

# 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 経一新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

..... P 1

整理番号 経一新2 生活化学部

食品中高極性農薬の分析法開発と残留実態調査

..... P 9

整理番号 経一新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

..... P 17

## ○事後評価

整理番号 経一終1 微生物部

宮城県内に生息するマダニの病原体保有状況調査

..... P 25

整理番号 経一終2 生活化学部

県内に流通する農作物中のネオニコチノイド農薬の実態調査

..... P 33

整理番号 経一終3 大気環境部

機械学習による大気汚染物質濃度の予測

..... P 45

整理番号 経一終4 大気環境部

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

..... P 59

整理番号 経一終5 水環境部

公共用水域におけるネオニコチノイド系殺虫剤の調査

..... P 77



## 課題評価調書(事前評価)

令和4年8月16日

|                 |                 |         |   |
|-----------------|-----------------|---------|---|
| 評価の種類           | 事前評価            |         |   |
| 整理番号            | 経新1             | 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 |
| 研究分野            | ② 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            | 研究代表者氏名 | 木村 葉子                                     |
| 計画立案<br>課室・公所名  | 保健環境センター        |         |   |
| 共同研究機関<br>・協力機関 | 北海道大学大学院工学研究院   | 研究期間    | 令和5年度～令和6年度                               |
| 研究経費            | 総額              | 913千円   |   |

## 1 研究目的・計画等

## (1) 研究目的・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」という。)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、これまでは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) 研究計画

## ・令和5年度

下水からウイルスRNAを高感度に検出することができる北海道大学大学院で開発した方法を用いて、流入渠から採取した流入下水について陰電荷膜法によるウイルス濃縮、RNA抽出、逆転写・前増幅を行い、リアルタイムPCRにより遺伝子を検出する。調査対象は、SARS-CoV-2、インフルエンザウイルス、RSウイルス、エンテロウイルスとする。採水は週1回とし、年間を通して経時的に検出を行う。

## ・令和6年度

前年度に引き続き、流入下水中の調査対象ウイルスについて経時的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。

なお、学会発表等共同研究に係る事項については、共同研究者と協議する。

### (3) 期待される成果と波及効果

本研究により、流入下水中のウイルス量と感染者数の定量的な評価につながる。そして、下水サーベイランスが呼吸器系ウイルス感染症の流行を早期探知する指標として活用され、感染症の発生及びまん延の防止に役立つことが期待される。情報の発信については、宮城県結核・感染症情報センターで毎週発行している感染症発生動向週報のほか、県教育委員会等の関係機関と連携する等、特に感染症のまん延が危惧される施設へ向けた発信方法を検討することで、より効果が発揮されると考えられる。

### (4) 使用する主な分析機器

- ・リアルタイム PCR 装置
- ・サーマルサイクラー
- ・電気泳動装置

## 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、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。

### (2) 施策と研究課題との関連

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。

### (3) 担当課名

疾病・感染症対策課

## 3 従事時間割合

|       |       | 業務全体に占める当該研究の従事割合<br>(従事日数 (日/年)) |
|-------|-------|-----------------------------------|
| 研究代表者 | 木村 葉子 | 10 % ( 25 日/年)                    |

|                           |        |                |
|---------------------------|--------|----------------|
| 共同研究者                     | 鈴木 優子  | 10 % ( 25 日/年) |
|                           | 坂上 亜希恵 | 10 % ( 25 日/年) |
|                           | 佐々木 美江 | 5 % ( 12 日/年)  |
|                           | 大槻 りつ子 | 5 % ( 12 日/年)  |
|                           | 小泉 光   | 5 % ( 12 日/年)  |
|                           | 茂庭 光   | 5 % ( 12 日/年)  |
| 当該研究に必要な延べ従事日数<br>(人・日/年) |        | 123 人・日/年      |

#### 4 関係文献・資料名

- ・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
- ・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
- ・宮城県感染症予防計画

#### 5 添付資料

別添資料のとおり

# 流入下水からの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

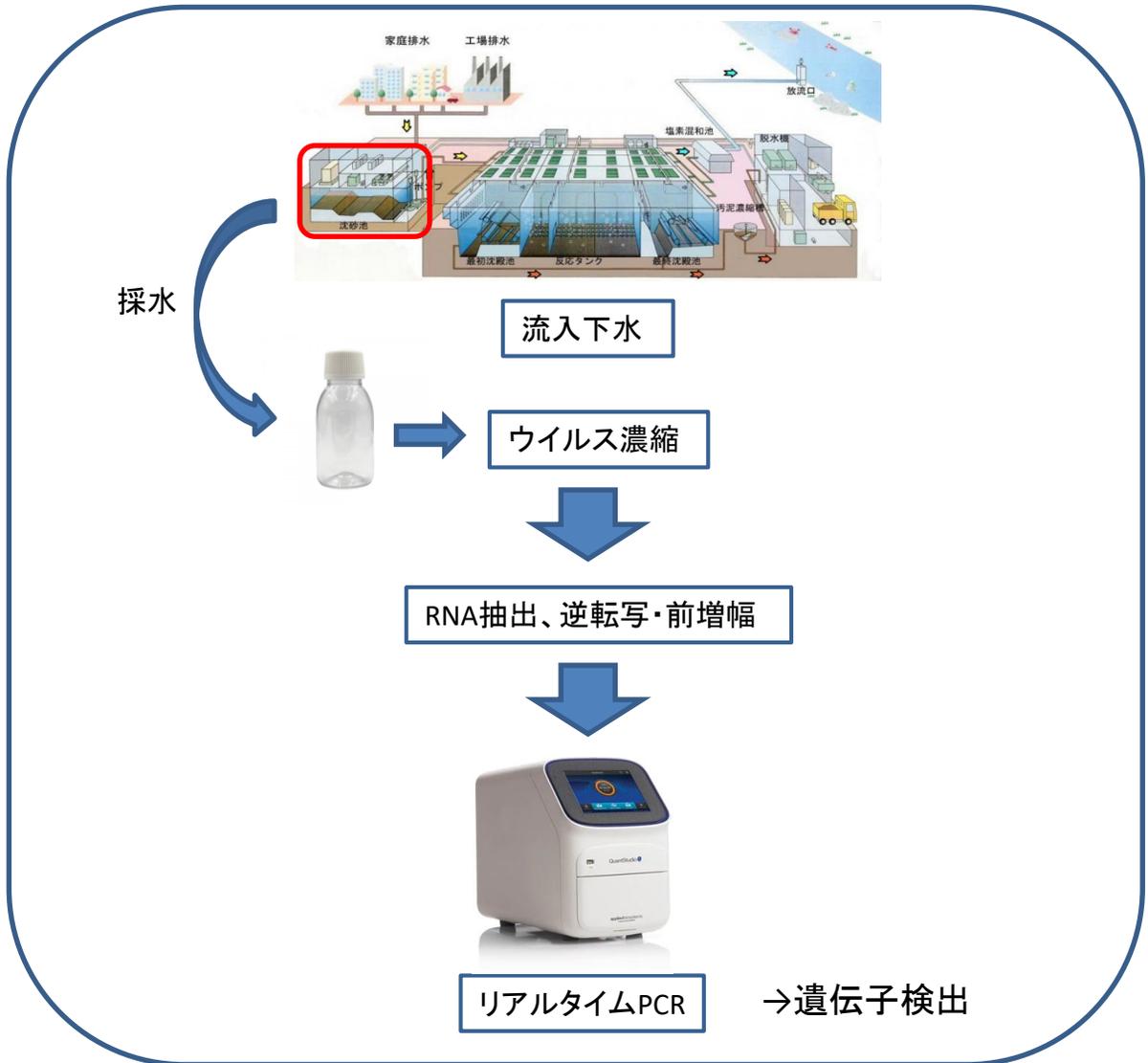
下水サーベイランスとは・・・

下水中のウイルス遺伝子の量から感染症の動態を把握すること

## 【調査対象】

SARS-CoV-2、インフルエンザウイルス、RSウイルス、エンテロウイルス

## 【調査フロー】



患者情報との比較、流行実態の解明

感染症の早期探知  
県民への注意喚起

# 宮城県感染症予防計画の概要

## 第1章 はじめに

### 【計画の位置づけ】

「感染症の予防及び感染症の患者に対する医療に関する法律（以下「法」という。）」及び国の「感染症の予防の総合的な推進を図るための基本的な指針」に基づき、宮城県の感染症対策を総合的かつ計画的に推進するために定めるもの。

### 【計画期間】

令和元年度から令和5年度

### 【県の感染症発生動向】

- 法施行（平成11年4月1日）以降、全国を含めて1類感染症の発生はない。
- 2類感染症で発生があるのは結核のみで、全数把握感染症の中で最も多いが、全国に比較して、り患率（人口十万人対の発生数）は低い。
- 3類感染症の腸管出血性大腸菌感染症は全国より高いり患率で推移している。
- 平成30年は腸管出血性大腸菌感染症を除く感染症のり患率は全国を下回っている。
- 年次推移では、全国と同様に、梅毒・風しんが増加傾向にある。
- 海外から由来する麻しんが、平成29年に2件発生している。

### 【発生動向の課題をふまえた対策の推進】

- 「宮城県結核予防計画」を「宮城県感染症予防計画」に統合し一体的な対策を実施。
- 国が特定感染症として定める感染症は、県でも増加傾向にあるものや、輸入等によりまん延が懸念される感染症であり、発生動向の注視等の対策を推進。
- 全ての感染症のまん延防止のため、特に適切な医療提供体制の整備や人材の育成、正しい知識の普及啓発の推進。
- り患率が全国より高めに推移する腸管出血性大腸菌感染症の対策の推進。

## 法に基づく感染症類型

| 感染症類型     | 疾病名   |
|-----------|---|
| 1類        | エボラ出血熱、クリミア・コンゴ出血熱、痘そう、南米出血熱、ペスト、マールブルグ病、ラッサ熱                       |
| 新型インフルエンザ | 新型インフルエンザ、再興型インフルエンザ  |
| 2類        | 急性灰白髄炎、結核、ジフテリア、重症急性呼吸器症候群（SARS）、中東呼吸器症候群（MERS）、鳥インフルエンザ（H5N1、H7N9） |
| 3類        | コレラ、細菌性赤痢、腸管出血性大腸菌感染症、腸チフス、パラチフス                                    |
| 4類        | E型肝炎、A型肝炎、つつが虫病、デング熱、ブルセラ症、マラリア、ライム熱、レジオネラ症、レプトスピラ症 等               |
| 5類        | アメーバ赤痢、カルバペネム耐性腸内細菌科細菌感染症、後天性免疫不全症候群、侵襲性肺炎球菌感染症、梅毒、百日咳、風しん、麻しん 等    |

## 平成30年感染症発生状況

（県上位三疾患）

| 疾病名         | 宮城県 |         | 全国   |
|-------------|-----|---------|------|
|             | 発生数 | り患率（※1） | り患率  |
| 結核（※2）      | 167 | 7.2     | 13.3 |
| 腸管出血性大腸菌感染症 | 110 | 4.7     | 3.0  |
| 梅毒          | 91  | 3.9     | 5.5  |

※1 感染症発生動向調査に基づく全数把握感染症の発生数

×100,000  
平成29年10月時点推計人口  
分母に平成29年推計人口を活用しているため概数である

※2 結核は結核登録者情報に基づく発生数（平成29年確定値）

## 計画の内容

### 第2章 感染症対策の推進の基本的な方向

- 普段から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推進
- 患者等の人権の尊重と感染症の予防及び治療の両立による社会全体の予防の推進
- 国、市町村、医師会等の関係医療機関等の連携による迅速かつ的確な対応を行うための体制の整備
- 感染症予防のための正しい知識の普及啓発と情報収集・提供体制の整備

### 第3章 感染症の対策

#### 第1 感染症の発生の予防のための施策

- 感染症の情報収集・分析・公表を中心とした関係機関との連携による食品・環境衛生対策、国内侵入防止対策等の推進
- 市町村との連携による安全かつ適切な予防接種を受けやすい環境の整備

#### 第2 感染症のまん延の防止のための施策

- 患者等の人権を尊重した入院勧告等の対人措置及び消毒等の対物措置の適切な実施
- 感染症が集団発生した場合の関係機関等との連携体制の確保

#### 第3 感染症に係る医療を提供する体制の確保

- 感染症指定医療機関における良質かつ適切な医療の提供による重症化の防止、病原体の感染力の減弱・消失
- 「感染症の患者の搬送の手引き」に基づく感染症患者の移送の安全かつ適切な実施

