

## 令和7年度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 生活化学部 LC-MS/MSによるアレルゲンを含む食品の検査方法の検討	.....
整理番号 経-新2 水環境部 自動同定定量システム(AIQS-GC)による宮城県内河川水中の微量化学物質の実態調査	..... 7

### ○事後評価

整理番号 経-終1 微生物部 流入下水中ウイルス遺伝子の高感度精製法の導入と呼吸器系ウイルス遺伝子濃度推移の把握	..... 13
整理番号 経-終2 生活化学部 食品中高極性農薬の分析法開発及び残留実態調査	..... 19
整理番号 経-終3 大気環境部 宮城県におけるPM2.5高濃度予測時の成分分析	..... 29



## 課題評価調書（事前評価）

令和7年10月28日

整理番号	経-新1	調査研究期間	令和8年度～令和9年度
研究課題	LC-MS/MSによるアレルゲンを含む食品の検査方法の検討		
調査研究分野	食品衛生、生活衛生の安全対策に関する研究	調査研究区分	経常研究
担当部	生活化学部	調査研究 代表者	佐藤 由美
計画立案 課室・公所	保健環境センター		
共同研究機関 ・協力機関			
調査研究経費	総額1,624千円（令和8年度：718千円、令和9年度：906千円）		

### 1 目的及び背景

2025年5月1日現在、食品表示法により「特定原材料」としてアレルギー表示が義務付けられている物質は8品目、「特定原材料に準ずるもの」として表示が推奨されている物質は20品目となっており、当所では「特定原材料」のうち、「卵、くるみ」を除く「そば、小麦、えび、かに、落花生、乳」を対象に食品中のアレルゲン検査を実施している。

アレルゲンを含む食品の検査方法は、消費者庁通知により定められ、初めにキットを用いたELISA法による定量（スクリーニング）検査を行うこととされている。キットは、通知法に準拠した製品が複数のメーカーから販売されており、検査特性の異なる2種類のキットを用いて測定することが求められている。2種類のキットの片方又は両方で、食品1g当たり10 µg以上の検出があったものを陽性と判断する。

しかし、ELISA法は抗原抗体反応を利用した検査であるため、特異性に欠け偽陽性の結果を生じる可能性があり、ELISA法により陽性と判断した場合は、定性（確認）検査を実施しなければならない。

一方、通知で定性検査法として記載されているウェスタンプロット法（卵、乳）やPCR法（小麦、そば、えび、かに、落花生）は、操作が煩雑で熟練の技術を必要とするため、技術の継承が困難となっており、現体制では他部に頼らざるを得ない状況となっている。

さらに、ELISAキットは1キットで1物質しか測定できない上、高額で使用期限もあるため常備しているものではない。健康被害発生時には、当該アレルゲンの推定及びそれに対応するキットの発注から行わなければならず、迅速な対応ができないことが課題となる。

また、食品表示法で表示が定められている特定原材料に準ずるものも数多くあり、今後も特定原材料の品目増加が予想される。

2020年からAOAC INTERNATIONALも食品アレルゲンに関する分析法の開発やバリデーションに着手しており、機器分析法が新たな分析法として注目され始めた。通知には、定量試験において「ELISA法以外の定量検査法を用いることは妨げないが、この場合には、この検査法と同等あるいは同等以上の性能をもっていること。」、定性試験においても「ウェスタンプロット法、PCR法以外の定性検査法を用いることは妨げないが、この場合には、これらの検査法と同等あるいは同等以上の性能をもっていること。」というなお書きがあることから、LC-MS/MSを代替検査法として検討することを目的として調査研究を実施する。

## 2 計画・成果

令和8年度 (計画)	質量分析計の向上によって網羅的なタンパク質同定・定量が可能となっていることから、現在最も普及しているボトムアップ型プロテオミクス解析の検討を行う。 従来、LC-MS/MS 法では効率的なアレルゲンの抽出は困難であったが、数年前に開発された「PTS (Phase transfer surfactant : 相間移動溶解剤) 法」を前処理に用いることで、ELISA 法と同等の抽出効率による測定が可能となっている。PTS によりタンパク質を抽出し、還元、アルキル化、分解酵素によりペプチドまで切断して可溶化した後、LC-MS/MS により解析、定量する手法を検討する。 使用する標準物質については、自家調製では含有濃度を確定するのが困難であるため、濃度が保証されている市販品を購入する。
令和9年度 (計画)	対象項目は、原因物質としての割合が高い「卵」「小麦」、新たに追加され当所では定性検査を未検討のため実施していない「くるみ」に絞り、添加回収試験を中心に分析法を検討し、ELISA 法と定量結果を比較する。 また、実際に表示のある加工食品の分析により、ELISA 法とLC-MS/MS 法で定量値の比較を行い、最終的に妥当性評価を実施する。

## 3 波及効果

アレルゲンを含む食品の検査において、機器分析法は現在のところ公定法ではないものの、昨今の時流を受けてオーソライズされつつあり、いずれ公定法として認められる気運となっていることから、通知法が示された際の基礎資料とすることができます。

また、機器分析法を導入することにより、特定原材料の特定、定量が通知法と比較して短時間で実施可能となり、健康被害発生時には結果報告までに相当な時間短縮が期待できる。

当所において、これまで実績のない新分野（プロテオミクス技術）の手法を検討し、効率的かつ精度の高い分析法を新たに確立することは、保健環境センターの検査技術の維持向上と研究体制の強化に繋がると考える。

## 4 施策体系と研究課題との関連

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
施策と研究課題との関連	機器分析法を確立することにより、検査対象とする特定原材料の項目数が拡大すると共に、より迅速に検査結果を得ることが可能となり、県内に流通している食品の安全確保の強化に寄与することができる。 さらに、食物アレルギーによる健康被害発生時の検査体制を構築することで、県民の食の安全安心の確保に資することができる。
関係課担当班	食と暮らしの安全推進課 食品安全班

## 5 従事時間割合

		従事割合（従事日数／年）	
		計画	平均実績（～年度）
調査研究 代表者	佐藤　由美	10% (25日／年)	% (　　日／年)
共同研究者	阿部　美和	8% (20日／年)	% (　　日／年)
	鈴木　ゆみ	4% (10日／年)	% (　　日／年)
	千葉　美子	6% (15日／年)	% (　　日／年)
	小野寺　由理恵	6% (15日／年)	% (　　日／年)
延従事日数		85人・日／年	人・日／年

## 6 関係文献など

- 1) Takeshi Masuda, Masaru Tomita, Yasushi Ishihama, Phase transfer surfactant-aided trypsin digestion for membrane proteome analysis : Journal of proteome research, doi : 10.1021/pr700658q, URL : <https://pubs.acs.org/doi/abs/10.1021/pr700658q>
- 2) 酒井信夫, 食物アレルゲン分析のネクストジェネレーション (LC-MSによる多重検出) : ファルマシアVol.51, No.5, 461(2013)
- 3) 稲垣江梨, 富上香澄, 山下賀容子, LC-MS/MSによる食物アレルゲン検査方法 : ぶんせき11, 501-505(2023)
- 4) 公益社団法人日本ハム食の未来財団, LC-MS/MSを用いた特定原材料のアレルゲンおよび品種判別同時分析法に関する研究, URL : [https://www.miraizaidan.or.jp/specialist/grants/2018/pdf/a\\_nagai.pdf](https://www.miraizaidan.or.jp/specialist/grants/2018/pdf/a_nagai.pdf)
- 5) 恵千晶, 宮崎明子, 田口大夢, 平尾宣司, LC-MS/MSを用いた食品中の小麦、卵、乳タンパク質の一斉定量法開発 : 第119回日本食品衛生学会学術講演会講演要旨集p. 135(2023)
- 6) 伊藤友紀, 富上香澄, 山下賀容子, 稲垣江梨, 渡邊淳, 飯田順子, トリプル四重極質量分析計を用いた食物アレルゲンの分析 : 第119回日本食品衛生学会学術講演会講演要旨集p. 137(2023)
- 7) 山下賀容子, 富上香澄, 稲垣江梨, LC-MS/MSによる食物アレルゲン一斉分析～スクリーニング法の開発～ : 第119回日本食品衛生学会学術講演会講演要旨集p. 139(2023)
- 8) 富上香澄, 稲垣江梨, 建田潮, LC-MS/MSを用いた食物アレルゲン一斉分析法の妥当性評価 : 第117回日本食品衛生学会学術講演会講演要旨集p. 53(2021)

## 7 添付資料

別添のとおり

# LC-MS/MSによるアレルゲンを含む食品の検査方法の検討

生活化学部

## はじめに

### 特定原材料8品目



出典:(公財)ニッポンハム食の未来財団ホームページ

表示が義務付けられている特定原材料8品目のうち、現在、当所で検査を実施しているのは、「えび、かに、小麦、そば、卵、乳、落花生」の6品目

## 2 当所における確認検査実施事例

年度	特定原材料	確認検査法
H21(収去検査)	そば	PCR法
H22(収去検査)	乳	WB法
<b>H23(健康被害)</b>	卵	WB法
H23(収去検査)	そば	PCR法
H24(収去検査)	乳	WB法
H25(収去検査)	乳	WB法

## 4 アレルゲンを含む食品の検査方法の問題点

検査法	明らかになっている問題点
ELISA法	<ul style="list-style-type: none"><li>1キットで1品目しか測定できない。キットの違いにより測定結果に差が生じる。</li><li>偽陽性、偽陰性を示す場合がある(「偽陽性又は偽陰性を示す食品リスト」が公表されている)。</li><li>キットが高額な上、使用期限があるため常備できず、健康被害発生時に即時対応ができない。</li><li>健康被害発生時、特定原材料の品目が不明な場合、対応ができない。</li></ul>
WB法	<ul style="list-style-type: none"><li>方法が煩雑で、技術の継承が困難である。</li></ul>
PCR法	<ul style="list-style-type: none"><li>DNAを指標としており、アレルゲン自体を測定しているわけではない。</li><li>「検知不能」と判定される場合がある。</li></ul>

## 5 アレルゲンを含む食品検査への新たな取組み

- 2020年からAOAC INTERNATIONALが、食品アレルゲンに関する分析法の開発やバリデーションに着手。
- 熊本大学で、LC-MS/MSでのプロテオミクス解析に適した前処理法「PTS(相間移動溶解剤)法」を開発し、食品中から効率的にアレルゲンを抽出できるようになった。
- LC-MS/MSで使用可能な標準物質が開発、実用化された。



## LC-MS/MSによる代替検査法を検討

- 複数のアレルゲンが一斉に検査可能となり、迅速で高感度かつ特異性の高い検査法である。
- ルーチンで使用しているLC-MS/MS分析のため、技術の継承が容易に行える。
- 将来的には、特定原材料に準ずるもの(20品目)も検査可能となる。

## 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によるアレルゲンを含む食品の検査方法の検討 (2026)			部名	生活化学部		
節区分	計画額	算	出	基	礎		
10-1 需用費	718	食物由来アレルゲン抽出物(そば) 50UL×5 食物由来アレルゲン抽出物(落花生) 50UL×5 食物由来アレルゲン抽出物(くるみ) 100UL×5 食物由来アレルゲン抽出物(小麦) 50UL 食物由来アレルゲン抽出物(卵) 50UL 食物由来アレルゲン抽出物(乳) 50UL 食物由来アレルゲン抽出物(甲殻類) 50UL 食物由来アレルゲン抽出物(大豆) 50UL 食物アレルゲン抽出試薬 5セット トリプシン ブタ臍臓由来 質量分析グレード 20 μg×5 Oasis MCX Vac Cartridge 150 mg/6cc 60μm 30/pk FASTKITエライザVer.III くるみ モリナガFASPEKエライザⅡくるみ 食品(表示あり、表示なし)買い上げ	@ @ @ @ @ @ @ @ @ @ @ @ @ @ @ @	84,300 84,300 84,300 22,000 22,000 22,000 22,000 22,000 22,000 22,900 29,600 79,800 80,000 1,000	× × × × × × × × × × × × × × × ×	1 箱 1 箱 1 箱 1 本 1 本 1 本 1 本 1 本 2 箱 1 箱 1 箱 1 箱 10 品目	84,300 84,300 84,300 22,000 22,000 22,000 22,000 22,000 44,000 45,800 29,600 79,800 80,000 10,000
				計	652,100		
				税込10%	717,310		
計	718						

## 所 要 額 積 算 内 許

保健環境センター (単位:千円)

