北IC	@ 560 × 1 片道 560
				仙台東IC~仙台空港IC	@ 1,040 × 1 往復 1,040
				仙台宮城IC~白石IC	@ 2,120 × 1 往復 2,120
					計 3,720
計	728	728	715		