#### 第4 感染症及び病原体等に関する調査及び研究

- 保健所及び地方衛生研究所と関係部門及び国等関係研究機関の連携による計画的な調査、研究及び人材育成の実施

#### 第5 感染症の病原体等の検査の実施体制及び検査能力の向上

- 地方衛生研究所における検査体制等の充実及び医療機関等への技術的支援等による検査能力の向上

#### 第6 感染症の予防に関する人材の育成

- 感染症に関する幅広い知識や研究成果の医療現場への普及等の役割を担うことができる人材の育成

#### 第7 感染症に関する啓発及び知識の普及並びに感染症の患者等の人権の尊重

- 自治体による適切な情報の公表、正しい知識の普及等
- 医師等による患者等への十分な説明と同意に基づいた医療の提供
- 県民による正しい知識の獲得、自らの予防、患者等の人権尊重

#### 第8 特定病原体等を適正に取り扱う体制の確保

- 地方衛生研究所において特定病原体を所持する場合の速やかな届出等の手続き、施設の基準及び保管等の必要な基準の遵守、適切な管理

#### 第9 緊急時における感染症の発生の予防及びまん延の防止並びに医療の提供

- 国、市町村や近隣自治体、医療関係機関等との連携による迅速かつ的確な対策の実施
- 県民が感染症予防等の対策を講じるために有益な情報の利便性及び理解のしやすさを考慮した提供

#### 第10 特定感染症予防指針に定められた感染症への対策

##### 【結核】

- 〔成果目標〕 結核り患率人口10万人対5以下
- 〔事業目標〕 直接服薬確認療法（DOTS）実施率95%以上  
治療失敗・脱落率5%以下  
潜在性結核感染症患者治療完了率85%以上

##### 〔取り組み〕

- ・結核における発生動向調査体制の充実及び強化
- ・り患率の高い者等を対象とした効果的な定期健康診断の実施
- ・関係機関との連携による接触者健康診断の実施
- ・院内感染対策委員会等を中心とした施設（院）内感染の防止
- ・患者等に対する十分な説明に基づく適切な診断・治療の推進
- ・市町村との連携による予防接種を円滑に受けられる環境の整備及び定期接種率95%以上
- ・患者の生活環境に合わせたDOTSを軸とした患者支援
- ・結核に関する知識や標準治療法を含む研究成果の医療現場への普及等の役割を担う人材の育成

##### 【麻しん・風しん】

- ・乳幼児期の定期接種率95%以上
- ・風しんの抗体保有率の低い成人男性の抗体保有率90%以上
- ・感染拡大防止のための医療機関による迅速な届出の推進
- ・保健所による積極的疫学調査の実施、他自治体との情報共有
- ・必要に応じた県民への注意喚起

##### 【エイズ・性感染症】

- ・HIVに感染しながらも気づかずにエイズを発症するいきなりエイズ率の減少
- ・検査体制の整備による早期発見・治療の促進
- ・若い世代等に対する正しい知識の普及啓発
- ・エイズと近年増加傾向にある梅毒の発生動向調査体制の強化

##### 【インフルエンザ】

- ・個々の予防の取り組みに対する積極的な支援
- ・高齢者における重症化予防のための予防接種の推進及びインフルエンザワクチンの正しい知識の普及
- ・高齢者等の高危険群が多く入所する施設内感染防止策の支援
- ・医薬品等の確保による医療提供体制の整備
- ・新型インフルエンザ対策を見据えた健康危機管理体制の強化

##### 【蚊媒介感染症】

- ・蚊媒介感染症の予防方法等に関する普及啓発
- ・蚊の生息に適した場所が存在する大規模公園等での媒介蚊の発生状況の継続的な観測
- ・患者等の発生時における発生動向調査の実施、関係機関との情報共有や県民への注意喚起、積極的疫学調査の実施

#### 第11 その他感染症の予防の推進に関する重要事項

- 災害発生時における「宮城県地域防災計画」に基づく、医療機関の確保、防疫活動、保健活動等の実施
- 外国人患者発生時における関係機関との連携による感染症防止策の実施及び患者等の不安軽減の実施
- 薬剤耐性（AMR）対策に関する検査の実施及び情報提供
- 全国と比較してり患率の高い腸管出血性大腸菌感染症の対策の推進

所要額積算内訳

保健環境センター (単位:千円)

| 調査研究<br>課題名 | 流入下水からの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   | 算出基礎  |    |           |               |
| 7 報償費       | 0   |   | @  | ×         | 時間 0          |
| 8 旅費        | 91  | 技術研修(北海道大学) 2泊  | @  | 90,340 ×  | 1人 90,340     |
| 10-1 需用費    | 374   | Rneasy PowerFecal Pro Kit (50)                        | @  | 88,000 ×  | 2箱 176,000    |
|             |   | iScript Explore One-Step RT and PreAmp Kit(50 × 50μl) | @  | 100,000 × | 1箱 100,000    |
|             |   | QuantiTect Probe PCR Kit (200)                        | @  | 59,000 ×  | 1箱 59,000     |
|             |   | ガソリン代(検体採取に関連する燃料費)                                   | @  | 142 ×     | 30 L 4,260    |
|             |   |   |    |           | 計 339,260     |
|             |   |   |    |           | 税込10% 373,186 |
| 13 使用料      | 0   |   | @  | ×         | 往復 0          |
|             |   |   | @  | ×         | 往復 0          |
|             |   |   | @  | ×         | 往復 0          |
|             |   |   |    |           | 計 0           |
| 18 負担金      |   |   |    |           |               |
| 計           | 465   |   |    |           |               |

所要額積算内訳

保健環境センター (単位:千円)

| 調査研究<br>課題名 | 流入下水からの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   | 算出基礎  |    |           |               |
| 7 報償費       | 0   |   | @  | ×         | 時間 0          |
| 8 旅費        | 50  | 日本水環境学会(東京) 2泊  | @  | 49,820 ×  | 1人 49,820     |
| 10-1 需用費    | 374   | Rneasy PowerFecal Pro Kit (50)                        | @  | 88,000 ×  | 2箱 176,000    |
|             |   | iScript Explore One-Step RT and PreAmp Kit(50 × 50μl) | @  | 100,000 × | 1箱 100,000    |
|             |   | QuantiTect Probe PCR Kit (200)                        | @  | 59,000 ×  | 1箱 59,000     |
|             |   | ガソリン代(検体採取に関連する燃料費)                                   | @  | 142 ×     | 30 L 4,260    |
|             |   |   |    |           | 計 339,260     |
|             |   |   |    |           | 税込10% 373,186 |
| 13 使用料      | 0   |   | @  | ×         | 往復 0          |
|             |   |   | @  | ×         | 往復 0          |
|             |   |   | @  | ×         | 往復 0          |
|             |   |   |    |           | 計 0           |
| 18 負担金      | 24  | 日本水環境学会年会参加費  | @  | 24,000 ×  | 1人 24,000     |
| 計           | 448   |   |    |           |               |



## 課題評価調書(事前評価)

令和4年8月10日

|             |                         |          |                        |
|-------------|-------------------------|----------|------------------------|
| 評価の種類       | 事前評価                    |          |                        |
| 整理番号        | 経-新2                    | 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 |
| 研究分野        | ① 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                   | 研究代表者氏名  | 千葉 美子                  |
| 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 |                         | 研究期間     | 令和5年度～令和6年度            |
| 研究経費        | 総額                      | 1,942 千円 |                        |

## 1 研究目的・計画等

## (1) 研究目的・背景

グリホサートやグ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ー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) 研究計画

### ・令和5年度

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）。

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。

昨年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。

### ・令和6年度

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。

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。

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。

## (3) 期待される成果と波及効果

これまで実施していなかった高極性農薬の分析法を確立し、県内に流通する食品中の残留状況を把握することで、県民の食の安全安心確保の一助となる。

## (4) 使用する主な分析機器

液体クロマトグラフータンデム型質量分析装置（LC/MS/MS）

## 2 県の施策体系と研究課題との関連

### (1) 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

### (2) 施策と研究課題との関連

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。

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。

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するとともに、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。

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続毒殺事件（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。

分析手法を検討し、効率の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。

### (3) 担当課名

食と暮らしの安全推進課  
みやぎ米推進課

## 3 従事時間割合

|                           |        | 業務全体に占める当該研究の従事割合<br>(従事日数(日/年)) |
|---------------------------|--------|----------------------------------|
| 研究代表者                     | 千葉 美子  | 10 % ( 25 日/年)                   |
| 共同研究者                     | 阿部 美和  | 10 % ( 25 日/年)                   |
|                           | 新貝 達成  | 6 % ( 15 日/年)                    |
|                           | 姉齒 健太郎 | 6 % ( 15 日/年)                    |
|                           |        | % ( 日/年)                         |
| 当該研究に必要な延べ従事日数<br>(人・日/年) |        | 80 人・日/年                         |

## 4 関係文献・資料名

- 1) EURL | Single Residue Methods | QuPPE Method (eurl-pesticides.eu)
- 2) 穂山浩：食品中のグリホサート、グル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

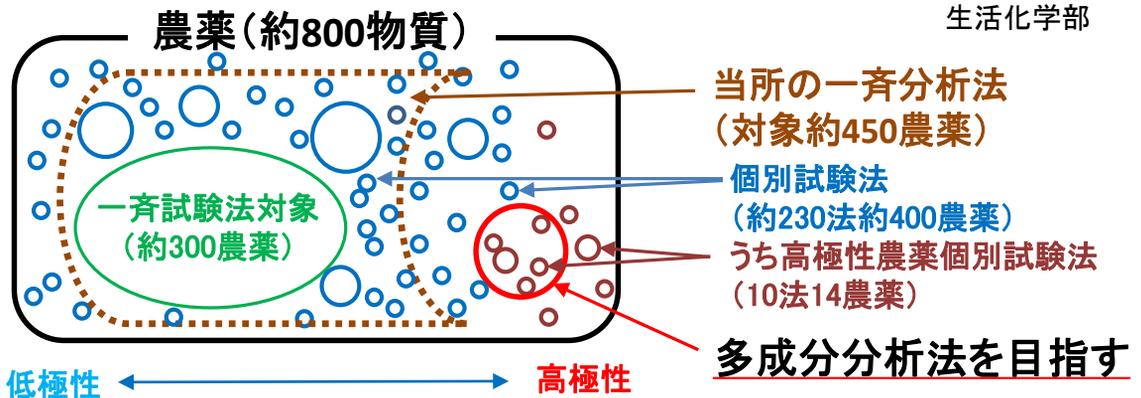
- 3) Agilent アプリケーションノート : Agilent 1290 Infinity II Bio LC による高極性農薬の一斉分析
- 4) Thermo Fisher Application Note : IC-HRMS を用いた高極性農薬一斉分析法の検討
- 5) Thermo Fisher Application Note : イオンクロマトグラフィー質量分析による食品中高極性農薬の高速分析
- 6) RESTEK Featured Application : LC - MS/MS を用いた Raptor Polar X によるホウレンソウ中の極性農薬－ホウレンソウ中の極性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

## 5 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

生活化学部



## 【グリホサート】非選択性除草剤(商品名:ラウンドアップ)

- ・適用範囲が広い → 国内流通量が多い
- ・入手が容易

海外では、プレハーベスト・ポストハーベスト農薬として多用(日本では禁止)

- ✓ 2017年に残留基準値を大幅に緩和(輸入小麦を見据えた処置)  
(パブリックコメントでは多数の反対意見:特に食品の安全性に関して心配)

輸入小麦を使用したパン類から検出事例が多数報告されている

- ・東日本大震災後の農地に雑草茎葉散布を行った

## 【グルホシネート】非選択性除草剤(商品名:バスタ)

- ✓ 強い神経毒性を有する(EUでは2018年に登録抹消)

消費者の  
農薬への  
関心は高い

- ・個別試験法がネックとなり、分析実施機関も限られていて報告事例も少ない
- ・農薬取締法の改正(2018年)により2021年から「農薬の再評価」が始まった
- ・EURLによりQuPPE法が開発・報告された