調査研究 課題名	LC-MS/MSによるアレルゲンを含む食品の検査方法の検討 (2027)			部名	生活化学部	
節区分	計画額	算	出	基	礎	
8 旅費	54	日本食品衛生学会 第122回学術講演会 (東京都江戸川区開催予定:新幹線利用2泊3日)	@	53,340 ×	1人 53,340	
10-1 需用費	842	FASTKITエライザVer.Ⅲ 小麦 モリナガFASPEKエライザⅡ 小麦 FASTKITエライザVer.Ⅲ 卵 モリナガFASPEKエライザⅡ 卵 FASTKITエライザVer.Ⅲくるみ モリナガFASPEKエライザⅡくるみ 食物由来アレルゲン抽出物(小麦) 50UL 食物由来アレルゲン抽出物(卵) 50UL 食物由来アレルゲン抽出物(くるみ) 100UL 食物アレルゲン抽出試薬 5セット トリプシン ブタ臍膜由来 質量分析グレード 20 μg × 5 InertSep MCX 150mg/6mL 30本入 加工食品買い上げ	@	79,800 × 80,000 × 79,800 × 80,000 × 79,800 × 80,000 × 23,400 × 23,400 × 23,400 × 24,300 × 21,700 × 33,000 × 1,000 ×	1箱 1箱 1箱 1箱 1箱 1箱 2本 2本 2本 2箱 2箱 1箱 20 製品	79,800 80,000 79,800 80,000 79,800 80,000 46,800 46,800 46,800 48,600 43,400 33,000 20,000
				計	764,800	
				税込10%	841,280	
18 負担金	10	日本食品衛生学会参加費(含講演要旨集代)	@	10,000 ×	1人 10,000	
計	906					

## 課題評価調書（事前評価）

令和7年12月16日

整理番号	経-新2	調査研究期間	令和8年度～令和9年度
研究課題	自動同定定量システム（AIQS-GC）による宮城県内河川水中の微量化学物質の実態調査		
調査研究分野	保健・環境情報の収集、解析手法に関する研究	調査研究区分	経常研究
担当部	水環境部	調査研究 代表者	下道 翔平
計画立案 課室・公所	保健環境センター		
共同研究機 関・協力機関	なし		
調査研究経費	総額1,426千円（令和8年度：626千円 令和9年度：800千円）		

### 1 目的及び背景

現代社会では多種多様な化学物質が使用されており、災害時などにそれらが環境中へ流出するリスクが高まっている。特に日本は自然災害が頻発する国であり、災害による化学物質の流出は、人の健康や生態系に深刻な影響を及ぼすおそれがある（関係文献（5）参照）。こうしたリスクに備え、平時から水環境中の化学物質の実態を把握し、災害時や水質事故発生時における異常値の判断材料となる「基礎データ」を蓄積しておくことが不可欠である。しかし、従来の分析法では検出対象ごとに標準物質や検量線を必要とし、時間やコスト面での制約が大きい。そこで注目されているのが、自動同定定量システム（AIQS）を用いた「スクリーニング分析」である。これは、あらかじめ登録されたデータベース情報を活用し、標準物質を使用せずに多数の化学物質を一度に検出・定量する手法である。実際に、東日本大震災や九州などで発生した令和2年7月豪雨での化学物質に係る環境モニタリング等で活用されている（関係文献（6）（7）参照）。本研究では、ガスクロマトグラフ質量分析計（GC-MS）を用いたAIQS-GCによる平時の河川水中化学物質の実態把握に加え、装置性能評価と分析体制の整備を行い、災害時に迅速に活用できる検査体制の構築を目的とする。

### 2 計画・成果

令和8年度 (計画)	AIQS-GCによるスクリーニング分析法暫定マニュアル（環境省_令和5年3月）や先進事例を参考に、当部で所有しているGC/MSを活用したスクリーニング分析をするための環境を整備し、装置性能評価を実施するとともに、標準作業書を作成する。
令和9年度 (計画)	宮城県内の主な河川水を採取し、AIQS-GCによるスクリーニング分析を行い、平時の河川水中にある化学物質の検出状況を確認し、併せて河川の水質項目（pH、電気伝導率、透視度、懸濁物質など）を測定する。結果については、主務課に情報提供するとともに、研究発表会等で結果を報告する。

### 3 波及効果

AIQS-GCを用いて県内河川水中の微量化学物質を網羅的に把握し、平時の基礎データを蓄積することで、災害時の水質変化を迅速に評価できる体制が整い、水環境の保全に資する科学的な基盤資料が得られる。得られたデータは県内の河川モニタリング体制に活用され、平常時の水質評価や化学物質流出時の初動対応の迅速化に貢献する。また、災害時に特定の化学物質が通常時に比べて増加して検出され、それがPRTR法や水質汚濁防止法等に基づく化学物質である場合には、届出事業者や化学物質を取扱う事業者への対応に幅広く活用することができる。さらに、化学物質の流出が確認された際には、そのリスクについて県民に対し迅速かつ的確に情報提供を行うことができる。AIQS-GCの導入によって効率的な分析体制が構築され、得られた知見は行政施策へも展開され、県民の安全・安心の確保につながる波及効果が期待される。

### 4 施策体系と研究課題との関連

施策体系	本研究は、宮城県環境基本計画（第4期）の「政策4：安全で良好な生活環境の確保」に掲げられた施策（2）「水環境の保全」および施策（5）「化学物質による環境リスクの低減」の方向性に合致する取組である。AIQS-GCによる網羅的なスクリーニング分析を導入し、河川水中に含まれる微量化学物質の実態を科学的に把握することは、水質モニタリングをより正確かつ効率的に監視するために効果的であり、平常時の水質管理はもとより、災害時における化学物質の流出リスク評価にも活用可能である。
施策と研究課題との関連	河川水を対象にAIQS-GCを用いて多数の化学物質を迅速かつ網羅的に測定することで、従来把握が困難であった微量汚染の実態を科学的根拠に基づき明らかにできる。加えて、得られたデータは平時における県民の水環境に対する安心感の醸成に寄与するとともに、災害時には迅速なリスク評価と情報提供を通じて、住民の健康保護や不安の軽減につながり、県民生活の安全・安心の確保に貢献する。
関係課担当班	環境対策課

### 5 従事時間割合

		従事割合（従事日数／年）	
		計画	平均実績（R8～R9年度）
調査研究代表者	下道 翔平	12%（30日／年）	%（　日／年）
共同研究者	高橋 恵美	6%（15日／年）	%（　日／年）
	菅原 直子	2%（　4日／年）	%（　日／年）
	高橋 圭	6%（15日／年）	%（　日／年）
延従事日数		64人・日／年	人・日／年

## 6 関係文献など

- (1) 内閣府\_\_防災情報のページ\_\_過去5年の激甚災害の指定状況一覧  
<https://www.bousai.go.jp/taisaku/gekijinhukko/list.html>
- (2) 国立環境研究所\_\_自動同定定量システム（AIQS）を活用した災害時の環境モニタリング～東日本大震災での活用と技術的展開～【環境化学（Journal of Environmental Chemistry）Vol. 29, No. 3, pp129–137, 2019】
- (3) 環境省\_\_AIQS-GCによるスクリーニング分析法暫定マニュアル（令和5年3月）
- (4) 環境省\_\_地方公共団体環境部局における化学物質に係る災害・事故対応マニュアル策定の手引き（令和4年3月）
- (5) D.Chem-Core—災害・事故時の環境リスク管理に関する情報基盤—  
<https://www.nies.go.jp/dchemcore/>
- (6) 東日本大震災後に災害廃棄物一次仮置場となった農地土壤の網羅的自動同定定量システム（AIQS）および元素分析による化学汚染の評価【環境化学（Journal of Environmental Chemistry）Vol. 30, No. 3, pp107–114, 2020】
- (7) ターゲットスクリーニング分析と生物応答試験による豪雨災害時における河川水中有機汚染物質の調査【分析化学 Vol. 70, No. 10・11, pp639–647, 2021】

## 7 添付資料

別添のとおり

# 自動同定定量システム（AIQS-GC）による宮城県内河川水中の微量化学物質の実態調査

## 【背景】

- 多種多様な化学物質が使用され、環境中へ流出するリスクが高まっている
- 化学物質は、人の健康や生態系に深刻な影響を及ぼすおそれがある
- 従来の分析法は、時間がかかり、検出対象ごとに標準物質が必要である
- 緊急時の環境モニタリングでは可能な限り多種の化学物質を迅速に測定できるシステムが望ましい

## 【目的】

AIQS-GCによる微量化学物質のスクリーニング分析

- データベースに登録された情報を活用した一斉分析の確立
- 県内の河川水中の化学物質の実態を調査
- 平常時の水質状況の把握することで事故時に水質変化を評価

## 【計画】

- AIQS-GC分析を行うための分析条件や装置性能評価の検証及び標準作業書の作成
- 県内主要河川水中の微量化学物質の実態を調査
- 平常時の水質状況を整理し事故発生時の初動対応の基礎データの作成

## 【成果の活用】

- ✓ 県内の河川水中の化学物質を把握する（基礎データの蓄積）
- ✓ 災害や事故時の水質変化に迅速に対応

## 【波及効果】

- ✓ 県民の安全・安心の確保につながる  
→災害時に流出が確認された化学物質のリスクについて情報発信
- ✓ 今後の行政施策へ展開  
→化学物質を取り扱う事業者への対応など幅広く活用

## 所 要 額 積 算 内 許

保健環境センター (単位:千円)

調査研究 課題名	自動同定定量システム(AIQS-GC)による 宮城県内河川水中の微量化学物質の実態調査(2026)			部名	水環境部	
節区分	計画額	算	出	基	础	
7 報償費	0			@	×	時間 0
8 旅費	0			@	×	人 0
10-1 需用費	626	1. 試薬・資材 <GC/MS関係> 超高純度ヘリウムガス <固相抽出法関係> 固相カラムカートリッジ(Waters製 Oasis-HLB plus 225mg)50個入 固相カラムカートリッジ(Waters製 Sep-Pak AC-2plus 400mg)50個入 サロゲート物質 p-クロロアニリン-d4 250mg サロゲート物質 1,3-ジクロロ-2-プロパン-1-オール-d5 1mg/mL 1.2mL サロゲート物質 トリクロサン-d3 10mg サロゲート物質 ベンゾ【a】ピレン-d12 100mg/L 1mL <内標準物質> AIQS/NAGINATA内部標準Mix(10 μg/mLアセトン溶液)2mL×5本 <装置性能評価用標準物質> AIQS/NAGINATAクライテリアサンプルMixⅢ 1.5mL×2本 <消耗品> スクリューバイアル 茶色 2mL 不活性処理済 100個入 一体型セブタム付きポリプロピレンスクリューキャップPTFE 100個入 不活性化ガラスインサート250 μL (100個入)		@ 92,100 × 0.2 本	18,420	
				@ 45,900 × 0.7 本	32,130	
				@ 40,000 × 0.8 本	32,000	
				@ 146,100 × 1 本	146,100	
				@ 76,400 × 1 本	76,400	
				@ 87,800 × 1 本	87,800	
				@ 100,000 × 1 本	100,000	
				計 568,800		
				税込10% 625,680		
13 使用料	0			@ 6,500 × 0.8 箱	5,200	
				@ 5,000 × 1 個	5,000	
				@ 20,000 × 0.8 箱	16,000	
				計 0		
18 負担金				@ 0	往復 0	
				@ 0	往復 0	
				@ 0	往復 0	
				計 0		
計	626					

## 所 要 額 積 算 內 訣

### 保健環境センター（単位：千円）

調査研究 課題名	自動同定定量システム(AIQS-GC)による 宮城県内河川水中の微量化学物質の実態調査(2027)				部名	水環境部	
節区分	計画額	算	出	基	礎		
7 報償費	0			@	×	時間	0
8 旅費	0			@	×	人	0
10-1 需用費	782	1. 試薬・資材 <GC/MS関係> 超高純度ヘリウムガス @ 92,100 × 0.2 本 18,420 キャビラリーカラム(DB-5ms)長さ30m、内径0.25mm、膜厚0.25 μm @ 101,000 × 1.0 本 101,000 <固相抽出法関係> 固相カラムカートリッジ(Waters製 Oasis-HLB plus 225mg)50個入 @ 45,900 × 1 本 45,900 固相カラムカートリッジ(Waters製 Sep-Pak AC-2plus 400mg)50個入 @ 40,000 × 1 本 40,000 サロゲート物質 p-クロロアニリン-d4 250mg @ 146,100 × 1 本 146,100 サロゲート物質 1,3-ジクロロ-2-ブロボノール-d5 1mg/mL 1.2mL @ 76,400 × 1 本 76,400 サロゲート物質 トリクロサン-d3 10mg @ 87,800 × 1 本 87,800 サロゲート物質 ベンゾ[a]ピレン-d12 100mg/L 1mL @ 100,000 × 1 本 100,000 <内標準物質> AIQS/NAGINATA内部標準Mix(10 μg/mLアセトン溶液)2mL×5本 @ 35,200 × 1 本 35,200 <装置性能評価用標準物質> AIQS/NAGINATAクライテリアサンプルMix III 1.5mL×2本 @ 14,550 × 1 本 14,550 <消耗品> スクリューバイアル 茶色 2mL 不活性処理済 100個入 @ 6,500 × 1 箱 6,500 一体型セプタム付きホリフロビレンスクリューキャップPTFE 100個入 @ 5,000 × 1 個 5,000 不活性化ガラスインサート250 μL (100個入) @ 20,000 × 1 箱 20,000  2. 燃料費 @ 155 × 85 L 13,175 計 710,045 税込10% 781,050					
13 使用料	18	自動車道使用料 泉IC～古川IC @ 1,900 × 2 往復 3,800 泉IC～若柳金成IC @ 3,400 × 2 往復 6,800 多賀城IC～鳴瀬奥松島IC @ 1,540 × 2 往復 3,080 仙台宮城IC～白石IC @ 2,120 × 2 往復 4,240 計 17,920					
18 負担金							
計	800						