- ・QuPPE法をベースにして、グリホサート・グルホシネートを含む高極性農薬類の多成分分析法を検討する
- ・各成分の基準値を考慮し、代表的な食品を対象に妥当性評価を実施する
- ・確立した分析法を用いて、残留実態調査を実施する

- ・これまで実施していない、県内流通食品中高極性農薬の残留状況を把握できる
- ・薬物混入事案発生時において、迅速に対応可能な体制を構築できる



所要額積算内訳

保健環境センター (単位:千円)

| 調査研究<br>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     |               |
|-------------|------------------------------|---|----|-----------|---------------|
| 節区分         | 計画額                          | 算出基礎  |    |           |               |
| 8 旅費        | 100                          | 学会参加<br>農薬残留分析研究会(開催地未定)                                    | @  | 100,000 × | 1 人 100,000   |
| 10-1 需用費    | 667                          | 1. 標準品  |    |           |               |
|             |                              | グルホシネートアンモニウム標準品 100mg                                      | @  | 13,000 ×  | 1 本 13,000    |
|             |                              | N-アセチル-d <sub>3</sub> -グルホシネート水和物 10mg                      | @  | 59,400 ×  | 1 本 59,400    |
|             |                              | 3-(メチルホスフィニコ)プロピオン酸標準品 200mg                                | @  | 21,600 ×  | 1 本 21,600    |
|             |                              | グルホシネート-N-アセチル標準品 10mg                                      | @  | 66,000 ×  | 1 本 66,000    |
|             |                              | グリホサート標準品 200mg   | @  | 9,500 ×   | 1 本 9,500     |
|             |                              | グリホサート1,2- <sup>13</sup> C <sub>2</sub> <sup>15</sup> N 1mg | @  | 48,800 ×  | 1 本 48,800    |
|             |                              | (アミノメチル)りん酸標準物質 100mg                                       | @  | 19,000 ×  | 1 本 19,000    |
|             |                              | ホセチル-アルミニウム標準品 250mg  | @  | 23,000 ×  | 1 本 23,000    |
|             |                              | ホスホン酸標準品 250mg  | @  | 13,000 ×  | 1 本 13,000    |
|             |                              | エテホン標準品 250mg   | @  | 24,000 ×  | 1 本 24,000    |
|             |                              | クロピラリド標準品 100mg   | @  | 10,000 ×  | 1 本 10,000    |
|             |                              | パラコートジクロリド標準品 100mg   | @  | 15,000 ×  | 1 本 15,000    |
|             |                              | 二臭化ジクワット標準品 250mg   | @  | 19,000 ×  | 1 本 19,000    |
|             |                              | クロールコートクロリド標準品 250mg  | @  | 14,000 ×  | 1 本 14,000    |
|             |                              | マレイン酸ヒドラジド標準品 200mg   | @  | 7,000 ×   | 1 本 7,000     |
|             |                              | メタミドホス標準品 100mg   | @  | 12,000 ×  | 1 本 12,000    |
|             |                              | 2. 試薬   |    |           |               |
|             |                              | メタノール -Plus- LC/MS用 3L                                      | @  | 4,500 ×   | 2 本 9,000     |
|             |                              | 3. 分析用カラム   |    |           |               |
|             |                              | Raptor Polar X 2.1 × 100mm (RESTEK社)                        | @  | 126,500 × | 1 本 126,500   |
|             |                              | Scherzo SM-C18 MF 2 × 100mm (Imtakt社)                       | @  | 53,000 ×  | 1 本 53,000    |
|             |                              | ガードホルダー(1-6mm用)   | @  | 26,000 ×  | 1 本 26,000    |
|             |                              | ガードカートリッジ SM-C18(2-6mm用)                                    | @  | 17,000 ×  | 1 本 17,000    |
|             |                              |   |    |           | 計 605,800     |
|             |                              |   |    |           | 税込10% 666,380 |
| 18 負担金      | 8                            | 学会参加<br>農薬残留分析研究会参加費(非会員)                                   | @  | 8,000 ×   | 1 人 8,000     |
| 計           | 775                          |   |    |           |               |

所要額積算内訳

保健環境センター (単位:千円)

| 調査研究<br>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                          | 算出基礎  |  |   |  |
| 8 旅費        | 100                          | 学会参加<br>農薬残留分析研究会(開催地未定)  | @ 100,000 ×  | 1 人   | 100,000  |
| 10-1 需用費    | 1059                         | 1. 標準品<br>ホセチル-アルミニウム-d <sub>15</sub> 標準品 10mg<br>エテホン-d <sub>4</sub> 5mg<br>パラコートジクロリド-d <sub>6</sub> 標準品 50mg<br>二臭化ジクワット-d <sub>4</sub> 50mg<br>クロルメコートクロリド-d <sub>4</sub> 標準品 10mg<br>マレイン酸ヒドラジド-d <sub>2</sub> 10mg<br>メタミドホス-d <sub>6</sub> (ジメチル-d <sub>6</sub> ) 10mg | @ 154,000 ×<br>@ 50,600 ×<br>@ 197,000 ×<br>@ 110,000 ×<br>@ 170,000 ×<br>@ 122,000 ×<br>@ 100,100 × | 1 本<br>1 本<br>1 本<br>1 本<br>1 本<br>1 本<br>1 本 | 154,000<br>50,600<br>197,000<br>110,000<br>170,000<br>122,000<br>100,100 |
|             |                              | 2. 試薬<br>メタノール -Plus- LC/MS用 3L   | @ 4,500 ×  | 2 本   | 9,000  |
|             |                              | 3. 食品<br>食品買上<br>加工食品買上   | @ 1,000 ×<br>@ 1,000 ×   | 40 検体<br>10 検体                                | 40,000<br>10,000   |
|             |                              |   |  | 計<br>税込10%                                    | 962,700<br>1,058,970   |
| 18 負担金      | 8                            | 学会参加<br>農薬残留分析研究会参加費(非会員)   | @ 8,000 ×  | 1 人   | 8,000  |
| 計           | 1167                         |   |  |   |  |

## 課題評価調書(事前評価)

令和4年6月29日

|                 |                         |         |                         |
|-----------------|-------------------------|---------|-------------------------|
| 評価の種類           | 事前評価                    |         |                         |
| 整理番号            | 経-新3                    | 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 |
| 研究分野            | ③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            | 大気環境部                   | 研究代表者氏名 | 小川 武                    |
| 計画立案<br>課室・公所名  | 保健環境センター                |         |                         |
| 共同研究機関<br>・協力機関 |                         | 研究期間    | 令和5年度～令和6年度             |
| 研究経費            | 総額                      | 760千円   |                         |

## 1 研究目的・計画等

## (1) 研究目的・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年度からは季節ごとに年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年度の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った。

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たことから、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) 研究計画

・令和5年度

①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。

■ 予測対象地点：①石巻西局，②名取自排局，③保健環境センター

■ 学習データ：各予測対象地点及び周辺固定測定局の令和2年度から令和4年度のPM2.5データ並びに反応速度定数の温度関数の項( $T^{0.5} \times \exp(-E/RT)$ )

②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（コハク酸，ピノン酸，リンゴ酸，マレイン酸，アゼライン酸，スベリン酸）の分析を行う。

#### ・令和6年度

①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。

②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（コハク酸，ピノン酸，リンゴ酸，マレイン酸，アゼライン酸，スベリン酸）の分析及び解析を行う。

### (3) 期待される成果と波及効果

PM2.5が比較的高濃度で予測される日に試料採取を行い、通常の試料採取期間の結果と比較することで、高濃度時の要因を推定することができる。また、地点、時期、PM2.5質量濃度の違いによる成分分析結果から解析したデータは、特に人為的発生要因による寄与割合を踏まえたPM2.5削減対策の施策の検討に有用な基礎データとして提供することができる。

### (4) 使用する主な分析機器

- ・炭素成分分析装置
- ・全有機炭素計（TOC）
- ・ガスクロマトグラフ質量分析計（GC/MS）
- ・イオンクロマトグラフ装置（IC）
- ・誘導結合プラズマ質量分析装置（ICP-MS）
- ・デスクトップ型PC
- ・機械学習用ソフトウェア（無償公開されている）

Python：モデル構築

TensorFlow：機械学習用ライブラリ

Numpy, Pandas：データ処理

Jupyter notebook：開発環境

Anaconda：環境構築

## 2 県の施策体系と研究課題との関連

### (1) 施策体系

■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

(2) 施策と研究課題との関連

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。

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（季節ごと，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。

そこで，機械学習でPM2.5の質量濃度が比較的高くなる日時を予測し，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。

(3) 担当課名

環境対策課

3 従事時間割合

|                           |        | 業務全体に占める当該研究の従事割合（％）<br>（従事日数（日／年）） |
|---------------------------|--------|-------------------------------------|
| 研究代表者                     | 小川 武   | 8 %（ 21 日／年）                        |
| 共同研究者                     | 吉川 弓林  | 8 %（ 21 日／年）                        |
|                           | 大熊 一也  | 8 %（ 21 日／年）                        |
|                           | 天野 直哉  | 4 %（ 10 日／年）                        |
|                           | 菱沼 早樹子 | 7 %（ 10 日／年）                        |
|                           | 岩本 曜   | 6 %（ 15 日／年）                        |
| 当該研究に必要な延べ従事日数<br>（人・日／年） |        | 98 人・日／年                            |

4 関係文献・資料名

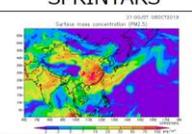
- 1) 太田耕右，第35回宮城県保健環境センター研究発表会 「機械学習による大気汚染物質濃度の予測」
- 2) 太田ら，第36回宮城県保健環境センター研究発表会 「機械学習を用いた移動測定局における大

「気汚染物質濃度の予測」

- 3) 宮城県保健環境センター年報 No.38 2020 「PM<sub>2.5</sub>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年報 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PM<sub>2.5</sub>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PM<sub>2.5</sub>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」

5 添付資料

既存の大気汚染物質濃度予測手法

| VENUS   | SPRINTARS   |
|---|---|
|  |  |
| 2日後まで予測   | 6日後まで予測   |
| 5km四方が同じ濃度  | 35km四方が同じ濃度   |

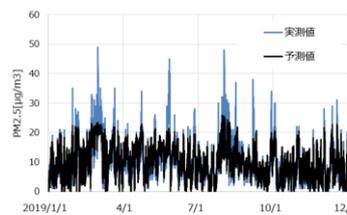
ユーザーは、7日後以降の予測値、およびピンポイント地点の予測値を知ることができない

1

機械学習によるPM<sub>2.5</sub>濃度の予測結果 (令和2年度調査研究)

予測結果

実測値との比較



相関係数rの値

- ・本研究 r=0.83
- ・既往研究
- 1時間値による予測[1] r=0.53
- 1ヶ月平均値による予測[2] r=0.87

[1] 荒木ら, 2019年大気環境学会年会 口頭発表2D0900  
[2] 井上ら, 2019年大気環境学会年会 Poster発表P-144#

3

試料 : フィルターの1/4量

- ← 内標準物質 4µg
- ← ジクロロメタン/メタノール (2:1) 混合溶媒 4mL

超音波抽出 (15分)

↓

PTFEフィルターによる濾過

濾液を1 mL分取し、窒素気流下で溶媒を揮発

- ← BSTFA (1%TMCS含む) 30µL
- ← ピリジン 10µL
- ← ジクロロメタン/ヘキサン (1:1) 混合溶媒 160µL

75°Cで2時間誘導体化

- ← ジクロロメタン/ヘキサン (1:1) 混合溶媒 200µL

G C / M S 分析  
最終試料流量 400µL

BSTFA : N,O-ビス (トリメチルシリル) トリフルオロアセトアミド  
TMCS : クロロトリメチルシラン

一斉分析法フロー図

18

名取自排局及び石巻局におけるPM<sub>2.5</sub>寄与割合 (R1年度～R2年度)

| Station | 海塩粒子 | 二次生成硫酸塩 | 土壌   | 生物起源二次有機粒子 | バイオマス燃焼 | 道路交通 | その他  |
|---------|------|---------|------|------------|---------|------|------|
| 名取自排局   | 11%  | 12%     | 8.7% | 9.0%       | 12%     | 20%  | 1.6% |
| 石巻局     | 10%  | 13%     | 15%  | 13%        | 12%     |      |      |

15

名取自排局における季節別PM<sub>2.5</sub>寄与割合 (令和1年度～令和2年度)

| Season | 海塩粒子 | 二次生成硫酸塩 | 土壌   | 生物起源二次有機粒子 | バイオマス燃焼 | 道路交通 | その他  |
|--------|------|---------|------|------------|---------|------|------|
| 春季     | 4.0% | 17%     | 10%  | 15%        | 18%     |      | 4.6% |
| 夏季     | 20%  | 12%     | 7.7% |            | 29%     |      |      |
| 秋季     | 12%  | 13%     | 5.4% | 18%        | 18%     | 18%  |      |
| 冬季     | 11%  | 5.5%    | 11%  | 19%        | 13%     | 15%  |      |

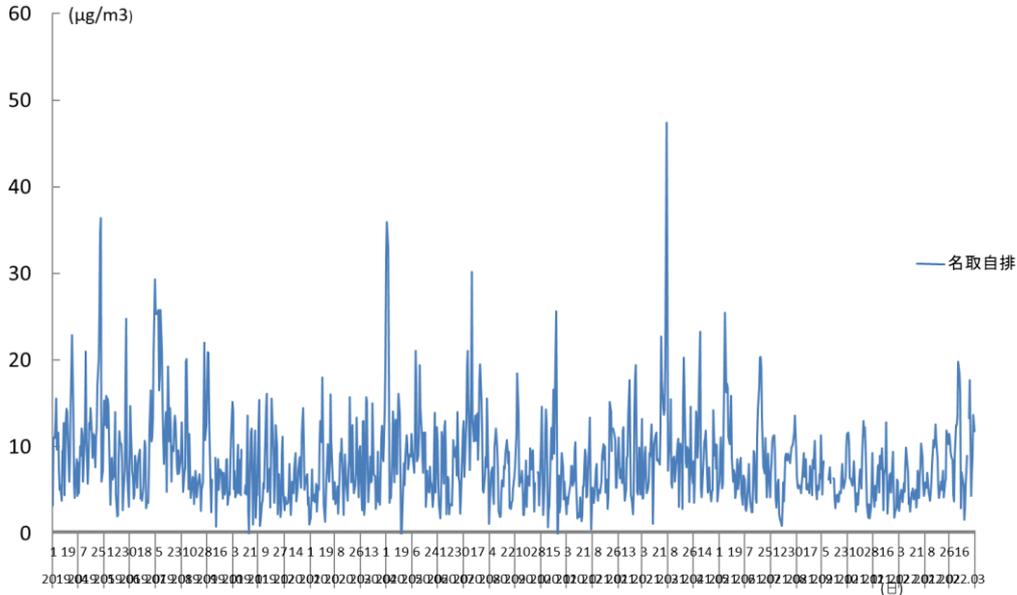
16

石巻局における季節別PM<sub>2.5</sub>寄与割合 (令和1年度～令和2年度)

| Season | 海塩粒子 | 二次生成硫酸塩 | 土壌  | 生物起源二次有機粒子 | バイオマス燃焼 | 道路交通 | その他  |
|--------|------|---------|-----|------------|---------|------|------|
| 春季     |      | 23%     | 16% | 19%        |         |      |      |
| 夏季     | 29%  | 9.0%    | 19% | 5.4%       |         |      |      |
| 秋季     | 4.1% | 13%     | 10% | 33%        | 12%     |      | 3.6% |
| 冬季     | 8.7% | 15%     | 24% | 10%        |         |      |      |

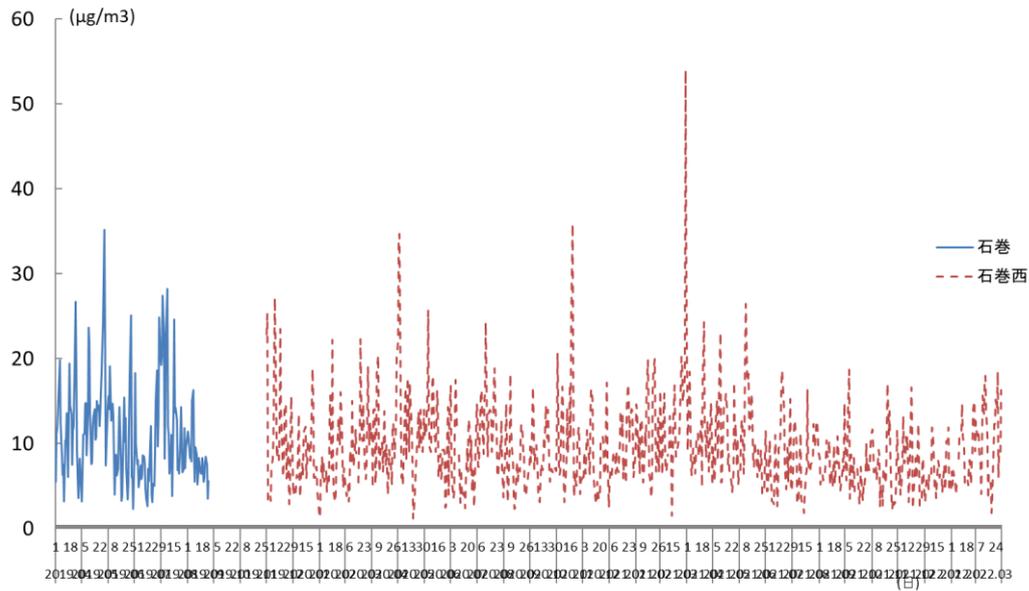
17

項目 : PM2.5  
 期間 : 2019年04月01日～2022年03月31日  
 統計値: 日平均値



名取自排局におけるPM2.5日平均値の時系列変化（令和元年度～令和3年度）

項目 : PM2.5  
 期間 : 2019年04月01日～2022年03月30日  
 統計値: 日平均値



石巻（石巻西）局におけるPM2.5日平均値の時系列変化（令和元年度～令和3年度）

令和元年度～令和3年度PM2.5日平均値日数

| PM2.5日平均値              | 名取自排局 | 石巻局（石巻西局） |
|------------------------|-------|-----------|
| 15µg/m <sup>3</sup> 以上 | 93    | 131       |
| 20µg/m <sup>3</sup> 以上 | 35    | 42        |
| 25µg/m <sup>3</sup> 以上 | 17    | 15        |
| 30µg/m <sup>3</sup> 以上 | 8     | 6         |
| 35µg/m <sup>3</sup> 以上 | 3     | 3         |



所要額積算内訳

保健環境センター（単位：千円）

| 調査研究<br>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          |
|-------------|-------------------------------|--------------------------------|----------------|----------------|
| 節区分         | 計画額                           | 算出基礎                           |                |                |
| 7 報償費       | 0                             |                                | @ × 時間         | 0              |
| 8 旅費        | 63                            | 大気環境学会(東京都)                    | @ 62,460 × 1人  | <b>62,460</b>  |
| 10-1 需用費    | 284                           | 1. 試薬・資材                       |                |                |
|             |                               | 石英繊維フィルター                      | @ 18,000 × 1箱  | 18,000         |
|             |                               | ディスポーザブルメンブレンフィルターユニット         | @ 12,500 × 1箱  | 12,500         |
|             |                               | 誘導体化試薬(BSTFA+1%-TMCS)          | @ 14,600 × 1箱  | 14,600         |
|             |                               | レボグルコサン <sub>d7</sub> 内標準試薬    | @ 201,000 × 1本 | 201,000        |
|             |                               |                                | 計              | 246,100        |
|             |                               |                                | 税込10%          | 270,710        |
|             |                               | 2. 燃料費                         |                |                |
|             |                               | ガソリン代                          | @ 148 × 50 L   | 7,400          |
|             |                               |                                | 計              | 7,400          |
|             |                               |                                | 税込10%          | 8,140          |
|             |                               | 3. 資料代                         |                |                |
|             |                               | 要旨集                            | @ 5,000 × 1冊   | 5,000          |
|             |                               |                                | 需用費計           | <b>283,850</b> |
| 13 使用料      | 11                            | 自動車道使用料                        |                |                |
|             |                               | 多賀城～鳴瀬奥松島                      | @ 770 × 5往復    | 3,850          |
|             |                               | 鳴瀬奥松島～名取                       | @ 1,340 × 5往復  | 6,700          |
|             |                               |                                | 計              | <b>10,550</b>  |
| 18 負担金      | 62                            | 参加費(大気環境学会年会)                  | @ 12,000 × 1人  | 12,000         |
|             |                               | 機械学習に関するオンラインセミナー(日本テクノセンター主催) | @ 49,500 × 1人  | 49,500         |
|             |                               |                                | 参加費計           | <b>61,500</b>  |
| 計           | 420                           |                                |                | 418,360        |

所要額積算内訳

保健環境センター（単位：千円）

| 調査研究<br>課題名 | 宮城県におけるPM <sub>2.5</sub> 高濃度予測時の成分分析(2024) |                                | 部名 | 大気環境部    |                     |
|-------------|--|--------------------------------|----|----------|---------------------|
| 節区分         | 計画額  | 算出基礎                           |    |          |                     |
| 7 報償費       | 0  |                                | @  | ×        | 時間 0                |
| 8 旅費        | 82   | 大気環境学会(名古屋)                    | @  | 81,300 × | 1人 <b>81,300</b>    |
| 10-1 需用費    | 185  | 1. 試薬・資材                       |    |          |                     |
|             |  | ピノン酸                           | @  | 14,800 × | 1箱 14,800           |
|             |  | コハク酸                           | @  | 37,400 × | 1箱 37,400           |
|             |  | (s)-(+)-ケトピン酸内標準試薬             | @  | 10,400 × | 1箱 10,400           |
|             |  | レボグルコサン                        | @  | 6,820 ×  | 1箱 6,820            |
|             |  | 誘導体化試薬(BSTFA+1%-TMCS)          | @  | 14,600 × | 1箱 14,600           |
|             |  | ガラスインサート(250μL)                | @  | 17,000 × | 1箱 17,000           |
|             |  | マニュアルシリンジ(100μL)               | @  | 8,900 ×  | 2本 17,800           |
|             |  | アセトニトリル                        | @  | 5,400 ×  | 2本 10,800           |
|             |  | ジクロロメタン                        | @  | 4,100 ×  | 2本 8,200            |
|             |  | メタノール                          | @  | 2,700 ×  | 2本 5,400            |
|             |  | ヘキサン                           | @  | 2,800 ×  | 2本 5,600            |
|             |  | アセトン                           | @  | 3,300 ×  | 2本 6,600            |
|             |  |                                |    |          | 計 155,420           |
|             |  |                                |    |          | 税込10% 170,962       |
|             |  | 2. 燃料費                         |    |          |                     |
|             |  | ガソリン代                          | @  | 148 ×    | 50L 7,400           |
|             |  | ガソリン代                          | @  | ×        | 0                   |
|             |  |                                |    |          | 計 7,400             |
|             |  |                                |    |          | 税込10% 8,140         |
|             |  | 3. 資料代                         |    |          |                     |
|             |  | 要旨集                            | @  | 5,000 ×  | 1冊 5,000            |
|             |  |                                |    |          | 需用費計 <b>184,102</b> |
| 13 使用料      | 11   | 自動車道使用料                        |    |          |                     |
|             |  | 多賀城～鳴瀬奥松島                      | @  | 770 ×    | 5往復 3,850           |
|             |  | 鳴瀬奥松島～名取                       | @  | 1,340 ×  | 5往復 6,700           |
|             |  |                                |    |          | 計 <b>10,550</b>     |
| 18 負担金      | 62   | 参加費(大気環境学会年会)                  | @  | 12,000 × | 1人 12,000           |
|             |  | 機械学習に関するオンラインセミナー(日本テクノセンター主催) | @  | 49,500 × | 1人 49,500           |
|             |  |                                |    |          | 参加費計 <b>61,500</b>  |
| 計           | 340  |                                |    |          | 337,452             |

## 課題評価調書(事後評価)

令和4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  | 宮城県内に生息するマダニの病原体保有状況調査 |
| 研究分野            | ② 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 | 佐々木 美江                 |
| 計画立案<br>課室・公所名  | 保健環境センター          |        |                        |
| 共同研究機関<br>・協力機関 | 国立感染症研究所<br>北海道大学 | 研究期間   | 令和元年度～令和3年度            |
| 研究経費            | 総額                | 824 千円 |                        |