## 課題評価調書（事後評価）

整理番号	経-終1	調査研究期間	令和5年度～令和6年度
研究課題	流入下水中ウイルス遺伝子の高感度精製法の導入と呼吸器系ウイルス遺伝子濃度推移の把握		
調査研究分野	感染症予防対策に関する研究	調査研究区分	経常研究
担当部	微生物部	調査研究 代表者	鈴木優子
計画立案 課室・公所	保健環境センター		
共同研究機関 ・協力機関	北海道大学大学院工学研究院、東北大学大学院工学研究科		
調査研究経費	総額876千円（令和5年度：401千円 令和6年度：475千円）		

### 1 目的及び背景

感染症の流行を早期探知する指標の一つとして、流入下水中のウイルス遺伝子を検出する方法があげられる。日本では1960年代後半より地方衛生研究所による下水中のウイルス調査が全国各地で報告されており、2013年からは国立感染症研究所（以下、感染研）で下水を材料としたポリオウイルス環境水サーベイランスを実施するなど、これまで主に腸管系ウイルスについて行われてきているが、現在世界的に流行している新型コロナウイルス（SARS-CoV-2）やインフルエンザウイルス等の呼吸器系ウイルス遺伝子についても流入下水から検出されることが報告されている。

新型コロナウイルスの下水サーベイランスについては国内外で研究・取組が行われている。感染研の研究によると、流入下水の遠心上清と沈殿物を比較した結果、沈殿物がウイルス検出に適していることを示している。また、北海道大学大学院の北島らは、開発した下水中ウイルスRNA定量検出手法により従来法の100倍以上の高感度でSARS-CoV-2が検出されたと報告している。

本研究では、SARS-CoV-2を始めとする病原体検出情報の報告対象としている呼吸器系ウイルス遺伝子に着目し、高感度な下水中ウイルスRNA定量検出手法により流入下水（下水管と沈砂地の間にある流入渠で採取）から経時的に検出を行い、患者発生動向と比較し流行実態を解明することにより、呼吸器感染症を早期に探知し、注意喚起することでまん延防止に役立てることを目指す。

### 2 計画・成果

令和5年度 (計画)	下水からウイルスRNAを高感度に検出することが出来る北海道大学大学院で開発したEPISENS-M法を用いて、週1回採水したサンプルについて、SARS-CoV-2を始めとした呼吸器系ウイルス遺伝子を経時的に検出する。
令和5年度 (成果)	<ul style="list-style-type: none"> <li>・北海道大学から情報提供を受け、高感度検出法であるEPISENS-M法の検査系を確立した。</li> <li>・東北大学で流入下水の処理方法や流入下水中のウイルス遺伝子の検出法について研修を実施した。</li> <li>・令和5年4月～令和6年3月の流入下水51件について、SARS-CoV-2遺伝子濃度を経時に検出した。</li> <li>・プロセスコントロールとしてトウガラシ微斑ウイルス（PMMoV）遺伝子濃度も経時に検出した。</li> <li>・調査期間中の全サンプルからSARS-CoV-2遺伝子が検出された。また、PMMoVも全てのサンプルから一定量検出され、下水の処理、RNA抽出、定量の工程において問題がないことを確認した。</li> </ul>
令和6年度 (計画)	令和5年度に引き続き、流入下水中の調査対象ウイルスについて経時に検出を行うとともに、当所の結核・感染症情報センターの患者発生動向と比較し流行実態を解明する。

令和6年度 (成果)	<ul style="list-style-type: none"> <li>・令和6年4月～令和7年3月の流入下水51件についてSARS-CoV-2遺伝子を、令和5年4月～令和7年3月の流入下水102件についてA型インフルエンザウイルス遺伝子及びRSウイルス遺伝子を、経時に検出を行った。</li> <li>・流域医療機関における感染症患者報告数と検出ウイルスの濃度を比較した。</li> <li>・SARS-CoV-2の遺伝子濃度は流域医療機関からの患者報告数の動向と同様の傾向を示し、年間を通して検出された。</li> <li>・A型インフルエンザウイルスは流行期に検出され、亜型別では、下水中から検出された型と患者から検出された流行株の型に同じ傾向が見られた。</li> <li>・RSウイルスは、調査期間中遺伝子が検出されることが多かった。患者報告数が増加すると、下水中の濃度も増加する傾向が見られたが、患者報告数の動向と必ずしも一致しない時期も見受けられた。</li> </ul>
---------------	----------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------

### 3 波及効果

感染症法に基づき、地域における感染症の発生状況を患者・病原体の両面から情報収集し、解析する感染症発生動向調査が実施されている。この事業で把握する感染症には、診断した医師がすべての感染者の届け出を行う全数把握疾患と、発生動向の把握が必要なもののうち患者数が多数で、全数を把握する必要がない定点把握疾患がある。定点把握疾患は、指定された医療機関から報告された患者数で感染状況を把握するが、小児科のみが報告対象となる感染症もあり、全年齢での流行状況が把握できない感染症もある。また、感染症の原因となる病原体を知るには、感染者からの検体採取が必要となるが、その検体が得られない場合は病原体の流行状況は把握できない。

本研究では流入下水中のウイルス遺伝子を検出するためのEPISENS-M法の技法を習得した。この方法は流入下水中の遺伝子濃度が低いウイルスも検出できる高感度検出法である。今回は呼吸器感染症のウイルスである、SARS-CoV-2、A型インフルエンザウイルス、RSウイルスを対象に遺伝子濃度の定量を行った。SARS-CoV-2の遺伝子濃度は流域医療機関からの患者報告数の動向と同様の傾向を示し、年間を通して検出された。A型インフルエンザウイルスは流行期に検出され、亜型別では、下水中から検出された型と患者から検出された流行株の型に同じ傾向が見られた。RSウイルスは患者報告数が増加すると下水中の遺伝子濃度も増加する傾向が見られたが、患者報告数の動向と一致しない時期も見られた。これは、下水からの検出は子供から大人まで全年齢から排出されたウイルスであるのに対し、患者報告数は小児科からの報告のみによるため乖離が生じている可能性が示唆された。以上のことから、流入下水を用いたウイルス遺伝子調査は定点からの患者報告数を補完するデータとして流行状況の把握に有用であると考える。

今回は呼吸器系のウイルスの一部にターゲットを絞った調査であったが、今回の調査対象ウイルス以外にも検出可能な病原体が報告されている。令和7年4月7日から、急性呼吸器感染症の発生動向を把握するためのARIサーベイランスが始まった。ARIサーベイランス対象ウイルスについて、調査対象の拡大を検討したい。患者発生状況と流入下水中のウイルス遺伝子の検出状況を併せて解析することにより、感染症の流行状況を把握する手段となり、センターホームページに結果を掲載するなど、県民への情報提供、注意喚起につながるとものと考える。

また、ARIサーベイランスは新興・再興感染症が発生し増加し始めた場合に迅速に探知する目的もある。感染者からの検査が困難な場合でも、流入下水中のウイルス遺伝子を検出することにより、流行状況、蔓延状況が把握でき、県民へ迅速に注意喚起を行うことが可能と考える。

### 4 施策体系と研究課題との関連

施策体系	<p>本研究は、宮城県感染症予防計画第3章感染症対策の「第1 感染症の発生の予防のための施策」、「第2 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4 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。</p>
施策と研究課題との関連	<p>本研究の目的は、呼吸器系ウイルス感染症の動向を早期に探知することである。宮城県感染症予防計画では、感染症の発生及びまん延を防止していくことに重点を置いた事前対応型行政の構築を推進していることから、施策の達成のために必要な研究である。</p>
関係課担当班	疾病・感染症対策課

## 5 従事時間割合

		従事割合（従事日数／年）	
		計画	平均実績（令和5～6年度）
調査研究 代表者	鈴木 優子	16% ( 40日／年)	29% ( 72日／年)
共同研究者	佐々木 美江	10% ( 25日／年)	10% ( 25日／年)
	坂上 亜希恵	10% ( 25日／年)	10% ( 25日／年)
	大槻 りつ子	6% ( 15日／年)	2% ( 5日／年)
	沖田 若菜	0% ( 日／年)	2% ( 5日／年)
	茂庭 光	6% ( 15日／年)	2% ( 5日／年)
延従事日数		120人・日／年	137人・日／年

## 6 関係文献など

- 1) 厚生労働行政推進調査事業費補助金 新興・再興感染症及び予防接種政策推進研究事業 環境水を用いた新型コロナウイルス監視体制を構築するための研究 令和2年度 総括・分担研究報告書P106-107
- 2) 第63回新型コロナウイルス感染症対策アドバイザリーボード資料3-6②P1
- 3) 宮城県感染症予防計画
- 4) Ando, H. et al., Environ. Int., 107743 (2023).
- 5) Ando, H. et al. Sci. Total Environ., 157101 (2022).
- 6) Ando, H. et al. Sci. Total Environ., 162694 (2023).
- 6) 安藤宏紀・北島正章、モダンメディア. 2024; 70 (9) 22-31
- 7) (公社)日本水環境学会・(公財)日本下水道新技術機構「下水中の新型コロナウイルス遺伝子検出マニュアル新技術マニュアル」
- 8) 内閣感染症危機管理統括庁 下水サーベイランス  
<https://www.caicm.go.jp/citizen/corona/survey/surveillance.html>
- 9) 国土交通省「下水道における新型コロナウイルスに関する調査検討委員会報告書（令和6年3月）」<https://www.mlit.go.jp/mizukokudo/sewerage/content/001751842.pdf>

## 7 添付資料

別添のとおり

# 流入下水中ウイルス遺伝子の高感度精製法の導入と 呼吸器系ウイルス遺伝子濃度推移の把握

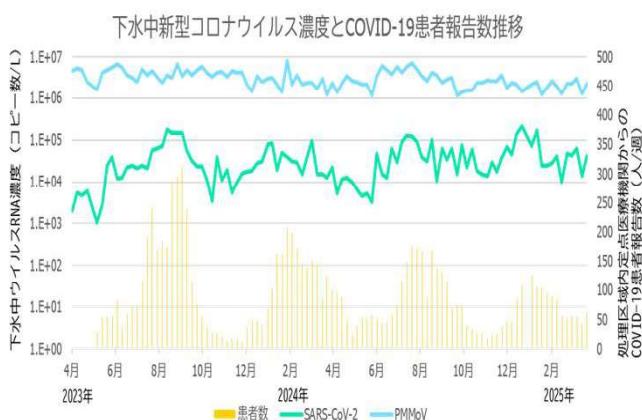
宮城県保健環境センター 微生物部

研究期間：令和5年度～令和6年度

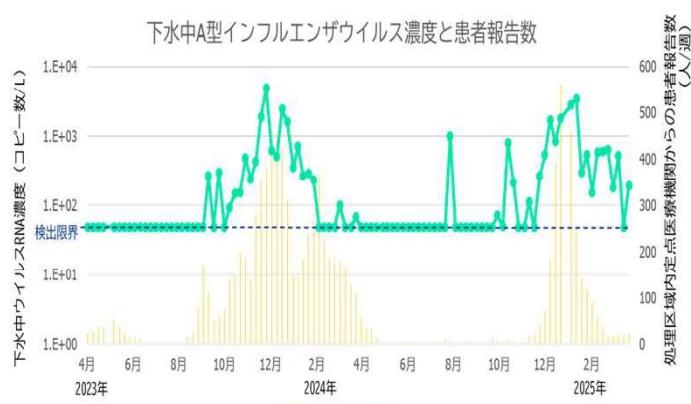
## 結果① 各種ウイルスの検出状況

	最小 ( コビ <sup>+</sup> 数/L )	最大 ( コビ <sup>+</sup> 数/L )	4-9月 陽性率	4-9月平均 ( コビ <sup>+</sup> 数/L )	10-3月 陽性率	10-3月平均 ( コビ <sup>+</sup> 数/L )
SARS-CoV-2	$1.06 \times 10^3$	$2.15 \times 10^5$	100 (51/51)	$4.26 \times 10^4$	100 (51/51)	$4.11 \times 10^4$
A型インフルエンザ ウイルス	N.D	$4.97 \times 10^3$	13.7 (7/51)	$3.35 \times 10$	49 (43/51)	$6.26 \times 10^2$
RSウイルス	N.D	$1.16 \times 10^4$	922 (47/51)	$1.20 \times 10^3$	92.2 (47/51)	$1.32 \times 10^3$