## 1 研究目的・背景

重症熱性血小板減少症候群 (Severe Fever with Thrombocytopenia Syndrome, SFTS), ライム病及びダニ媒介脳炎 (Tick-Borne Encephalitis, TBE) 等はマダニが媒介する感染症である。特に SFTS は国内において西日本を中心に 641 例が報告され 80 例の死亡例が確認された致死率の高い疾患である (2021 年 7 月 28 日時点)。2016 年には SFTSV 感染の疑われた野良猫に噛まれて死亡した, 国内で初めての SFTS による動物由来感染症事例が報告されている。当センターでは 2014 年から 2016 年にかけて県内のマダニ媒介感染症 (SFTS, ライム病, 回帰熱) の浸淫状況を調査し, マダニ 2 個体から SFTSV 遺伝子, マダニ各 1 個体からライム病群 *Borrelia* 遺伝子及び回帰熱群 *Borrelia* 遺伝子をそれぞれ検出した。

一方, ダニ媒介脳炎は世界では年間 1 万から 1 万 5 千例の患者の発生が推計され, 国内では 1993 年から 2017 年に北海道で 6 例の患者が報告され, 致死率は 20%以上になる。

国内においてマダニ媒介感染症は増加傾向にあり, 地域性やその他の実態を把握することは予防策を講ずる上で重要である。過去に行った調査を参考に, SFTS ウイルスをはじめとするマダニ媒介感染症の浸淫状況の把握を目的として本研究を実施した。

## 2 研究成果

## (1) 成果

・マダニの種類及び病原体保有状況

定点及び国定公園等で採取した植生マダニ 302 個体, 県動物愛護センター及び猟友会等の協力により動物付着マダニ 221 個体を対象に植生マダニは事前調査で 1 年を通してマダニが生息していることが確認された 3 地点を定点としたほか, 県内の 6 市 6 町 (気仙沼市, 南三陸町, 登米市, 大崎市, 加美町, 石巻市, 女川町, 多賀城市, 利府町, 白石市, 丸森町, セケ宿町) の国定公園等を採取

地点とし、定点から 277 個体、国定公園等から 25 個体の計 302 個体を採取した。なお、定点では月 1 回採取を行った。付着マダニは、野生シカ付着マダニ 96 個体（気仙沼地区 15 個体、河北地区 81 個体）、野生イノシシ付着マダニ 114 個体（丸森地区）及びイヌ付着マダニ 8 個体（塩釜市、白石市、地区不明 各 2 個体、大和町、丸森町 各 1 個体）、ネコ付着マダニ 3 個体（大和町、石巻市、塩釜市各 1 個体）を計 221 個体を採取した。採取したマダニは形態学的に種を同定し、同一場所で採取した同種同性マダニについて、成ダニは 1 個体を 1 検体、若ダニ及び幼ダニは 5 個体程度を 1 検体として、マダニ種の同定及び病原体検出（SFTSV 遺伝子、ライム病群 *Borrelia* 属及び回帰熱群 *Borrelia* 属遺伝子、リケッチア属遺伝子）を実施した。国内では SFTSV を媒介する代表的なマダニであるタカサゴキララマダニ 6 個体を県内で初めて確認し、マダニ保有の病原体としては、SFTS、日本紅斑熱、ライム病及び回帰熱に関するウイルス遺伝子は検出されなかったが、極東紅斑熱の病原体である *Rickettsia heilongjiangensis* や人に病原性を有する *Rickettsia tamurae* が検出された。極東紅斑熱は 2008 年に仙台市で患者が報告され、国立感染症研究所などの追跡調査で 2008～12 年にイスカチマダニから *Rickettsia heilongjiangensis* が分離されている。本研究で *Rickettsia heilongjiangensis* が検出されたことから、検出された地域では病原体が保持されている可能性があること、感染リスクが高いことが考えられた。

・愛玩動物の抗体保有状況を県動物愛護センター及び動物病院の協力の下、犬猫の血清を収集し、SFTSV 抗体検査 504 件及び TBEV 抗体検査 139 件を実施した結果、抗体価の上昇した検体はなく、SFTS 及び TBE に感染した痕跡は認められなかった。

## (2) 成果の活用と波及効果

新興・再興感染症として注目されている SFTS、ライム病及び回帰熱、日本紅斑熱、ダニ媒介脳炎の原因病原体の県内での侵淫状況や分布状況を明らかにすることにより、当該病原体に関する啓発と感染予防のための資料として活用することができる。

## (3) 使用した主な分析機器

冷却遠心器、サーマルサイクラー、リアルタイム PCR 装置、シークエンサー、電気泳動装置

# 3 県の施策体系と研究課題との関連

## (1) 施策体系

感染症の予防及び感染症の患者に対する医療に関する法律(以下「感染症法」という。)第 10 条の規定により県が策定した「宮城県感染症予防計画」における、感染症の発生の予防及び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。なお、感染症法施行令により、SFTS、ダニ媒介脳炎及びライム病、日本紅斑熱は四類感染症(全数把握)に各々指定されている。

## (2) 施策と研究課題との関連

マダニ媒介性感染症である SFTS、ライム病、ダニ媒介脳炎等は、県内での感染事例は確認されていない。しかし、SFTS やダニ媒介脳炎は患者の死亡率が高く、狩猟や山菜採りなどの目的でマダニが生息する森や山へ行く人は注意喚起を要する感染症の一つである。過去に実施した調査では県内で採取したマダニから SFTSV 遺伝子と *Borrelia* 属菌遺伝子が検出されたため県内での患者発生も危惧されている。「宮城県感染症予防計画」においては、感染症の発生の予防及びまん延の防止に重点を置いた事前

対応型の施策を推進しており、SFTSをはじめとするマダニ媒介感染症の発生予防を県民に促すためには本調査が必要である。

### (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

#### ・2019年度

県内で毎月1～2回の割合でマダニを採取しSFTSV、*Borrelia*属菌について遺伝子検出検査を行う。また、国立感染症研究所でSFTSV抗体検出に関する技術を習得し、愛玩動物を対象とした調査も実施する。ダニ媒介脳炎ウイルスの研究機関と調整してダニ媒介脳炎ウイルス遺伝子検出の体制を整える。

#### ・2020年度

2019年度の調査を継続実施し、成果をまとめ関係機関に情報提供するとともに学会等で発表を行う。

### (2) 研究計画変更の内容と経緯

2019年12月末から中国において新型コロナウイルス感染症の患者が発生し、世界各国で感染が広がった。県内では初めて患者が確認された2020年2月から当センターでは新型コロナウイルス感染症を中心とした検査を行っているが、新型コロナウイルス感染症は終息せず、経常研究を継続させることが困難であった。このため2年計画であった本研究を1年延長し、2020年度に計画していた内容を2020年度及び2021年度の2年間で実施するよう計画を変更した。

## 5 従事時間割合

|                           |           | 業務全体に占める当該研究の従事割合（％）<br>（従事日数（日／年）） |               |
|---------------------------|-----------|-------------------------------------|---------------|
|                           |           | 研究計画時                               | 期間中実績（年平均）    |
| 研究代表者                     | 佐々木 美江（ ） | 11 %（ 28 日/年）                       | 12 %（ 30 日/年） |
| 共同研究者                     | 植木 洋（ ）   | 8 %（ 20 日/年）                        | 8 %（ 20 日/年）  |
|                           | 坂上 亜希恵（ ） | 8 %（ 20 日/年）                        | 8 %（ 20 日/年）  |
|                           | 大槻 りつ子（ ） | 6 %（ 15 日/年）                        | 12 %（ 30 日/年） |
|                           | （ ）       | %（ 日/年）                             | %（ 日/年）       |
| 当該研究に要した延べ従事日数<br>（人・日／年） |           | 83人・日／年                             | 100人・日／年      |

## 6 関係文献・資料等

(1) 関係文献・資料名

- ・植木 洋ら, 宮城県保健環境センター年報, 11, 42-44, 1993
- ・Xue-Jie Yu, M *et al.*, The new England and journal of medicine, 364, 16, 1523-1532, 2011
- ・木村俊介ら, 宮城県保健環境センター年報, 34, 43-46, 2016
- ・大槻りつ子ら, 宮城県保健環境センター年報, 38, 51-53, 2020
- ・佐々木美江ら, 宮城県保健環境センター年報, 39, 29-33, 2021

(2) 研究成果の外部への発表の状況

- ・SFTS 学術研修会 (R3.9.17 会長: 国立感染症研究所獣医科学部長 前田健) 口頭発表 (大槻)

7 添付資料

別添のとおり

## 5. 添付資料 (調査フロー)

# 国内で増加傾向にあるマダニ媒介感染症の県内での侵淫状況の把握

研究内容 2019～2021年度（コロナ発生により1年延期）

### 1. マダニ類からの病原体検出：感染リスクの確認



- **SFTSV** 重症血小板減少症候群
- **Borrelia属菌** ライム病, 回歸熱
- **リケッチア** 日本紅斑熱

#### SFTSV

| 種類    | 個体数 | 検体数* | 陽性数 |
|-------|-----|------|-----|
| 植生マダニ | 302 | 231  | 0   |
| 付着マダニ | 221 | 221  | 0   |
| 合計    | 523 | 452  | 0   |

#### Borrelia属菌

| 種類    | 個体数 | 検体数* | 陽性数 | 検出率  |
|-------|-----|------|-----|------|
| 植生マダニ | 302 | 231  | 0   | 0%   |
| 付着マダニ | 221 | 221  | 2   | 0.9% |
| 合計    | 523 | 452  | 2   | 0.4% |

#### リケッチア属

| 種類    | 個体数 | 検体数* | 陽性数 | 検出率  |
|-------|-----|------|-----|------|
| 植生マダニ | 302 | 231  | 0   | 0%   |
| 付着マダニ | 221 | 221  | 5   | 2.3% |
| 合計    | 523 | 452  | 5   | 1%   |



| リケッチア種                                 | 由来   | マダニ種       |
|--|------|------------|
| <i>R. heilongjiangensis</i>            | イヌ   | イスカチマダニ    |
| <i>R. tamurae</i>                      | イノシシ | タカサゴキララマダニ |
| <i>R. asiatica</i>                     | ネコ   | ヤマトマダニ     |
| <i>Candidatus Rickettsia principis</i> | シカ   | オオトゲチマダニ   |
|  | シカ   | オオトゲチマダニ   |

### 2. 愛玩動物の抗体価測定：感染していた痕跡



- **SFTSV** 重症血小板減少症候群
- **TBEV** ダニ媒介脳炎病原体

SFTSV抗体検査 504件  
TBEV抗体検査 139件



すべて陰性

所要額積算内訳

保健環境センター (単位:千円)

| 調査研究<br>課題名 | 宮城県内に生息するマダニの病原体保有状況調査(2019) |       |     | 部名                            | 微生物部                   |
|-------------|------------------------------|-------|-----|-------------------------------|------------------------|
|             | 計画額                          | 最終予算額 | 決算額 |                               |                        |
| 8 報償費       | 55                           | 55    | 55  | 算出基礎                          |                        |
|             |                              |       |     | ダニの採取に関する協力への謝礼(県内3地域1地域10時間) | @ 1,813 × 30 時間 54,390 |
| 9 旅費        | 104                          | 104   | 95  | 技術研修(国立感染症研究所 1泊2日)           | @ 36,080 × 2 人 72,160  |
|             |                              |       |     | One Health に関する連携シンポジウム       | @ 22,800 × 1 人 22,800  |
|             |                              |       |     |                               | 計 94,960               |
| 11-1 需用費    | 273                          | 273   | 262 | 1. 5ml滅菌スクリーキャップマイクロチューブ青等資材  | @ 69,001 × 1 式 69,001  |
|             |                              |       |     | バキュティナ採血管SST II               | @ 4,201 × 1 式 4,201    |
|             |                              |       |     | PSV 23G×5/8 他                 | @ 5,659 × 1 式 5,659    |
|             |                              |       |     | Carbonate-Bicarbonate Buffer等 | @ 78,300 × 1 式 78,300  |
|             |                              |       |     | Isogen II                     | @ 24,246 × 1 式 24,246  |
|             |                              |       |     | RNA試薬 他                       | @ 27,390 × 1 式 27,390  |
|             |                              |       |     | p-プロモアニソール                    | @ 11,660 × 1 式 11,660  |
|             |                              |       |     |                               | 計 261,467              |
| 14 使用料      | 27                           | 27    | 21  | ETCカード                        |                        |
|             |                              |       |     | 多賀城~鳴瀬・奥松島(片道 770円)           | @ 770 × 13 回 10,010    |
|             |                              |       |     | 仙台東~山元,仙台東~岩沼等                |                        |
|             |                              |       |     |                               | 計 20,950               |
| 計           | 459                          | 459   | 433 |                               |                        |