## 結果② ウィルス遺伝子濃度と患者報告数の比較



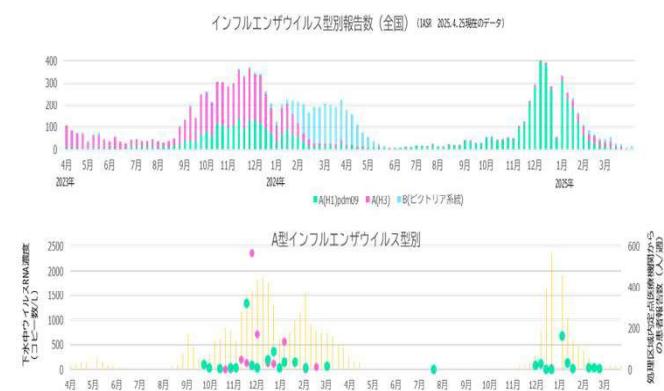
調査期間を通して遺伝子が検出された。患者報告数の増減により遺伝子濃度も増減した。



流行期に遺伝子が検出された。



患者報告数の増加により下水中濃度も増加傾向が見られた。



A型インフルエンザウイルスの型別では、感染者検体から検出された流行株と同じ傾向だった。

## 【まとめ】

高感度検出法であるEPISENS-M法を用いて流入下水中の呼吸器系ウイルス遺伝子の検出を行った。SARS-CoV-2遺伝子は患者報告数の動向と同様な傾向を示し、感染状況の把握に有用であることを確認した。A型インフルエンザウイルスは遺伝子濃度は低かったが流行期に遺伝子が検出され、型別では感染者から検出された型と同様な傾向を示した。RSウイルスは患者報告数増加により遺伝子濃度も増加傾向が見られ、流行期の立ち上がりを捉えるには有用である可能性が示唆された。増減と一致しないケースも見られたが、RSウイルス感染症は小児科のみでの把握感染症であり、全年齢からの排泄物を対象とする下水との対象のずれによる影響が考えられた。

本調査において高感度検出法での検査系を確立したことにより、ARIサーベイランスと併せて流入下水中のウイルス遺伝子の動向を監視することにより、感染症の流行状況の把握が可能となり、県民への情報提供、注意喚起につながる。

## 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	流入下水中ウイルス遺伝子の高感度精製法の導入と呼吸器系ウイルス遺伝子濃度 推移の把握(2023)				部名	微生物部	
節区分	計画額	最終予算額	決算額		算出基	础	
7 報償費	0	0	0		@	×	時間 0
8 旅費	91	97	1	下水中のウイルス遺伝子検出に関する研修	@	96 ×	1人 96
10-1 需用費	374	401	400	RNeasy PowerFecal Pro Kit iScript Explore One-Step RT and PreAmp Kit Quantitect Probe PCR Kit AAWP09000 MF DISC MCE PHILIC	@	81,000 × 2 箱	162,000
					@	94,000 × 1 箱	94,000
					@	52,900 × 1 箱	52,900
					@	54,300 × 1 箱	54,300
						計	363,200
						税込10%	399,520
13 使用料	0	0	0		@	×	往復 0
					@	×	往復 0
					@	×	往復 0
						計	0
18 負担金							
計	465	498	401				

## 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	流入下水中ウイルス遺伝子の高感度精製法の導入と呼吸器系ウイルス遺伝子濃度 推移の把握(2024)				部名	微生物部	
節区分	計画額	最終予算額	決算額		算出基	础	
7 報償費	0	0	0		@	×	時間 0
8 旅費	50	42	0		@	×	人 0
10-1 需用費	374	478	475	RNeasy PowerFecal Pro Kit(50) iScript Explore One-Step RT and PreAmp Kit Quantitect Probe PCR Kit(200) AAWP09000 MF DISC MCE PHILIC	@ 84,900 @ 94,000 @ 55,200 @ 57,000	× 2 箱 × 1 箱 × 2 箱 × 1 箱	169,800 94,000 110,400 57,000
						計	431,200
						税込10%	474,320
13 使用料	0	0	0		@ @ @	× × ×	往復 0 往復 0 往復 0
						計	0
18 負担金	24	24	0				
計	448	544	475				

## 課題評価調書（事後評価）

整理番号	経-終2	調査研究期間	令和5年度～令和6年度
研究課題	食品中高極性農薬の分析法開発及び残留実態調査		
調査研究分野	食品衛生、生活衛生の安全対策に関する研究	調査研究区分	経常研究
担当部	生活化学部	調査研究 代表者	阿部 美和
計画立案 課室・公所	保健環境センター		
共同研究機関 ・協力機関			
調査研究経費	総額1,974千円(令和5年度 755千円、令和6年度1,219千円)		

### 1 目的及び背景

グリホサートやゲルホシネートに代表される高極性農薬類は、原体、代謝物共に非常に極性が高く、その化合物特性から汎用性が高い一斉分析法では分析が困難であるため、これらを対象とした試験法の多くは個別分析法が示されている。しかし、これらの試験法は通知（平成17年1月24日発出）から15年以上経過しており、ジクロロメタンやクロロホルムなど発がん性のある溶媒類を使用する上、誘導体化など煩雑な前処理が必須となるなど、様々な問題を抱えている。当所においては、これまで残留農薬分析は一斉分析法のみで実施しており、高極性農薬類については検査依頼がなかったことから分析を行った事例はない。

グリホサートは、非選択性除草剤として作物への適用範囲も広く、入手が容易なため国内流通量も多い。また、海外では日本で禁止されているプレハーベスト・ポストハーベスト農薬としても多用されている。我が国では、2017年に残留基準を大幅に緩和しているが、その前年に厚生労働省が実施した、「食品、添加物等の規格基準の一部を改正する件（案）」（食品中の農薬（グリホサート）の残留基準設定）に関するパブリックコメントでは、約500件の意見が寄せられている。内容は、基準値緩和への反対意見がほとんどであり、食品の安全性、遺伝子組み換え食品との関係性、環境への影響を懸念するものであった。そうした中、2019年、市民団体が実施した輸入小麦を原料としたパン類のグリホサート残留調査において、検出事例が多数報告されたことなどから社会的な問題となっている。また、グリホサートは、東日本大震災により津波被害を受けた農地に、無人ヘリコプターにより雑草茎葉散布を行った経緯もある。

一方、農薬取締法の一部改正（2018）により、2021年度から「農薬の再評価」が始まっている。グリホサート系農薬は、ネオニコチノイド系農薬と同様に優先度が高い農薬となっており、評価終了後には基準値の見直し等が予想される。

近年、欧州ではEURL (European Union Reference Laboratory) が、極性農薬迅速分析法 (QuPPe法 : Quick Polar Pesticides Method) を開発し、各農薬の検証終了後にホームページを更新している。

EURLは、2003年に発表された残留農薬一斉分析法 (QuEChERS法 : Quick (高速)、Easy (簡単)、Cheap (低価格)、Effective (効果的)、Rugged (高い耐久性)、Safe (安全)) の問題点等を指摘改善し、2008年にEN法 (European EN 15662) として明文化した実績があり、当所では、2014年からEN法に着目し、検討を加えて確立した改良法を採用している。現在、QuEChERS法が世界共通化しつつあることから、今後、QuPPe法も広く普及していくものと推測される。

高極性農薬類については、分析事例も個別法が大半を占め、実施機関も限られていて報告事例数も少ない。また、いち早く分析に取り組んでいる分析機器メーカーでは、超臨界流体クロマトグラフやイオンクロマトグラフを使用していることから、液体クロマトグラフ-タンデム型質量分析装置を用いた多成分分析法を検討し、確立した分析法を用いて県内流通食品の残留実態調査を実施することを目的とする。

## 2 計画・成果

令和5年度 計画	<p>EURLで開発したQuPPe法を基に多成分分析法を検討する（5～7農薬4代謝物程度）。</p> <p>分析が可能となる農薬類を見極めるため、抽出溶媒及び分析カラム等について検討し、分析項目を決定した後、分析機器の最適化を実施する。</p> <p>令和4年度度から実施されている農薬の再評価結果により、基準が見直された食品や以前から基準値が高く設定されている農産物等を考慮し、代表的な食品を対象にして妥当性評価を実施する。</p>
令和5年度 成果	<p>Quppe法Method 1.9 を基にグリホサート、グリホシネートとその代謝物、エテボン、ホセチルとその代謝物(4農薬4代謝物)についてLC-MS/MSでの測定条件検討を行った。標準品による検量線では良好な直線性を確認した。また検討対象農産物での添加回収試験を行った。発がん性のある有機溶媒を使用しない抽出方法で、遠心分離条件や抽出温度等の抽出条件の検討や、フィルターろ過、限外ろ過、ミニカラムでの精製について検討した。しかし測定ピークの保持時間が徐々に短くなる事象を確認し、メーカーに問い合わせたところ、カラムの特性のため対応策がないことから令和5年度に測定条件の決定はできなかった。</p> <p>次年度に別のカラムを購入し、また事業の都合により令和6年度に測定機器が更新となることから測定条件の再検討を行うこととした。</p>
令和6年度 計画	<p>食品を買い上げ、確立した分析法を用いて残留実態調査を実施する。</p> <p>特に、東日本大震災時にグリホサートの空中散布を実施した周辺地域の調査を実施したいと考えているが、散布の有無及びその地域を特定することは困難と思われるため、津波による浸水被害を受けた地域を考慮して選定を行う。なお、検査する農産物は生産部局と情報共有を図り実施する。</p> <p>場合によっては、加工食品中の残留状況も併せて調査する。</p>
令和6年度 成果	<p>更新したLC-MS/MSの最適化を実施し、新規購入カラムLuna Polar Pesticides, (2023. 12改訂 Quppe法 Ver. 12. 2 Method M1. 11～12)を使用してグラジエント条件の検討を行った。標準品による検量線の直線性は良好だった。新たに購入したホセチルの安定同位体内部標準液から代謝物が検出されたことからホセチルは内部標準法ではなく絶対検量線法で行うこととし、抽出に定容操作を加えた。他の農薬についても絶対検量線法での妥当性も確認することとした。</p> <p>また検討対象農産物での添加回収試験では、抽出液の精製も再度検討したが、フィルターろ過のみでは抽出物の色や匂いが軽減されなかつたため、抽出液量を増やして希釈率を上げた。さらに限外ろ過、ミニカラム精製を検討し、グリホサートの回収ピーク面積値を比較したところ大差なかつたため、色や匂いが軽減されたOasis PRIME HLB ミニカラム精製を採用した。しかし、妨害ピークは軽減されなかつたため、測定イオンへの変更や保持時間をずらすためグラジエント条件の変更を行つた。グルホシネートとその代謝物MPPAは入手済みのN-アセチル-グルホシネートD<sub>3</sub>を内部標準として補正を行つたが、回収率が低くそれぞれの安定同位体の購入を試みたが輸入品のため購入先が見つからず断念し、N-アセチル-グルホシネートD<sub>3</sub>を内部標準とした。</p> <p>試料中濃度がそれぞれ0.01ppm、0.1ppmとなるよう標準液を添加し、農産物5品目（いちご、きゅうり、トマト、こまつな、ほうれんそう）の妥当性評価を実施した。ただしホセチルについては今回対象とした農産物の基準値が75～100ppmと高く、検討用試料中でも代謝物を0.1ppm以上確認したため一律基準値での妥当性評価は難しいと判断し、基準値の半量程度の添加試料濃度で妥当性評価を別途行った。</p> <p>内部標準法を用いることでグリホサートについてはすべての農産物で妥当性が得られたが、農薬や農産物によって妥当性が得られないものがあり、特にグルホシネートについては回収率が9～20%と低く、すべての農産物で妥当性が得られなかつた。</p> <p>使用量の多い高極性農薬の残留実態を調査するため買い上げ調査を行つた。震災後グリホサート散布の実績のある、主に津波浸水域のあつた県南沿岸部の市町を产地とする農産物5品目を10検体ずつ、計50検体買い上げ、妥当性の得られた農薬について残留農薬実態調査を行つた。各農薬の基準値を超過した検体はなく、定量下限</p>

値を超えて農薬を検出した検体はきゅうりのグリホサート0.01ppmのみであった。グリホサートは作物への適用範囲が広く国内流通量も多いが、今回の実態調査で基準値を超えたものではなく、定量下限値を超えたものは1件のみであった。そのため今回買い上げを行った生産地において、葉茎菜類、果菜類等の農産物に関してグリホサート使用は適正に管理されていることが推察され、散布の影響は確認されなかった。

### 3 波及効果

農薬数2～3と少ないが当所の検査法では測定できなかったグリホサートを含む高極性農薬の一斉分析法を確立した。通知による個別分析法と比較して作業工程が少なく、また発がん性のある有機溶媒も使用しないため、緊急事案発生時の迅速な分析体制の整備に向けても非常に有用な方法であると考える。

### 4 施策体系と研究課題との関連

施策体系	III 安全安心社会の実現 2 食の安全安心の確保－食品安全対策の推進－食品の衛生対策－食品検査対策事業－輸入食品検査強化事業
施策と研究課題との関連	<p>高極性農薬のうち、グリホサートは毒性が認められていないものの、グルホシネートはヒトに強い神経毒性を持ち、子どもの脳発達にも悪影響が確認されていることから、EUでは2018年に登録を抹消されている。</p> <p>また、例年実施している「みやぎ食の安全安心消費者モニターアンケート調査結果」では、食の安全性への不安について、「輸入食品の安全性」「環境汚染物質」「残留農薬」の項目が常に高い状況であり、厚生労働省が実施したグリホサートに関するパブリックコメントの結果からも、消費者の農薬に対する関心の強さが窺える。</p> <p>本研究において、高極性農薬の分析法を確立し、流通食品における現在の検出状況を把握とともに、これを最初の体系的な調査として基礎的なデータを収集することで、県民の食の安全安心の確保に資することができる。</p> <p>また、中国産冷凍餃子を原因とする薬物中毒事件（2007年）で検出されたメタミドホスや無差別連續毒殺事件（1985年）で混入されたパラコートは、入手も容易でいずれも高極性農薬に該当することから、薬物混入事案等の発生に備え、迅速に分析できる体制を整えることができる。</p> <p>分析手法を検討し、効率的かつ精度の高い分析法を新たに確立することは、保健環境センターの技術維持向上と研究体制の強化に繋がると考える。</p>
関係課担当班	食と暮らしの安全推進課食品安全班 みやぎ米推進課

## 5 従事時間割合

		従事割合（従事日数／年）	
		計画	平均実績（令和5～6年度）
調査研究 代表者	阿部 美和	10% ( 25日／年)	17.6% ( 44日／年)
共同研究者	千葉 美子	10% ( 25日／年)	4% ( 10日／年)
	樋口 玲奈	0% ( 日／年)	4% ( 10日／年)
延従事日数		50人・日／年	64人・日／年

## 6 関係文献など

- 1) EURL | Single Residue Methods | QuPPe Method (eurl-pesticides.eu) Version12.2
- 2) 穂山浩：食品中のグリホサート、グリホシネート及びその代謝物の残留分析法、ぶんせき、3、112-113、2022
- 3) Agilentアプリケーションノート：Agilent 1290 Infinity II Bio LCによる高極性農薬の一斉分析
- 4) Thermo Fisher Application Note : IC-HRMSを用いた高極性農薬一斉分析法の検討
- 5) Thermo Fisher Application Note : イオンクロマトグラフィー質量分析による食品中高極性農薬の高速分析
- 6) RESTEK Featured Application : LC - MS/MSを用いたRaptor Polar Xによるホウレンソウ中の極性農薬－ホウレンソウ中の極性農薬の迅速かつ頑健な直接分析法－
- 7) SCIEX食品/環境/薬毒物アプリケーション集：Food and Environmental  
食品および環境サンプルに含まれる高極性農薬の安定的かつ高感度な非誘導体化一斉分析法
- 8) SHIMADZU Application News : SFC/MSによる食品中高極性農薬の定量分析
- 9) Phenomenex:Analysis of Underivatized Anionic and Cationic Pesticides in Reversed Phase and HILIC Modes Using aSingle Mixed mode HPLC Column

## 7 添付資料

別添資料のとおり

# 食品中高極性農薬の分析法開発及び残留実態調査

## 背景と目的

当所の一斉分析法では測定できない高極性農薬がある  
通知法は個別法が多く、作業工程が煩雑で発がん性試薬も用いる  
高極性農薬（とくにグリホサート）は広く使用されている  
グリホサートは津波浸水域農地に散布された



## 簡便な一斉分析法の開発 県内流通農産物の残留農薬の買い上げ調査を行う

### 一斉分析法の開発

参考：QuPPe(Quick Polar Pesticides Method)法←EURL (European Union Reference Laboratory) によって開発された極性農薬迅速分析法（内部標準法）

検討対象農薬：エテホン、グリホサート、グルホシネート、ホセチル

検討対象農薬標準品：アミノメチルリん酸 (AMPA)、エテホン、グリホサート、グルホシネートアンモニウム、3-メチルホスフィコプロピオン酸 (MPPA)、N-アセチル-グルホシネート、ホセチルアルミニウム、亜リン酸 (ホスホン酸)

安定同位体標識標準品：グリホサート<sup>13</sup>C<sup>15</sup>N、N-アセチル-グルホシネートD<sub>3</sub>、エテホンD<sub>4</sub>、ホセチルアルミニウムD<sub>15</sub>

検討対象試料：いちご、きゅうり、こまつな、トマト、ほうれんそう



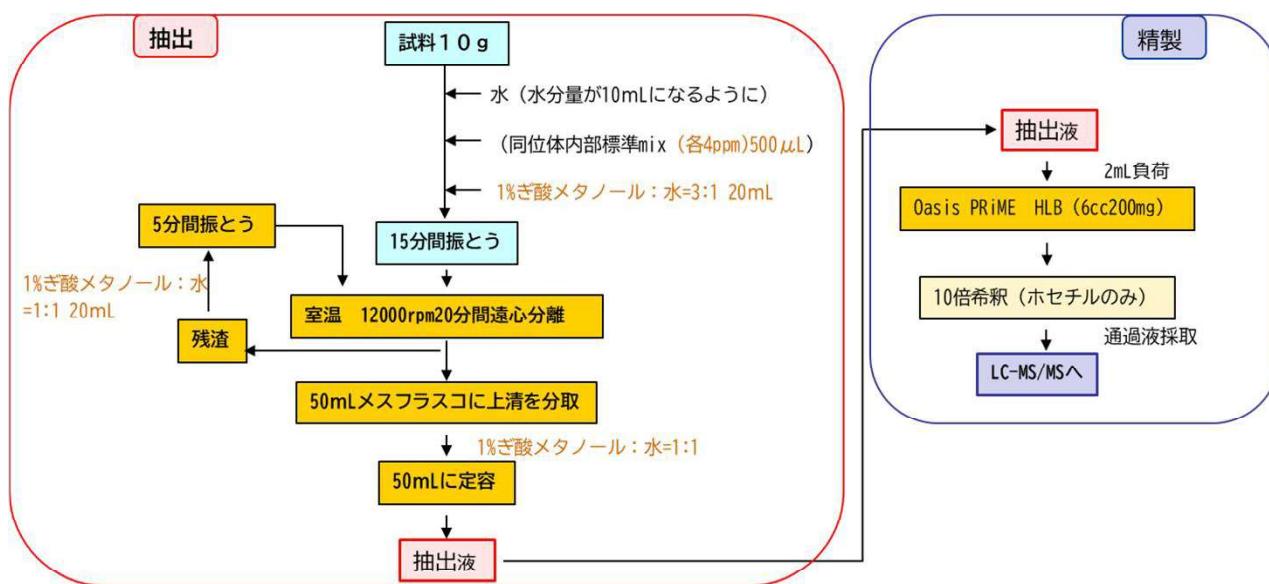
### 検討の結果

#### LC-MS/MSの測定条件

HPLC						
装置	AB Sciex	ExionLC AE System				
分析カラム	Luna Polar Pesticides	3.0μm,100mmx2.1mm				
移動相	A液：0.5%ぎ酸水溶液					
	B液：0.5%ぎ酸アセトニトリル					
グラジエント	min	0	2	6	9	9.1
	A %	90	90	10	10	90
	B %	10	10	90	90	10
カラム温度	40°C					
流量	0.3mL/min					
注入量	5μL					
MS/MS						
装置	AB SCIEX QTRAP5500+ System					
イオン化法	ESI(-)					
IS	-4500(V)					
TEM	650(°C)					

MRM条件				
Precursor ion	Product ion	DP(V)	CE(V)	
エテホン	143.024	106.997	-35	-13
グリホサート	167.88	62.968	-25	-30
グルホシネート	179.982	62.956	-75	-63
MPPA	151.015	62.952	-25	-48
N-アセチルグルホシネート	221.990	62.959	-35	-78
ホセチル	108.997	80.935	-25	-18
ホスホン酸	81.0000	79.000	-25	-23
エテホンD <sub>4</sub>	146.932	110.992	-60	-12
グリホサート1,2- <sup>13</sup> C <sup>15</sup> N	171.023	62.931	-75	-30
N-アセチルグルホシネートD <sub>3</sub>	225.002	62.968	-25	-72

#### 抽出精製フロー図



## 妥当性評価結果

	いちご	きゅうり	こまつな	トマト	ほうれんそう
絶体検量線法 農薬名／添加濃度	0.01ppm 0.1ppm 35ppm	0.01ppm 0.1ppm 50ppm	0.01ppm 0.1ppm 50ppm	0.01ppm 0.1ppm 50ppm	0.01ppm 0.1ppm 50ppm
エテホン	○ ○	○ ○	○ ○	○ ○	○ ○
グリホサート	× ×	× ×	× ×	× ×	× ×
グルホシネット	× ×	× ×	× ×	× ×	× ×
ホセチル	○	○	×	○	×
内部標準法 農薬名／添加濃度	0.01ppm 0.1ppm				
エテホン	○ ○	○ ○	○ ○	○ ○	○ ○
グリホサート	○ ○	○ ○	○ ○	○ ○	○ ○
グルホシネット	× ×	× ×	× ×	× ×	× ×

※ホセチルは代謝物のホスホン酸残留値が高く一律基準値での妥当性評価は適さなかったので他の農薬とは別に基準値の半量値を添加して妥当性評価を行った

## 残留農薬買い上げ調査

### 調査品

調査品	いちご	きゅうり	こまつな	トマト	ほうれんそう	試料全体
件数	10	10	10	10	10	計50
購入期間	R6.3～R7.3	R6.8～R7.3	R6.3～R7.3	R6.8～R7.3	R6.3～R7.3	R6.3～R7.3
市町数	6	(市町村名不明1)	5	6	5	10

### 実態調査対象農産物生産地および件数

名取	10件	亘理	10件	岩沼	8件	仙台	8件	山元	8件
石巻	2件	大河原	1件	大崎	1件	白石	1件	県名のみ	1件

- ・グリホサート散布地域および農産物栽培地の特定は難しいため、主に津波浸水域のある市町が生産地の農産物を一般小売店から購入した
- ・同一市町は時期を変えて購入した

## 調査結果

	いちご		きゅうり		トマト		こまつな		ほうれんそう	
	結果	基準値(ppm)	結果	基準値(ppm)	結果	基準値(ppm)	結果	基準値(ppm)	結果	基準値(ppm)
エテホン	検出せず	2	検出せず	2	検出せず	2	検出せず	0.05	検出せず	0.05
グリホサート	検出せず	0.2	0.01ppm:1件	0.5	検出せず	0.2	検出せず	0.2	検出せず	0.2
ホセチル	trace1件	75	検出せず	100	検出せず	100				

## 波及効果

- ・各農薬の通知法は抽出精製までに多くの過程が必要であるため、遠心分離とミニカラム精製のみで測定可能な当法は有用と考える
- ・基準を超過した残留農薬は無く、今回買い上げを行った生産地において農産物への当該農薬の使用は適切に管理されていると推察される
- ・グリホサートは50件中1件のみで検出され、グリホサート散布の影響は、現在市販されている葉茎菜類、果菜類等の農産物に対しては確認されなかつた