所要額積算内訳

保健環境センター (単位:千円)

| 調査研究<br>課題名 | 宮城県内に生息するマダニの病原体保有状況調査(2020) |       |            | 部名  | 微生物部  |
|-------------|------------------------------|-------|------------|---|---|
|             | 計画額                          | 最終予算額 | 決算額        |   |   |
| 8 報償費       | 55                           | 55    | 37         | ダニの採取に関する協力への謝礼   | @ 1,813 × 20 時間 36,260                                      |
| 9 旅費        | 116                          | 0     | 0          | 日本感染症学会(福岡)   | @ 115,400 × 0 人 0   |
| 11-1 需用費    | 271                          | 214   | <b>249</b> | ブロックエース粉末 他<br>illustra ExoProStar<br>Isogen II 他<br>RNA-direct Realtime PCR Master Mix 他<br>ガソリン | 32,780<br>85,800<br>44,220<br>63,382<br>22,324<br>計 248,506 |
| 14 使用料      | 26                           | 26    | 19         | ETCカード<br>多賀城~鳴瀬・奥松島(片道 770円)<br>仙台東~山元,仙台東~岩沼等   | @ 770 × 15 回 11,550<br>7,320<br>計 18,870                    |
| 19 負担金      | 20                           | 0     | 0          | 日本感染症学会学術集会参加費  | @ 20,000 × 0 人 0  |
| 計           | 488                          | 295   | <b>305</b> |   |   |

所要額積算内訳

保健環境センター (単位:千円)

| 調査研究<br>課題名 | 宮城県内に生息するマダニの病原体保有状況調査(2021) |       |     | 部名                  | 微生物部                  |
|-------------|------------------------------|-------|-----|---------------------|-----------------------|
|             | 計画額                          | 最終予算額 | 決算額 |                     |                       |
| 7 報償費       | 0                            | 0     | 0   | ダニの採取に関する協力への謝礼     | @ 1,813 × 0 時間 0      |
| 8 旅費        | 116                          | 116   | 0   | 日本感染症学会(福岡)         | @ 115,400 × 0 人 0     |
| 10-1 需用費    | 60                           | 73    | 73  | 臨床ウイルス学会資料代         | @ 3,800 × 1 回 3,800   |
|             |                              |       |     | 試薬等                 | @ 56,980 × 1 回 56,980 |
|             |                              |       |     | ガソリン代(検体採取に関連する燃料費) | 11,293                |
|             |                              |       |     |                     | 計 (税込) 72,073         |
| 13 使用料      | 0                            | 11    | 3   | ETCカード              |                       |
|             |                              |       |     | 仙台東～山元(片道 1,160円)   | @ 1,160 × 1 1,160     |
|             |                              |       |     | 今泉～白石(往復 2,700円)    | @ 1,540 × 1 1,540     |
|             |                              |       |     |                     | 計 2,700               |
| 18 負担金      | 20                           | 20    | 10  | 日本感染症学会学術集会参加費      | @ 10,000 × 1 人 10,000 |
| 計           | 196                          | 220   | 86  |                     |                       |

## 課題評価調書(事後評価)

令和4年10月20日

|                 |                         |        |                             |
|-----------------|-------------------------|--------|-----------------------------|
| 評価の種類           | 事後評価                    |        |                             |
| 整理番号            | 経-終2                    | 研究課題名  | 県内に流通する農作物中のネオニコチノイド農薬の実態調査 |
| 研究分野            | ① 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 | 阿部 美和                       |
| 計画立案<br>課室・公所名  | 保健環境センター                |        |                             |
| 共同研究機関<br>・協力機関 |                         | 研究期間   | 令和元年度, 令和3年度<br>(令和2年度中断)   |
| 研究経費            | 総額 502千円                |        |                             |

## 1 研究目的・背景

ネオニコチノイド農薬(アセタミプリド, イミダクロプリド, クロチアニジン, ジノテフラン, チアクロプリド, チアメトキサム, ニテンピラム:7種)は, 1990年代にニコチン様成分をベースとして, 日本で開発・販売された比較的新しい殺虫剤である。その用途は, 農作物にとどまらず家庭用・業務用殺虫剤や住宅建材にも使用されている。また, 近年は残効性・浸透移行性の高い農薬として, 有機リン系農薬に代わって大量に使用される傾向にある。

しかし, この農薬の使用拡大とともに, 世界各地でミツバチの大量死や個体数の減少との関連などが報告され始め, 調査の結果, ここ数年来は直接的な因果関係として考えられている。また, この農薬の特性上, 農地から水に溶け込み, 土壌や地下水, 河川への汚染も懸念されている。

これを受け, EU諸国では, ジノテフラン, ニテンピラムについて未承認としているほか, 2013年にはイミダクロプリド, クロチアニジン, チアメトキサムの使用禁止を決定するなど, 規制強化の体制をとっている。

一方, 日本では食品安全委員会による食品健康影響評価を経て, 2015年5月にアセタミプリド, クロチアニジン, 2016年6月にチアメトキサム, 2017年7月にイミダクロプリドの残留基準値を緩和しており, 日本の残留基準値は海外の数倍から数百倍高く設定されている。このうち, クロチアニジンの規制緩和に関しては, パブリックコメントに1,657件の意見が寄せられるなど国民の関心の高さが窺え, 食品安全委員会に再評価を依頼する事態となっている。

当所では, ネオニコチノイド農薬については, イミダクロプリド, クロチアニジン, チアクロプリド, チアメトキサムについて検査を実施しており, これまでに基準値を超過して検出された例はないが, 妥当性評価の結果や添加回収試験における回収率の不良から定量値を報告できない作物もある。

そこで, ネオニコチノイド農薬の一斉分析法を検討, 確立し, 県内に流通する国産及び輸入の農作物について残留濃度を調査して, 現在の検出状況を把握する。

## 2 研究成果

### (1) 成果

令和元年度は水を抽出溶媒として用いるネオニコチノイド農薬7種類の一斉分析法を構築した。キャベツ、トマト、ほうれんそうにおいて試料濃度0.01ppmでの添加回収試験を実施し、回収率や精度に問題がないことを確認した。

令和3年度は令和元年度に構築した方法（一部変更）を用いてキャベツ、トマト、ぶどう、ほうれんそうの妥当性評価を実施し、キャベツの一部項目を除き妥当性評価ガイドラインの基準を満たすことを確認した。（表1）

表1 妥当性評価結果

| 0.01ppm   | キャベツ   |             |             | トマト    |             |             | ぶどう    |             |             | ほうれんそう |             |             |
|-----------|--------|-------------|-------------|--------|-------------|-------------|--------|-------------|-------------|--------|-------------|-------------|
|           | 真度 (%) | 併行精度 (RSD%) | 室内精度 (RSD%) | 真度 (%) | 併行精度 (RSD%) | 室内精度 (RSD%) | 真度 (%) | 併行精度 (RSD%) | 室内精度 (RSD%) | 真度 (%) | 併行精度 (RSD%) | 室内精度 (RSD%) |
| ガイドライン目標値 | 70~120 | 25>         | 30>         | 70~120 | 25>         | 30>         | 70~120 | 25>         | 30>         | 70~120 | 25>         | 30>         |
| アセタミプリド   | 81     | 5.3         | 10.7        | 79     | 3.4         | 15.1        | 92     | 3.8         | 6.0         | 86     | 3.0         | 4.5         |
| イミダクロプリド  | 77     | 5.0         | 9.8         | 74     | 4.0         | 9.6         | 85     | 3.2         | 5.0         | 90     | 3.5         | 8.7         |
| クロチアニジン   | 66     | 8.7         | 13.8        | 88     | 4.8         | 11.2        | 96     | 9.1         | 9.9         | 86     | 4.1         | 15.3        |
| ジノテフラン    | 73     | 4.6         | 11.6        | 76     | 2.5         | 13.5        | 88     | 3.5         | 3.7         | 82     | 3.8         | 9.0         |
| チアクロプリド   | 80     | 5.9         | 9.4         | 83     | 3.1         | 7.5         | 87     | 1.9         | 4.2         | 83     | 2.5         | 6.7         |
| チアメトキサム   | 78     | 4.7         | 9.7         | 83     | 3.0         | 6.1         | 86     | 3.5         | 6.7         | 86     | 0.8         | 9.0         |
| ニテンピラム    | 79     | 4.2         | 5.8         | 82     | 5.2         | 8.6         | 87     | 3.6         | 5.1         | 86     | 1.7         | 4.8         |
| 0.1ppm    | 真度 (%) | 併行精度 (RSD%) | 室内精度 (RSD%) | 真度 (%) | 併行精度 (RSD%) | 室内精度 (RSD%) | 真度 (%) | 併行精度 (RSD%) | 室内精度 (RSD%) | 真度 (%) | 併行精度 (RSD%) | 室内精度 (RSD%) |
| ガイドライン目標値 | 70~120 | 15>         | 20>         | 70~120 | 15>         | 20>         | 70~120 | 15>         | 20>         | 70~120 | 15>         | 20>         |
| アセタミプリド   | 83     | 5.0         | 10.9        | 85     | 4.8         | 11.4        | 92     | 3.1         | 3.1         | 87     | 2.6         | 3.7         |
| イミダクロプリド  | 83     | 4.8         | 14.4        | 84     | 3.9         | 11.1        | 89     | 3.1         | 3.2         | 88     | 3.9         | 5.5         |
| クロチアニジン   | 76     | 6.4         | 10.9        | 86     | 5.1         | 14.2        | 92     | 5.3         | 7.0         | 86     | 7.0         | 12.1        |
| ジノテフラン    | 82     | 2.6         | 10.9        | 85     | 2.8         | 14.2        | 92     | 5.1         | 5.8         | 92     | 4.2         | 4.7         |
| チアクロプリド   | 82     | 3.5         | 11.1        | 84     | 2.3         | 10.6        | 89     | 3.5         | 3.7         | 87     | 2.6         | 3.3         |
| チアメトキサム   | 82     | 6.2         | 11.6        | 85     | 1.9         | 9.5         | 91     | 4.1         | 4.5         | 90     | 1.5         | 3.7         |
| ニテンピラム    | 81     | 1.9         | 9.8         | 83     | 2.9         | 9.4         | 89     | 3.9         | 4.0         | 90     | 3.4         | 4.3         |

県内流通品では農産品5種類31検体（国産25検体，輸入6検体）と農産加工品1種類9検体（国産4検体，輸入5検体）を測定した。4種類の農産品と1種類の農産加工品からネオニコチノイド系農薬4種類12件を検出し、ネオニコチノイド系農薬が広く使用されていることが示された。（表2）