## 所 要 額 積 算 内 許

保健環境センター (単位:千円)

調査研究 課題名		食品中高極性農薬の分析法開発及び残留実態調査(2023)					部名	生活化学部	
		計画額	最終予算額	決算額	算	出	基	础	
8 旅費	100	49	45	第46回農薬残留分析研究会(長野市:1泊2日)	@	44,360	×	1人	44,360
10-1 需用費	667	718	705	(アミノメチル)りん酸標準物質 100mg グルホシネートアンモニウム標準品 100mg 3-(メチルホスフィニコ)プロピオン酸標準品 200mg エチホン標準品 200mg グリホサート標準物質(認証標準物質) 100mg ホセチルーアルミニウム標準品 250mg ホスホン酸標準品 250mg	@	17,300	×	1 個	17,300
					@	6,200	×	1 個	6,200
					@	16,250	×	1 個	16,250
					@	17,100	×	1 個	17,100
					@	6,900	×	1 個	6,900
					@	18,900	×	1 個	18,900
					@	11,200	×	1 個	11,200
								小計	93,850
								税込10%	103,235
				グルホシネート-N-アセチル標準品 N-アセチル-d <sub>3</sub> -グルホシネート水和物	@	60,000	×	1 個	60,000
					@	73,000	×	1 個	73,000
								小計	133,000
								税込10%	146,300
				RaptorPolarX 30 × 2.1mm 粒子径2.7 μm RaptorPolarX EXPガードカラムカートリッジ EXPダイレクトコネクトホルダ LC不動態化溶液 1mL	@	83,500	×	1 個	83,500
					@	74,600	×	1 個	74,600
					@	72,850	×	1 個	72,850
					@	12,300	×	1 個	12,300
								小計	243,250
								税込10%	267,575
				グリホサート13C2,15N 1mg	@	60,000	×	1 個	60,000
								小計	60,000
								税込10%	66,000
				メチレンジスルホン酸 東京化成 M0843 5g	@	22,100	×	1 個	22,100
								小計	22,100
								税込10%	24,310
				ぎ酸(99%)LC/MS用 50mL	@	9,180	×	1 本	9,180
								小計	9,180
								税込10%	10,098
				スクリュー キャップ付きPPメスフラスコ 25mL メスフラスコ 白 スタンダード 30mL 遠沈管 15mL コーニング No.430766 500入り オールプラスチックシリングルアーロック 2mL 100入り		1,150		10 個	11,500
						2,540	×	2 個	5,080
						24,560	×	1 箱	24,560
						3,250	×	1 箱	3,250
								小計	44,390
								税込10%	48,829
				ドライアイスペレット 20kg ドライアイスペレット 20kg	@	9,970	×	1 箱	9,970
					@	11,020	×	1 箱	11,020
								小計	20,990
								税込10%	23,089
				高極性農薬分析法検討試料 きゅうり ミニトマト こまつな	@	230	×	3 袋	690
					@	290	×	4 パック	1,160
					@	220	×	3 袋	660
								小計(税込8%)	2,510
				有機いちご250g × 4P	@	7,778	×	1 箱	7,778
								小計(税込8%)	8,400
				高極性農薬実態調査用試料 こまつな いちご	@	100	×	2 袋	200
					@	700	×	1 箱	700
								小計(税込8%)	900
				こまつな こまつな こまつな ほうれんそう ほうれんそう ほうれんそう	@	90	×	1 袋	90
					@	80	×	2 袋	160
					@	95	×	2 袋	190
					@	130	×	2 袋	260
					@	110	×	2 袋	220
					@	120	×	2 袋	240
								小計	1,160
								税込8%	1,252

				こまつな ほうれんそう いちご	@ 100 × 2 袋 200
				いちご	@ 120 × 2 袋 240
					@ 360 × 2 パック 720
					小計(税込8%) 1,160
18 負担金	8	8	5	第46回農薬残留分析研究会参加費(会員)	@ 5,000 × 1 人 5,000
計	775	775	755		計 704,738

## 所 要 額 積 算 内 許

保健環境センター (単位:千円)

調査研究 課題名	食品中高極性農薬の分析法開発及び残留実態調査(2024)				部名	生活化学部	
節区分	計画額	最終予算額	決算額	算出基	算出基	算出基	算出基
8 旅費	100	130	73	第41回農薬環境科学、第47回農薬留分析 合同研究会(徳島市:2泊3日))	@ 72,240 ×	1 人	72,240
10-1 需用費	1059	1143	1141	Luna Polar Pesticides 3.0um,100mmx2.1mm SecurityGuard ULTRA Cartridges 3個入 SecurityGuard ULTRA Holder	@ 138,000 × @ 83,520 × @ 28,000 ×	1 個 1 袋 1 個	138,000 83,520 28,000
						小計	249,520
						税込10%	274,472
				Phenomenex security LINK AJ1-2411 UHPLCフィッティング2S PEEKメイルナット(5個入り)	@ 51,600 × @ 8,350 × @ 3,450 ×	1 個 3 個 1 袋	51,600 25,050 3,450
						小計	80,100
						税込10%	88,110
				ホセチルーアルミニウム-d <sup>15</sup>	@ 195,500 ×	1 個	195,500
						小計	195,500
						税込10%	215,050
				エテホン-d <sup>4</sup>	@ 72,960 ×	1 個	72,960
						小計	72,960
						税込10%	80,256
				スクリュー・キャップ付PPメスフラスコ 25mL	@ 1,340 ×	20 個	26,800
						小計	26,800
						税込10%	29,480
				グリホサート13C2,15N 1mg	@ 70,200 ×	1 個	70,200
						小計	70,200
						税込10%	77,220
				Oasis PPIME HLB 6cc Vac Cartrige 200mg 30本入 ぎ酸(99%)LC/MS用 50mL	@ 30,330 × @ 10,100 ×	6 箱 2 本	181,980 20,200
						小計	202,180
						税込10%	222,398
				アセトニトリル-Plus-LC/MS用 3L メタノール-Plus-LC/MS用 3L コニカルチューブ 15mL 500本 クアラテック手袋スーパークリップ S 100枚	@ 16,000 × @ 4,000 × @ 23,450 × @ 3,150 ×	2 本 2 本 1 箱 7 個	32,000 8,000 23,450 22,050
						小計	85,500
						税込10%	94,050
				ドライアイスペレット 20kg ドライアイスペレット 20kg	@ 11,020 × @ 10,000 ×	1 箱 3 箱	11,020 30,000
						小計	41,020
						税込10%	45,122
				分析用試料購入			
				きゅうり	@ 100 ×	1 袋	100
				きゅうり	@ 140 ×	1 袋	140
				きゅうり	@ 120 ×	1 袋	120
				トマト	@ 245 ×	1 袋	245
				トマト	@ 150 ×	1 袋	150
						小計	755
						税込8%	815
				きゅうり	@ 100 ×	1 袋	100
				トマト	@ 220 ×	1 袋	220
				トマト	@ 130 ×	1 袋	130
						小計(税込8%)	450
				トマト	@ 130 ×	1 袋	150
						小計(税込8%)	150
				きゅうり	@ 150 ×	1 袋	234
						小計(税込8%)	234
				きゅうり	@ 250 ×	1 袋	250
						小計	250
						税込8%	270
				きゅうり	@ 200 ×	1 袋	200

				トマト	@	356 ×	1 袋 小計(税込8%)	356 556
				きゅうり トマト	@	150 ×	1 袋	150
					@	380 ×	1 袋 小計	380 530
							税込8%	572
				ほうれんそう	@	213 ×	1 袋 小計(税込8%)	213 213
				こまつな	@	80 ×	1 袋 小計	80 80
							税込8%	86
				トマト	@	280 ×	2 袋 小計(税込8%)	560 560
				こまつな	@	100 ×	1 袋	100
				ほうれんそう	@	148 ×	1 袋	148
				こまつな	@	100 ×	1 袋	100
				トマト	@	250 ×	1 袋 小計	250 598
							税込8%	645
				ほうれんそう	@	130 ×	1 袋	130
				ほうれんそう	@	130 ×	1 袋	130
				いちご	@	700 ×	2 パック 小計(税込8%)	1,400 1,660
				いちご	@	750 ×	2 パック 小計(税込8%)	1,500 1,500
				ほうれんそう	@	170 ×	4 袋 小計	680 680
							税込8%	734
				いちご	@	380 ×	2 パック	760
				こまつな	@	228 ×	2 袋 小計(税込8%)	456 1,216
				いちご	@	1,000 ×	1 箱 小計(税込8%)	1,000 1,000
				きゅうり	@	400 ×	1 袋	400
				トマト	@	300 ×	1 袋	300
				いちご	@	600 ×	2 パック	1,200
				いちご	@	500 ×	2 パック 小計	1,000 2,900
							税込8%	3,132
				こまつな	@	140 ×	2 袋	280
				いちご	@	450 ×	1 パック	350
				きゅうり	@	120 ×	1 袋 小計(税込8%)	120 750
							計	1,140,701
18 負担金	8	8	5	第41回農薬環境科学、第47回農薬留分析 合同研究会 参加費(会員)	@	5,000 ×	1 人	5,000
計	1167	1281	1219					

## 課題評価調書（事後評価）

令和7年10月28日

整理番号	経-終3	調査研究期間	令和5年度～令和6年度
研究課題	宮城県におけるPM2.5高濃度予測時の成分分析		
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	調査研究区分	経常研究
担当部	大気環境部	調査研究 代表者	庄司 美加
計画立案 課室・公所	保健環境センター		
共同研究機関 ・協力機関			
調査研究経費	総額629千円（令和5年度：317千円 令和6年度：312千円）		

### 1 目的及び背景

呼吸器・循環器への影響が懸念されている微小粒子状物質（以下「PM2.5」という）に係る対策を検討するため、PM2.5の成分等の詳細な分析が必要とされている。

本県では、PM2.5の環境基準の制定及び分析マニュアル等の策定を受け、平成23年度からPM2.5の質量濃度の自動連続測定を開始し、平成24年度からは季節毎に年4回の試料採取を行い、成分分析（イオン成分、無機元素成分及び炭素成分）を実施しているが、その成分分析結果だけでは、詳細な発生源の推測や寄与割合の把握が困難であった。そこで、平成28年度から令和3年度までPM2.5の成分分析項目にレボグルコサン及び有機酸を追加して分析及び解析を行い、地点別のPM2.5寄与割合を推定したところ、発生源として6因子を推定することができ、また、地点別、季節別の特徴を有することがわかつた。

より詳細な発生源推定には、高濃度等のイベント発生時も含めた成分分析が有効であるが、試料採取用フィルターの事前準備に3日程度かかるため、突発的にピンポイントで試料採取を行うことは大変困難であり、これまでの調査では偶発的な場合を除き、高濃度時の詳細な成分分析データはほとんど得られていない。

当所では、令和2年及び令和3年度に機械学習を用いた大気汚染物質濃度予測について調査研究を行い、ピンポイントな地点におけるPM2.5質量濃度の予測及び7日後以降の予測手法を確立できることから、その手法を用いてPM2.5質量濃度が高濃度となる日の予測を行い、高濃度時に焦点をあてた試料採取及び成分分析を行うことで、高濃度時の発生要因を推定し、より効果的なPM2.5対策に繋げることを目的とする。

### 2 計画・成果

令和5年度 (計画)	既往の研究により、予測された濃度と実際の濃度との相関係数が高くなることが確認できた方法を用いて、以下の条件で予測を行い、PM2.5が比較的高濃度となる日時（高濃度予測日）を抽出する。 <input type="checkbox"/> 予測対象地点：石巻西局、名取自排局及び保健環境センター <input type="checkbox"/> 学習データ：各予測対象地点及び周辺固定測定局の過去3年間のPM2.5データ並びに反応速度定数の温度関数の項( $T^{-0.5}$ ) × $\exp(-E/RT)$ 抽出されたPM2.5の高濃度予測日に、成分分析用PM2.5試料採取装置で試料を採取し、イオン成分、無機元素、炭素成分、有機炭素成分の代表的マーカーとされるレボグルコサン、マンノサン及び有機酸の分析を行う。