表2 県内流通品調査結果

|         | 検体数 | 検出検体数           | アセタミプリド | イミダクロプリド | クロチアニジン | ジノテフラン | チアクロプリド | チアメトキサム | ニテンピラム          |
|---------|-----|-----------------|---------|----------|---------|--------|---------|---------|-----------------|
| アスパラガス  | 7   | 1               | 0       | 0        | 0       | 0      | 0       | 0       | 1 <sup>※1</sup> |
| 国産      | 5   | 1               | 0       | 0        | 0       | 0      | 0       | 0       | 1 <sup>※1</sup> |
| 輸入      | 2   | 0               | 0       | 0        | 0       | 0      | 0       | 0       | 0               |
| トマト     | 5   | 1               | 0       | 0        | 0       | 1      | 0       | 0       | 0               |
| ぶどう     | 8   | 2               | 0       | 1        | 0       | 1      | 0       | 0       | 0               |
| 国産      | 5   | 1               | 0       | 0        | 0       | 1      | 0       | 0       | 0               |
| 輸入      | 3   | 1               | 0       | 1        | 0       | 0      | 0       | 0       | 0               |
| ブロッコリー  | 6   | 0               | 0       | 0        | 0       | 0      | 0       | 0       | 0               |
| 国産      | 5   | 0               | 0       | 0        | 0       | 0      | 0       | 0       | 0               |
| 輸入      | 1   | 0               | 0       | 0        | 0       | 0      | 0       | 0       | 0               |
| ほうれんそう  | 5   | 4 <sup>※2</sup> | 0       | 3        | 1       | 1      | 0       | 0       | 0               |
| 小計      | 31  | 8               | 0       | 4        | 1       | 3      | 0       | 0       | 1               |
| 国産      | 25  | 7               | 0       | 3        | 1       | 3      | 0       | 0       | 1               |
| 輸入      | 6   | 1               | 0       | 1        | 0       | 0      | 0       | 0       | 0               |
| ぶどうジュース | 9   | 4 <sup>※2</sup> | 0       | 0        | 3       | 2      | 0       | 0       | 0               |
| 国産      | 4   | 4 <sup>※2</sup> | 0       | 0        | 3       | 2      | 0       | 0       | 0               |
| 輸入      | 5   | 0               | 0       | 0        | 0       | 0      | 0       | 0       | 0               |
| 合計      | 40  | 12              | 0       | 4        | 4       | 5      | 0       | 0       | 1               |
| 国産      | 29  | 11              | 0       | 3        | 4       | 5      | 0       | 0       | 1               |
| 輸入      | 11  | 1               | 0       | 1        | 0       | 0      | 0       | 0       | 0               |

定量下限値0.01ppm

※1 ニテンピラムの定量値は参考値 ※2 複数検体農薬検出

## (2) 成果の活用と波及効果

- ・ルーチン業務の一斉分析法ではネオニコチノイド系農薬の一部の薬剤の定量のみを行っていたが、今回構築した一斉分析法を用いることによって、7種類全ての農薬を測定することが可能となった。
- ・ネオニコチノイド系農薬は国内で汎用されている農薬であり、ミツバチ大量死等に関連して注目度の高い農薬でもあるが、この一斉分析法を用いることによって残留状況の監視が可能となり、県内に流通する食品の残留実態が把握できる。
- ・現在5種類のネオニコチノイド系農薬の再評価が行われているところだが、今後基準値等の変更があった場合、今回の調査結果と比較することで農薬の使用状況変化の知見を得ることができる。

## (3) 使用した主な分析機器

液体クロマトグラフー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

#### 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

### (2) 施策と研究課題との関連

本研究において、ネオニコチノイド農薬の一斉分析法を確立し、国内及び輸入流通品における現在の検出状況を把握するとともに、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。

また、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。

### (3) 担当課名

食と暮らしの安全推進課

## 4 研究計画

### (1) 当初の研究計画

#### ・令和元年度

ネオニコチノイド農薬7種類の一斉分析法を検討し、代表的な農作物を対象として妥当性評価を実施する。

農作物からのネオニコチノイド農薬の検出状況を調査し、使用量や残留基準値等を考慮して、国産及び輸入品の農作物の中から次年度に調査を行う農作物を選定する。

#### ・令和2年度

令和元年度に選定した農作物を買い上げ、確立したネオニコチノイド農薬一斉分析法を用いて残留状況を調査する。

## (2) 研究計画変更の内容と経緯

令和2年度は、年度当初より研究代表者が新型コロナウイルス感染症検査に対応するため、研究期間を令和3年度まで延長した。

## (3) 変更後の計画

### ・令和2年度

新型コロナウイルス感染症検査への対応のため令和3年度へ実施を延期した。

### ・令和3年度

令和2年度に実施予定であった分析法の妥当性評価および市場から買い上げた農作物へのネオニコチノイド農薬の残留状況調査を実施した。

## (4) 研究経費の変更

研究成果を発表するための全国衛生化学協議会年会の参加旅費（令和2年度宮崎県→令和3年度愛知県名古屋市）が変更になることに伴い研究経費を改めた。

## 5 従事時間割合

|                           |                          | 業務全体に占める当該研究の従事割合（％）<br>（従事日数（日／年）） |            |
|---------------------------|--------------------------|-------------------------------------|------------|
|                           |                          | 研究計画時                               | 期間中実績（年平均） |
| 研究代表者                     | 千葉 美子（阿部 美和）             | 10％（25日/年）                          | 10％（25日/年） |
| 共同研究者                     | 阿部 美和（千葉 美子）             | 8％（20日/年）                           | 6％（15日/年）  |
|                           | 大内 亜沙子<br>（新貝 達成，姉齒 健太郎） | 6％（15日/年）                           | 4％（10日/年）  |
| 当該研究に要した延べ従事日数<br>（人・日／年） |                          | 3 60 人・日／年                          | 3 50 人・日／年 |

## 6 関係文献・資料等

### (1) 関係文献・資料名

1) 荻野 知美，岩船 敬，渡邊 栄喜：農業生産現場で生産者自らが使える農薬残留判定技術の開発－水抽出法の検討－，独立行政法人農林水産消費安全研究センター（FAMIC）平成23年度農薬の検査技術に関する調査研究報告（農薬の使用に伴う農作物・環境への安全の確保に必要な課題）

2) 小林 麻紀ら：農産物中ネオニコチノイド系農薬の分析，東京都健康安全研究センター研究年報，

61, 215-220, 2010

3) 東京都健康安全研究センター研究年報資料：輸入農産物中の残留農薬実態調査(野菜及びその他)(果実類)・国内産野菜・果実類中の残留農薬実態調査，それぞれ平成24年度～平成28年度

4) 日本弁護士連合会：ネオニコチノイド系農薬の使用禁止に関する意見書，2017年12月21日

5) 田畑佳世，山本直美，池田耕介，田野貴仁，神藤正則：第56回全国生化学技術協議会講演集，64

6) 阿部美和，大内亜沙子，千葉美子，大槻良子：LC-MS/MSによる農作物中のネオニコチノイド一斉分析法の検討，宮城県保健環境センター年報，第38号，59-61，2020

## (2) 研究成果の外部への発表の状況

・第58回全国衛生化学協議会年会 一般発表食品部門 「宮城県内流通農産品中のネオニコチノイド系農薬の実態調査」 Web開催 令和3年11月15日～26日配信

・第37回宮城県保健環境センター研究発表会 セッションII

## 7 添付資料

添付のとおり

# 県内に流通する農作物中のネオニコチノイド農薬の実態調査

## 【背景と現状】

ネオニコチノイド農薬(7種)

- ・日本で開発, 販売された比較的新しい農薬
- ・残効性・浸透移行性が高い
- ・有機リン系に変わって大量に使用されている

一方

- ・ミツバチ大量死と関連性が疑われている
- ・環境水への汚染も懸念されている
- ・EU諸国では一部使用禁止, 日本では規制緩和



## 【目的】

当所での検査実績は, 7種のうち4種のみ

- ・これまでの検査では, 検出事例はあるが基準値超過した作物はない
  - ・作物によっては定量できないものもある
  - ・他自治体の報告では, 検出例, 検出量ともに増加傾向にある
- 一斉分析法を確立し, 現在の検出状況を把握する



## 【目標達成への手段】

**令和元年度**

一斉分析方法を構築。一律基準値での添加回収試験を実施。

**令和2年度**

コロナ検査対応のため実施延期

変更点

**令和3年度**

- 妥当性評価の実施
- 県内に流通する農作物(国産及び輸入品)の残留状況を調査



### 【研究成果】

- ・ネオニコチノイド系農薬一斉分析法を構築し、キャベツ、トマト、ぶどう、ほうれんそうの妥当性評価を実施。キャベツの一部項目を除き妥当性評価ガイドラインの基準を満たすことを確認した。
- ・県内流通品調査では農産品5種類31検体(国産25検体, 輸入6検体)と農産加工品1種類9検体(国産4検体輸入5検体)を測定した。4種類の農産品と1種類の農産加工品からネオニコチノイド系農薬4種類12件を検出した。



### 【成果の活用と波及効果】

- ・ネオニコチノイド系農薬は国内で汎用されているが、これまで定量していなかった残留農薬の一斉分析が可能となり、県内に流通する食品への残留実態が把握できる。
- ・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ができる。
- ・今後基準値の変更があった場合、今回の結果と比較することで農薬の使用状況変化の知見を得ることができる。

# 宮城県内流通農産品中のネオニコチノイド系農薬の実態調査

生活化学部 ○阿部美和 姉齒健太郎 千葉美子 近藤光恵

## 1 はじめに

ネオニコチノイド系農薬は、安全性が高い殺虫剤とされ、7種類の農薬が農林水産省に登録されている。広く使用されているが、ミツバチの大量死との関連やヒトの発達神経毒性の可能性が示唆され国際的には使用を控える動きがある。また、食品衛生法の残留基準値は海外と比較して高い。農薬取締法の改正に伴い、登録済農薬の定期的再評価制度が導入され、令和3年度にネオニコチノイド系農薬5種類も再評価が実施されている。

今回、水を抽出溶媒として用いる荻野ら<sup>1)</sup>の方法を参考とし、ネオニコチノイド系農薬一斉分析法の妥当性評価を実施した。その後宮城県内に流通する農産品及び農産加工品を買い上げ、残留ネオニコチノイド系農薬の実態調査を行ったので報告する。

## 2 方法

### 2.1 試料

妥当性評価はキャベツ、トマト、ぶどう、ほうれんそうについて行った。買い上げ品は令和3年3月19日から7月14日まで宮城県内に流通した農産品(アスパラガス、トマト、ぶどう、ブロッコリー、ほうれんそう)および農産加工品(ぶどうジュース)計40検体について調査を行った。

### 2.2 標準品

アセタミプリド、イミダクロプリド、クロチアニジン、ジノテフラン、チアクロプリド、チアメトキサム、ニテンピラム、CPMAの各標準品、ネオニコチノイド系農薬混合標準液(CPMF含む)は富士フイルム和光純薬を用いた。

### 2.3 測定条件

表1 測定条件

| HPLC   |  |
|--------|--|
| 装置     | Agilent Technologies 1260 Infinity series    |
| 分析カラム  | L-column2 ODS 2.1×100mm, 粒子2μm               |
| 移動相    | A液: 0.1%ギ酸・5mM酢酸アンモニウム水溶液<br>B液: アセトニトリル     |
|        | min 0 1 14 19 19.01 30                       |
| グラジエント | A % 90 90 5 5 90 90<br>B % 10 10 95 95 10 10 |
| カラム温度  | 40°C 流量 0.2mL/min 注入量 10μL                   |
| MS/MS  |  |
| 装置     | AB SCIEX QTRAP4500                           |
| イオン化法  | ESI(+) IS 4500(V) TEM 500(°C)                |

MRM条件は既報<sup>2)</sup>参照

### 2.4 試料溶液の調製

農産品は凍結粉碎し、ぶどうジュースは十分に混和して用いた。検体5gを秤量し、水25mLを加え30分間振とうした後2500rpm、20分間遠心分離した。上清をろ過(No.5A, アドバンテック)してろ液を採取した。沈渣に水15mLを加え10分間振

とう後、同様にろ液を採取し、ろ紙上の残渣を水で洗浄し、水で50mLに定容したものを抽出液とした。抽出液を正確に2mL分取し、アセトニトリル10mLを加え混和した。ヘキササン、アセトン、アセトニトリルでコンディショニングしたInertSep GC/PSA(500mg/500mg/6mL, GLサイエンス)に、この混和液全量を負荷し、通過液を採取した。さらにアセトニトリル8mLで溶出し、溶出液を採取した。これらを合わせて40°C以下で減圧濃縮、窒素吹き付け乾固を行った後、20%メタノールで溶解し4mLに定容し、これをLC-MS/MS試験溶液とした。

妥当性評価は試料中濃度がそれぞれ0.1ppmと0.01ppmになるよう標準希釈液を添加して行った。ニテンピラムは代謝物の妥当性評価を実施できなかったため実態調査は参考値扱いとした。

## 3 結果と考察

妥当性評価はキャベツの一部項目を除き妥当性評価ガイドラインの基準を満たした。

買い上げ品調査では、いずれの検体からも食品衛生法の残留基準値もしくは一律基準値を超過して検出する農薬はなかった。検出状況を表2に示した。

農薬の検出は全体で12/40(30%)検体、国産品11/29(38%)検体、輸入品1/11(9%)検体であった。今回の調査では輸入品の検体数が国産品より少なかったが、検出数は1検体のみで、海外ではネオニコチノイド系農薬の使用を抑制している傾向が示唆された。

表2 ネオニコチノイド系農薬検出状況

| 試料      | 国産<br>輸入 | 検体<br>(件) | 検出<br>(件)       | 農薬名      | 濃度<br>(ppm)        | 基準値<br>(ppm) |
|---------|----------|-----------|-----------------|----------|--------------------|--------------|
| アスパラガス  | 国産       | 5         | 1               | ニテンピラム   | 0.06 <sup>2)</sup> | 2            |
|         | 輸入       | 2         | 0               |          |                    |              |
| トマト     | 国産       | 5         | 1               | ジノテフラン   | 0.06               | 2            |
|         | 国産       | 5         | 1               | ジノテフラン   | 0.02               | 15           |
| ぶどう     | 国産       | 3         | 1               | イミダクロプリド | 0.03               | 3            |
|         | 輸入       | 1         | 0               |          |                    |              |
| ブロッコリー  | 国産       | 5         | 0               |          |                    |              |
|         | 輸入       | 1         | 0               |          |                    |              |
| ほうれんそう  | 国産       | 5         | 4 <sup>1)</sup> | イミダクロプリド | 0.03, 0.03, 0.23   | 15           |
|         |          |           |                 | クロチアニジン  | 0.05               | 40           |
|         |          |           |                 | ジノテフラン   | 0.35               | 15           |
| ぶどうジュース | 国産       | 4         | 4 <sup>1)</sup> | クロチアニジン  | 0.01, 0.01, 0.03   | 5            |
|         | 輸入       | 5         | 0               | ジノテフラン   | 0.02, 0.05         | 15           |

\*1 複数農薬検出 \*2参考値

定量下限値0.01ppm

### [参考文献]

1) 荻野ほか:平成23年度 農薬の検査技術に関する調査研究報告 農林水産消費安全技術センター(<https://www.acis.famic.go.jp/acis/chouken/chouken/chouken2011.htm>)

2) 阿部ほか:宮城県保健環境センター年報, 38, 59-61 (2021)

所要額積算内訳

保健環境センター (単位:千円)

| 調査研究<br>課題名 | 県内に流通する農作物中ネオニコチノイド農薬の実態調査(2019) |       |     | 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  |  |
| 9 旅費        | 58                               | 58    | 70  | 日本農薬学会残留農薬セミナー(東京1泊2日)<br>※前年までは1日だが当年は2日間の実施となった<br>日本食品衛生学会 第115回学術講演会(東京1泊2日)  | @ 33,580 × 1人 33,580<br>@ 36,360 × 1人 36,360<br>計 69,940<br>※ △11,940<br>不足分は庁内の旅費で補填  |
| 11-1 需用費    | 282                              | 282   | 279 | チアクロプリド-アミド標準品 50mg<br>CPMA標準品 100mg<br>TSKgel Amide-80 3μmカラム<br><br>L-colum2 ODS 2μmカラム<br>ドライアイス10kg<br>InertSep GC/PSA 500mg/500mg/6mL<br>InertSep GC/PSA 500mg/500mg/6mL<br>アセトニトリル LC/MS用<br>メタノール LC/MS用<br><br>日本農薬学会残留農薬セミナー資料<br>日本食品衛生学会 学術講演会要旨集<br>キャベツ(検討用試料)<br>ミニトマト(検討用試料) | @ 16,700 × 1本 16,700<br>@ 35,100 × 1本 35,100<br>@ 59,000 × 1本 59,000<br>小計 110,800<br>税込8% 119,664<br><br>@ 51,550 × 1本 51,550<br>@ 4,080 × 1箱 4,080<br>@ 24,890 × 2箱 49,780<br>@ 21,000 × 1箱 21,000<br>@ 9,450 × 1本 9,450<br>@ 2,280 × 1本 2,280<br>小計 138,140<br>税込10% 151,954<br><br>@ 5,000 × 1組 5,000<br>@ 1,000 × 1冊 1,000<br>@ 330 × 1個 330<br>@ 290 × 3パック 870<br>小計(税込) 7,200<br>計 278,818 |
| 19 負担・補助    | 23                               | 23    | 16  | 日本農薬学会残留農薬セミナー参加費<br>日本食品衛生学会 第115回学術講演会参加費   | @ 11,500 × 1人 11,500<br>@ 4,000 × 1人 4,000<br>計 15,500   |
| 計           | 363                              | 363   | 365 |   |  |

所要額積算内訳

保健環境センター（単位：千円）

| 調査研究<br>課題名 | 県内に流通する農作物中ネオニコチノイド農薬の実態調査(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   |       |        |         |
| 9 旅費        | 119                              | 119   | 0   | 全国衛生化学技術協議会年会<br>宮崎県宮崎市(新型コロナ対策のため紙上開催)<br>※調査研究停止中のため参加せず |       |        |         |
|             |                                  |       |     | @  | ×     | 人      | 0       |
|             |                                  |       |     |  |       | 計      | 0       |
| 11-1 需用費    | 173                              | 173   | 113 | InertSep GC/PSA 500mg/500mg/6mL @ 20,000 × 2 箱 40,000      |       |        |         |
|             |                                  |       |     | InertSep GC/PSA 500mg/500mg/6mL @ 24,890 × 1 箱 24,890      |       |        |         |
|             |                                  |       |     | アセトン残留農薬・PCB試験用(300倍) @ 2,905 × 2 本 5,810                  |       |        |         |
|             |                                  |       |     | ヘキサン残留農薬・PCB試験用(300倍) @ 2,655 × 2 本 5,310                  |       |        |         |
|             |                                  |       |     | メタノール LC/MS用 @ 2,105 × 2 本 4,210                           |       |        |         |
|             |                                  |       |     | アセトニトリル LC/MS用 @ 9,005 × 2 本 18,010                        |       |        |         |
|             |                                  |       |     |  |       | 小計     | 98,230  |
|             |                                  |       |     |  |       | 税込10%  | 108,053 |
|             |                                  |       |     | ぶどうジュース(調査用) @ 1,500 × 1 本 1,500                           |       |        |         |
|             |                                  |       |     | ぶどうジュース(調査用) @ 300 × 1 本 300                               |       |        |         |
|             |                                  |       |     | ぶどうジュース(調査用) @ 850 × 1 本 850                               |       |        |         |
|             |                                  |       |     | ぶどうジュース(調査用) @ 260 × 1 本 260                               |       |        |         |
|             |                                  |       |     | ぶどうジュース(調査用) @ 220 × 1 本 220                               |       |        |         |
|             |                                  |       |     |  |       | 小計     | 3,130   |
|             |                                  |       |     |  |       | 税込8%   | 3,380   |
|             |                                  |       |     | ぶどうジュース(調査用) @ 471 × 1 本 471                               |       |        |         |
|             |                                  |       |     | ぶどうジュース(調査用) @ 307 × 1 本 307                               |       |        |         |
|             |                                  |       |     |  |       | 小計(税込) | 778     |
|             |                                  |       |     |  |       | 計      | 112,211 |
| 19 負担・補助    | 23                               | 23    | 0   |  |       |        |         |
| 計           | 315                              | 315   | 113 |  |       |        |         |

所要額積算内訳

保健環境センター (単位:千円)

| 調査研究<br>課題名 | 県内に流通する農作物中ネオニコチノイド農薬の実態調査(2021) |       |     | 算出基礎                                      | 部名 | 生活化学部  |
|-------------|----------------------------------|-------|-----|---|----|--|
|             | 計画額                              | 最終予算額 | 決算額 |   |    |  |
| 8 旅費        | 77                               | 77    | 0   | 第58回全国衛生化学技術協議会年会(名古屋市)<br>Web開催のため旅費使用せず | @  | × 人 0  |
| 10-1 需用費    | 59                               | 59    | 24  | ドライアイス(10Kg)                              | @  | 4,300 × 1 箱 4,300<br>小計 4,300<br>税込10% 4,730 |
|             |                                  |       |     | 第58回全国衛生化学技術協議会年会資料代                      | @  | 4,000 × 1 冊 4,000<br>小計(税込) 4,000            |
|             |                                  |       |     | ブロッコリー                                    | @  | 128 × 1 個 128                                |
|             |                                  |       |     | ブロッコリー                                    | @  | 298 × 1 個 298                                |
|             |                                  |       |     | アスパラ                                      | @  | 248 × 3 束 744                                |
|             |                                  |       |     | アスパラ                                      | @  | 158 × 3 束 474                                |
|             |                                  |       |     |   |    | 小計 1,644<br>税込8% 1,775                       |
|             |                                  |       |     | グレープジュース                                  | @  | 138 × 1 個 138                                |
|             |                                  |       |     | ブロッコリー                                    | @  | 248 × 1 個 248                                |
|             |                                  |       |     | アスパラ                                      | @  | 127 × 4 束 508                                |
|             |                                  |       |     |   |    | 小計 894<br>税込8% 965                           |
|             |                                  |       |     | アスパラ                                      | @  | 198 × 3 個 594                                |
|             |                                  |       |     | ブロッコリー                                    | @  | 158 × 1 個 158                                |
|             |                                  |       |     |   |    | 小計 752<br>税込8% 812                           |
|             |                                  |       |     | ほうれんそう                                    | @  | 178 × 2 束 356                                |
|             |                                  |       |     | トマト                                       | @  | 298 × 1 パック 298                              |
|             |                                  |       |     | トマト                                       | @  | 228 × 1 パック 228                              |
|             |                                  |       |     | アスパラ                                      | @  | 248 × 3 束 744                                |
|             |                                  |       |     |   |    | 小計 1,626<br>税込8% 1,756                       |
|             |                                  |       |     | ほうれんそう                                    | @  | 157 × 2 束 314                                |
|             |                                  |       |     | ほうれんそう                                    | @  | 157 × 2 束 314                                |
|             |                                  |       |     | トマト                                       | @  | 297 × 1 パック 297                              |
|             |                                  |       |     | トマト                                       | @  | 247 × 1 パック 247                              |
|             |                                  |       |     | トマト                                       | @  | 197 × 1 パック 197                              |
|             |                                  |       |     |   |    | 小計 1,369<br>税込8% 1,478                       |
|             |                                  |       |     | ほうれんそう                                    | @  | 158 × 2 束 316                                |
|             |                                  |       |     | ブロッコリー                                    | @  | 198 × 1 個 198                                |
|             |                                  |       |     |   |    | 小計 514<br>税込8% 555                           |
|             |                                  |       |     | ブドウ                                       | @  | 398 × 1 パック 398                              |
|             |                                  |       |     |   |    | 小計 398<br>税込8% 429                           |
|             |                                  |       |     | ブドウ                                       | @  | 305 × 1 パック 305                              |
|             |                                  |       |     | ブロッコリー                                    | @  | 248 × 1 個 248                                |
|             |                                  |       |     |   |    | 小計 553<br>税込8% 597                           |
|             |                                  |       |     | ブドウ                                       | @  | 498 × 1 パック 498                              |
|             |                                  |       |     | ブドウ                                       | @  | 1,480 × 1 パック 1,480                          |
|             |                                  |       |     | ブドウ                                       | @  | 286 × 1 パック 286                              |
|             |                                  |       |     |   |    | 小計 2,264<br>税込8% 2,445                       |
|             |                                  |       |     | ブドウ                                       | @  | 970 × 1 パック 970                              |
|             |                                  |       |     |   |    | 小計 970<br>税込8% 1,047                         |
|             |                                  |       |     | ブドウ                                       | @  | 498 × 1 パック 498                              |
|             |                                  |       |     |   |    | 小計 498<br>税込8% 537                           |
|             |                                  |       |     | アスパラ                                      | @  | 213 × 3 束 639                                |
|             |                                  |       |     | アスパラ                                      | @  | 267 × 3 束 801                                |
|             |                                  |       |     | ほうれんそう                                    | @  | 95 × 3 束 285                                 |
|             |                                  |       |     | ブドウ                                       | @  | 1,058 × 1 パック 1,058                          |
|             |                                  |       |     |   |    | 小計(税込) 2,783                                 |
| 計           | 136                              | 136   | 24  |   |    | 計 23,909                                     |