	<p><b>(1)方法</b></p> <p><b>1) 調査地点及び調査期間</b></p> <p>定期調査として、石巻西局、名取自排局の2地点で、季節毎に年4回、14日間試料採取を行った。これに加え、高濃度の試料を採取するため、学習データとして、保健環境センター周辺測定局の苦竹局のデータを用い、既報で報告した機械学習用ソフトウェア（予測環境：Python、TensorFlow、Numpy、Pandas、Jupyter notebook、Anaconda予測手法：ニューラルネットワーク）を使用して予測を行った。また、全国の地方環境研究所や電力中央研究所などの共同研究によって、独立行政法人国立環境研究所が開発した大気汚染予測システムVENUS(Visual atmospheric ENvironment Utility System)について、計画策定時に比べて、結果表示や予測期間が改良され、利便性が高まったことから、高濃度情報を得る手段を増やすため、併用して予測を行った。高濃度が予測された令和5年7月～9月、11月、令和6年2月に臨時調査として試料を採取した。</p> <p><b>2) 試料採取方法及び調査対象物質</b></p> <p>試料採取は、調査地点毎にFRM-2025i(Thermo Fisher Scientific社製)を2台使用し、PTFE及び石英フィルターを用い、流量16.7L/分で24時間行った。調査対象物質は、質量濃度、有機炭素(OC)、元素状炭素(EC)、水溶性有機炭素(WSOC)、イオン成分、無機元素、レボグルコサン、マンノサン及び有機酸(コハク酸、ピノン酸、リンゴ酸、マレイン酸、アゼライン酸、スペリン酸)とした。</p> <p><b>3) 測定方法</b></p> <p>レボグルコサン、マンノサン及び有機酸については既報に従い、その他の成分については環境省マニュアルに準拠した。</p> <p><b>(2)結果</b></p> <p>令和6年度成果に合わせて記載する。</p>
令和6年度 (計画)	<p>令和5年度と同様の抽出条件により、令和5年度分の学習データを追加し、PM2.5の高濃度予測日を抽出する。</p> <p>抽出されたPM2.5の高濃度予測日に、成分分析用PM2.5試料採取装置で試料を採取し、イオン成分、無機元素、炭素成分、有機炭素成分の代表的マーカーとされるレボグルコサン、マンノサン及び有機酸の分析及び解析を行う。</p>
令和6年度 (成果)	<p><b>(1)方法</b></p> <p>令和5年度と同様に、令和5年度分の学習データを追加して予測を行い、定期調査に加えて、臨時調査として令和6年4～6月、令和7年2月に試料を採取し、分析及び解析を行った。</p> <p><b>(2)結果</b></p> <p><b>1) 高濃度予測の結果</b></p> <p>今回、高濃度予測をするにあたり、PM2.5の1日平均値が<math>20 \mu\text{g}/\text{m}^3</math>以上を目安としたが、高濃度のサンプリングができた日は少なかった。</p> <p>これは、予測対象とする高濃度の日が県内において少なかったことや、機械学習の予測日と値が、実測値との間でややずれが生じていたこと、またVENUSによる予測では予測値と実測値に差があり、高濃度とならなかつたことが原因として挙げられた。</p> <p>機械学習の予測は、既往の研究においては、特定の測定局の1週間後のPM2.5濃度1時間値の予測値と実測値について強い相関を得ていたが、今回の調査では、石巻西局、名取自排局の1時間値の相関は0.77～0.85だったものの、1日平均値の相関は0.21～0.22だった。さらにセンター屋上でのサンプリングのため、近傍の苦竹局の予測を用いたところ、1時間値の相関が0.55、1日平均値で0.25だった。1日平均値に該当する24時間フィルターに捕集したPM2.5を測定しているため、質量濃度が平均化されたことにより相関が弱くなったと思われた。</p>

	<p><b>2) 寄与割合が高いと思われる発生要因が推定された事例</b></p> <p><b>①令和5年春季の高濃度事例（黄砂）</b></p> <p>石巻西局において、令和5年5月11日～5月24日に試料採取し、成分分析を実施したところ、5月22日にPM2.5質量濃度が<math>40.2 \mu\text{g}/\text{m}^3</math>と高濃度であった。成分の内訳をみると、無機元素の割合が高く、その中でもアルミニウム、カルシウム、鉄の含有率が前後の日と比較して高かった。また、土壤由来のPM2.5の指標成分とされているスカンジウム、チタンについても、含有率が高かった。後方流跡線解析（観測地点に到達した空気塊がどこから来たのか時間を遡って解析する方法）の結果から中国大陆内陸部からの移流が確認され、5月22日は仙台をはじめ全国各地で黄砂が観測されていることから、PM2.5質量濃度が高かった原因は黄砂であると考えられた。</p> <p>また、5月18日もPM2.5質量濃度が<math>32.8 \mu\text{g}/\text{m}^3</math>と高濃度であったが、5月22日とは異なり、無機元素の割合は少ないがOC及び硫酸イオンの割合が高く、後方流跡線解析の結果において中国大陆沿岸部からの移流が確認されたことから、2週間の中の2回の高濃度は異なる発生要因であることが推察された。</p> <p><b>②令和5年秋季の高濃度事例（野焼き等のバイオマス燃焼）</b></p> <p>石巻西局において、令和5年10月26日～11月1日に試料採取し、成分分析を実施したところ、11月1日のPM2.5質量濃度が<math>17.9 \mu\text{g}/\text{m}^3</math>と採取期間内で最も高濃度であり、成分の内訳では、OCが高い割合を占めた。二次生成有機粒子の指標とされる水溶性有機炭素の有機炭素成分に占める割合（WSOC/OC）は低く、一次粒子の寄与が考えられたことと、レボグルコサン濃度が高かったことから、バイオマス燃焼が要因の一つとして考えられた。さらに、レボグルコサン／マンノサン比は広葉樹及び農業残渣の燃焼では高くなる(&gt;10)と報告されているが、11月1日のレボグルコサン／マンノサン比は18.4であり、収穫後の稻わら、落葉、その他のバイオマス燃焼の影響を受けている可能性が示唆された。後方流跡線の解析結果から、大陸からの越境汚染の影響は受けでおらず、常時監視結果のPM2.5質量濃度1時間値及び風向風速のデータから、発生源は国内や近隣の可能性が推察された。</p>
令和6年度 (成果)	<p><b>③令和6年春季の高濃度事例（二次生成）</b></p> <p>機械学習による予測で令和6年5月18日及び5月26日、VENUSによる予測で5月19日～20日及び5月23日～24日に高濃度が予想されたことから、5月16日～25日に、保健環境センター屋上において、試料を採取し、成分分析を実施した。最も質量濃度が高かったのは、5月23日の<math>14.5 \mu\text{g}/\text{m}^3</math>で、次いで5月19日の<math>13.2 \mu\text{g}/\text{m}^3</math>であった。成分濃度は、両日とも硫酸イオンが最も高く、次いでOCであり、二次生成有機粒子の指標とされる水溶性有機炭素の有機炭素成分に占める割合（WSOC/OC）は、質量濃度が高かった5月19日及び23日において、高い割合であった。</p> <p>春季に高くなる光化学オキシダント(0x)との関係をみるため、保健環境センターとその近傍にある中野局の常時監視結果の0xについて、24時間(10時～翌10時)平均濃度及び最高濃度データの関係をみると、挙動が似ており、特に質量濃度が高かった5月19日では、0x24時間平均濃度及び最高濃度が最も高かった。0xが生成される条件では、有機物や<math>\text{SO}_2</math>の酸化が促進されることが知られており、二次生成により質量濃度が上昇した可能性が考えられた。</p> <p>これらの要因として、後方流跡線解析結果からは、中国大陆及び朝鮮半島からの気塊の移動が確認できたため、越境汚染の影響を受けたとともに、光化学反応による二次生成が寄与していたものと推察された。</p> <p><b>(3)まとめ</b></p> <p>調査研究期間中に高濃度日はあまりなかったが、比較的高濃度日の成分分析の結果から、寄与割合が高いと思われる発生要因が異なる特徴的なデータを得ることができた。</p>

### 3 波及効果

PM2.5が高濃度日の試料を採取し、成分分析することで、採取地点、時期の特徴などを踏まえた高濃度時の要因を推定することができ、PM2.5の削減に繋がる施策の検討のための基礎データとなることが期待できる。

今後もさらにデータの蓄積を図り、発生要因別に類型化するとともに、高濃度日の高濃度地点の時間的な広がりや、経年変化などについて組み合わせて解析していくことで、より効果的なPM2.5対策に繋がると考える。

### 4 施策体系と研究課題との関連

施策体系	<p>■宮城県環境基本計画 ○安全で良好な生活環境の確保 ・大気環境の保全 安全な大気環境の保全、さわやかな大気環境の保全</p>
施策と研究課題との関連	<p>環境省では、PM2.5の曝露による呼吸器疾患等の健康影響について、公衆衛生の観点から、これらの健康リスクの低減を図り、さらなる健康の保護を目指すため環境基準を設けた（平成21年9月）。これにより大気汚染常時監視に係る事務処理基準においてPM2.5の自動測定機による測定及び成分分析について規定され、全国の都道府県ではそのモニタリングの体制整備が進められている。</p> <p>本県では、自動測定機を段階的に整備し質量濃度の連続測定を実施するとともに、平成24年度からは成分分析を行っており、データ解析を進めているところであるが、試料採取は、環境省から示される試料捕集期間（季節毎、年4回）に行っており、この期間以外のデータはほとんどない状況である。</p> <p>そこで、予測する手法を用いて高濃度日の試料採取を行うことができれば、高濃度時の要因を推定することができ、また、PM2.5の削減対策の基礎資料として活用できる。</p>
関係課担当班	環境対策課

### 5 従事時間割合

調査研究代表者	共同研究者	従事割合（従事日数／年）	
		計画	平均実績（R5～R6年度）
小川 武	吉川 弓林	8%（21日／年）	11%（27日／年）
	大熊 一也	%（／年）	19%（48日／年）
庄司 美加	菱沼 早樹子	8%（21日／年）	17%（43日／年）
	天野 直哉	7%（10日／年）	2%（5日／年）
	太田 萁	4%（10日／年）	22%（33日／年）
	椎名 美月	7%（18日／年）	18%（44日／年）
	戸澤 亜紀	6%（15日／年）	4%（9日／年）
	杉山 あかり	%（日／年）	18%（45日／年）
			10%（26日／年）
			5%（12日／年）

市原 光	% ( 日／年)	1% ( 3日／年)
飯塚 溪介	% ( 日／年)	3% ( 9日／年)
延従事日数	116人・日／年	304人・日／年

## 6 関係文献など

- 1) 太田耕右、第35回宮城県保健環境センター研究発表会 「機械学習による大気汚染物質 濃度の予測」
- 2) 太田ら、第36回宮城県保健環境センター研究発表会 「機械学習を用いた移動測定局における大気汚染物質濃度の予測」
- 3) 宮城県保健環境センターワン報 No.38 2020 「PM2.5におけるレボグルコサンと有機酸の一斉分析法の検討」
- 4) 宮城県保健環境センターワン報 No.39 2021 「ディープラーニングを用いた移動測定局におけるPM2.5濃度の予測」
- 5) 吉川ら、第37回宮城県保健環境センター研究発表会 「宮城県におけるPM2.5中のレボグルコサンと有機酸の解析」
- 6) 小川ら、第37回宮城県保健環境センター研究発表会 「機械学習を用いた移動測定局における光化学オキシダントの予測」
- 7) 環境省、大気中微小粒子状物質(PM2.5)成分測定マニュアル 無機元素測定法 第2版、2019年5月
- 8) 畠山ら、岩手県環境保健研究センターワン報 第23号 2023 「微小粒子状物質(PM2.5)濃度の地域的な特性に関する研究」
- 9) 気象庁 : 2023年黄砂観測日および観測地点の表  
[https://www.data.jma.go.jp/env/kosahp/kosa\\_table\\_2023.html](https://www.data.jma.go.jp/env/kosahp/kosa_table_2023.html)
- 10) 上野ら、J. Jpn. Soc. Atmos. Environ Vol. 46 No. 2 (2011)
- 11) 戸澤ら、第40回宮城県保健環境センター研究発表会「宮城県における大気中の微小粒子状物質(PM2.5)成分調査結果」
- 12) 独立行政法人国立環境研究所 大気汚染予測システム VENUS(visual atmospheric environment utility system)  
<http://venus.nies.go.jp>
- 13) Cheng, Y. , Engling, G. , He, K. B. , Duan, F. K. , Ma, Y. L. , Du, Z. y. , Liu, J. M. , Zheng, M. , Weber, R. J. : Biomass burning contribution to Beijing aerosol, *Atomos. Chem. Phys.*, 13, 7765–7781 (2013)

## 7 添付資料

別添のとおり

# 宮城県におけるPM2.5高濃度予測時の成分分析

研究期間：令和5年度～令和6年度

宮城県保健環境センター 大気環境部

## 研究の背景と目的

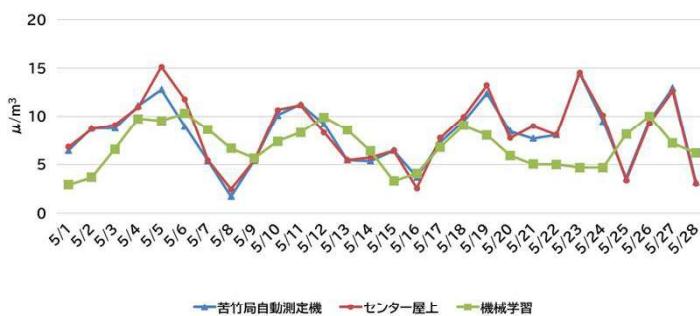
- ◆ PM2.5には、人為的起源と自然起源由來のものが存在し、発生源や成分割合に特徴が見られる。PM2.5の高濃度時に試料採取し成分分析を行うことで、発生要因を推定することが期待できる。発生要因が分かれば、効果的な削減対策方法を取ることが可能になる。
- ◆ 試料採取を行う際は、フィルターの事前準備に3日程度かかるため、高濃度日当日からでは試料採取は困難となっている。
- ◆ 機械学習等の予測手法により、7日後のPM2.5を予測し、高濃度になると予測された日に合わせ試料採取し、成分分析を行うことにより、高濃度時の発生要因の推定に繋げる。



## 研究成果

### 【機械学習による高濃度予想】

R6年度センター屋上PM2.5質量濃度(5/1～5/29)



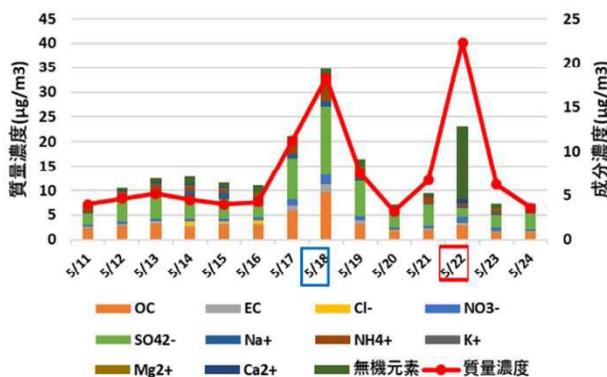
### 【寄与割合が高いと思われる発生要因が推定された事例】

#### 事例1：令和5年 春

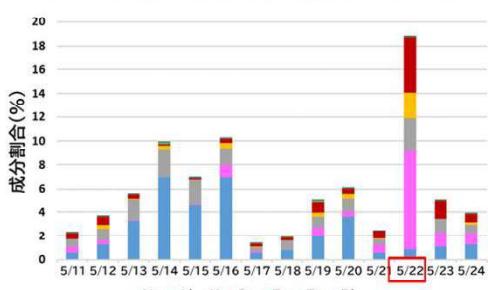
令和5年5月の石巻西局での高濃度は、5月18日と5月22日の2回あったが、

22日は成分の内訳をみると、無機元素の割合が高く、その中でもアルミニウム、カルシウム、鉄の含有率が前後の日と比較して高かった。また、土壌由来のPM2.5の指標成分としているスカンジウム、チタンについても含有率が高かった。後方流跡線解析の結果から中国大陸内陸部からの移流が確認され、黄砂が原因と推定された。

#### PM2.5質量濃度及び成分濃度 令和5年5月 石巻西局

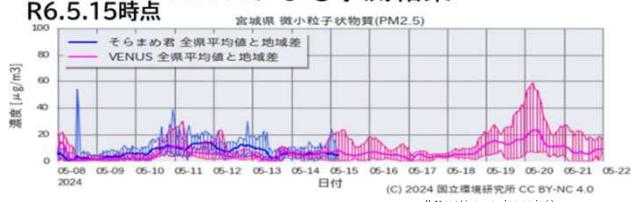


#### PM2.5質量濃度に対する無機元素の割合

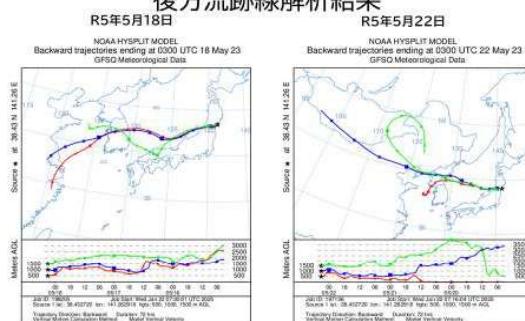


今回、高濃度予測をするにあたり、PM2.5の1日平均値が $20\mu\text{g}/\text{m}^3$ 以上を目安としたが、高濃度のサンプリングができる日は少なかった。

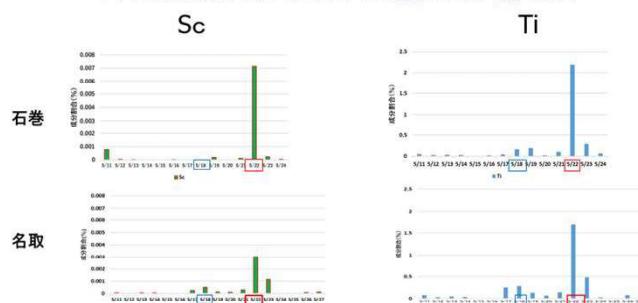
#### 大気汚染予測システム VENUSによる予測結果



#### 後方流跡線解析結果

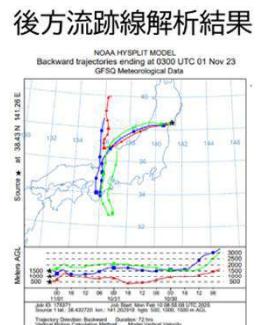
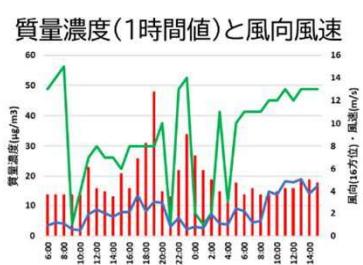
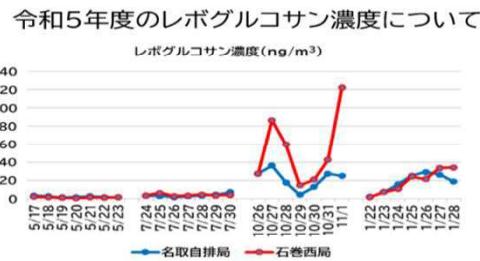


#### PM2.5質量濃度に対するスカンジウム(Sc)とチタン(Ti)の割合



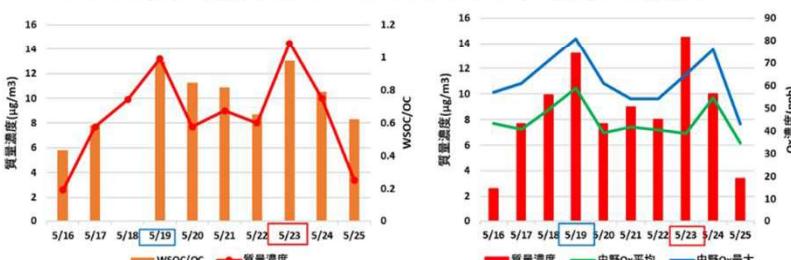
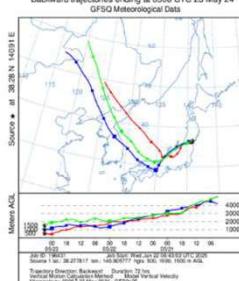
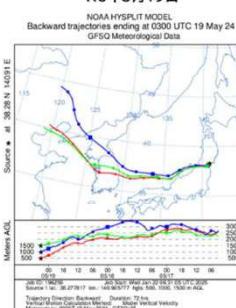
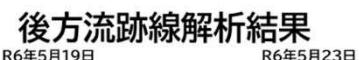
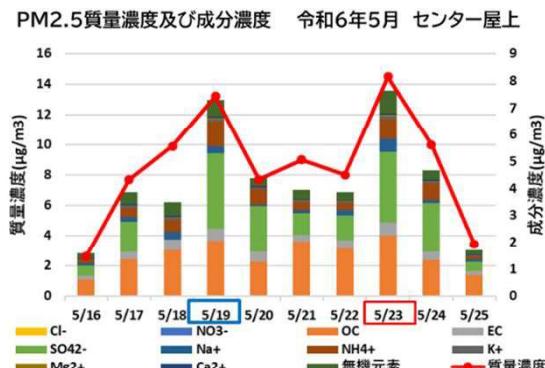
## 事例2：令和5年 秋

令和5年10月の石巻西局での高濃度は、成分の内訳では、OCが高い割合を占めた。二次生成有機粒子の指標とされる水溶性有機炭素の有機炭素C/OC)は低く、一次粒子の寄与が考えられたことと、レボグルコサン濃度オマス燃焼が要因の一つとして考えられた。野焼き等が原因と推定された。



### 事例3：令和6年 春

**例3：令和6年 春** 高濃度予測で採取した令和6年5月のセンター屋上での高濃度は、成分濃度は、両日とも硫酸イオンが最も高く、次いでOCであり、二次生成有機粒子の指標とされる水溶性有機炭素の有機炭素成分に占める割合(WSOC/OC)が高かった。センター近傍の中野局の常時監視結果のOxについて、24時間平均濃度及び最高濃度データの関係をみると、挙動が似ていたことから、二次生成により質量濃度が上昇した可能性が考えられた。



まとめ

- ◆ 調査研究期間中に高濃度日はあまりなかったが、比較的高濃度日の成分分析の結果から、寄与割合が高いと思われる発生要因が異なる特徴的なデータを得ることができた。
  - ◆ PM2.5が高濃度日の試料を採取し、成分分析することで、採取地点、時期の特徴などを踏まえた高濃度時の要因を推定することができ、PM2.5の削減に繋がる施策の検討のための基礎データとなることが期待できる。
  - ◆ 今後もさらにデータの蓄積を図り、発生要因別に類型化するとともに、高濃度日の高濃度地点の時間的な広がりや、経年変化などについて組み合わせて解析していくことで、より効果的なPM2.5対策に繋がると考える。

## 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PM2.5高濃度予測時の成分分析(2023)				部名	大気環境部	
	計画額	最終予算額	決算額	算出基礎			
節区分				@	×	時間	0
7 報償費	0	0	0				0
8 旅費	63	62	63	第64回大気環境学会	@ 62,460	×	1人 62,460
10-1 需用費	284	285	194	1.試薬・資材 ガスクリーンフィルタ キャリアガス用 ペトリスライド マニュアルシリング 10 μL マニュアルシリング 50 μL セラミックコンパクトハサミ ディスポーザブルメンブレンフィルタユニット 高純度アルゴンガス	@ 33,600 @ 21,930 @ 6,700 @ 7,800 @ 5,500 @ 8,750 @	× 1個 × 4箱 × 1箱 × 1本 × 2本 × 2箱 22,704	33,600 87,720 6,700 7,800 11,000 17,500 187,024
						計	
				2.燃料費 ガソリン代	@ 148	× 50 L	7,400
						計	7,400
				1+2			税込10% 213,866
				3.資料代 要旨集	@ 5,000	× 1 冊	5,000
						計	5,000
					需用費合計		193,892
13 使用料	11	11	0		@	×	往復 0
						計	0
18 負担金	62	62	60	大気環境学会参加費 機械学習に関するオンラインセミナー受講料	@ 10,000 @ 49,500	× 1人 × 1人	10,000 49,500
						計	59,500
計	420	420	317				

## 所 要 額 積 算 内 許

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PM2.5高濃度予測時の成分分析(2024)				部名	大気環境部	
	計画額	最終予算額	決算額	算 出 基 础			
節区分				@	×	時間	0
7 報償費	0	0	0				
8 旅費	82	63	63	第64回大気環境学会	@ 62,860	×	1人 62,860
10-1 需用費	185	189	189	1.試薬・資材 スクリューバイアル2ml スクリューキャップPTFE 不活性化ガラスインサート シリソジ 10 μ シリソジ 50 μ GCMSカラム	@ 2,960 @ 3,760 @ 18,000 @ 6,000 @ 7,040 @ 39,486	× 5個 × 5箱 × 4箱 × 2箱 × 2本 × 1本	14,800 18,800 72,000 12,000 14,080 39,486 0
					@	計	171,166
					@	税込10%	188,283
13 使用料	11	11	0		@	×	往復 0
						計	0
18 負担金	62	62	60	大気環境学会参加費 機械学習に関するオンラインセミナー受講料	@ 10,000 @ 49,500	× 1人 × 1人	10,000 49,500 計 59,500
計	340	325	312				