

## 課題評価調書(事後評価)

令和4年6月29日

評価の種類	事後評価		
整理番号	経-終3	研究課題名	機械学習による大気汚染物質濃度の予測
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	大熊一也
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	産業技術総合センター	研究期間	令和2年度～令和3年度
研究経費	総額	242千円	

## 1 研究目的・背景

光化学オキシダント(以下「Ox」という。)及びPM2.5による大気汚染が問題となっている。平成30年度の宮城県におけるOxの環境基準達成率は0%であり, またPM2.5については環境基準を達成しているものの, 世界中で毎年数百万人がPM2.5等による大気汚染が原因で死亡しており, 日本においても人体への影響が懸念されている。このため, Ox及びPM2.5の高濃度警報等を早急に発令するため, 濃度予測手法の確立が必要である。

しかし, 一般利用されているVENUSやSPRINTARSでは, 広い地域における6日後までの予測が限界とされており, ピンポイントな地点における予測や7日後以降の予測手法は確立していない。【p49上図参照】

そこで, 本研究では, ピンポイントな地点における7日後のOx及びPM2.5濃度(1時間値)を予測することを目的とし, このための手段として, 近年急速に普及しつつあるAI(人工知能)の機能の一つである機械学習を用いて, 予測を行うこととした。【p49下図参照】

## 2 研究成果

## (1) 成果

実測データが連続的に取得されているケースの例として, 岩沼一般環境大気測定局における1週間後のOx及びPM2.5濃度(1時間値)の予測方法の検討を行ったところ, 予測値と実測値との相関係数(以下, 予測精度という。)はOx:0.90, PM2.5:0.83の結果が得られた。

一方, 実測データが少ないケースの例として, 移動測定局(多賀城市・七ヶ浜町)における1週間後のOx及びPM2.5(1時間値)の予測方法の検討を行った。移動測定局のような連続的な実測データが少ない場合では, 周辺固定局のデータを活用して拡張データを作成して学習させるなど, 工夫を重ねた結果, 予測精度について, 多賀城市においてはOx:0.84, PM2.5:0.72, 七ヶ浜町においてはOx:0.91, PM2.5:0.70という結果が得られた。それぞれのケースにおいて, 当初

の研究計画書に記載した目標（相関係数 0.70 以上）を達成する結果となった。

その他、産業技術総合センターとの研究に関する連携体制を整えたほか、予測を行う作業操作手順についてマニュアルを整備した。

## (2) 成果の活用と波及効果

- ・大気汚染緊急時対策における注意喚起、警報発令等の迅速な対応、大気汚染の未然防止に役立てることが可能である。
- ・固定測定局の設置されていない地点における予測にも適用可能である。
- ・本研究結果を公開することにより、他自治体や他分野において類似の取組に活用することが可能である。

## (3) 使用した主な分析機器

- ・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

## 3 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

地域の実情に合わせて、大気汚染物質濃度を的確に予測することが可能になれば、迅速な注意喚起や警報発令対応のほか、今後の県内での測定局最適配置の検討等に有用なデータとなり、大気汚染を未然に防止するための対策に役立てることができる。このことから、本研究課題の達成により、宮城県における「安全な大気環境の保全，さわやかな大気環境の保全」の施策の検討やその推進に貢献できるものとする。

### (3) 担当課名

環境対策課

#### 4 研究計画

##### (1) 当初の研究計画

###### ・令和2年度

- イ 予測対象：岩沼一般環境大気測定局における1週間後のOx・PM2.5濃度(1時間値)
- ロ 予測精度の目標：Ox, PM2.5ともに $r \geq 0.6$
- ハ 予備知識が無くとも容易に扱えるようにするための予測マニュアルの作成検討
- ニ 目標達成のための手段
  - ①高濃度時の精度を向上させるため、複数の予測手法を組み合わせる等の工夫を検討と検証
  - ②産業技術総合センター及び他機関の研究者との連携体制の構築
  - ③研究発表会等で積極的に情報発信

###### ・令和3年度

以下を除き、令和2年度と同様

- ロ 予測精度の目標：Ox, PM2.5ともに $r \geq 0.7$

###### ・令和4年度

以下を除き、令和2年度と同様

- イ 予測対象：移動測定局（多賀城市及び七ヶ浜市）における1週間後のOx・PM2.5濃度(1時間値)
- ロ 予測精度の目標：Ox, PM2.5ともに $r \geq 0.7$

##### (2) 研究計画変更の内容と経緯

令和2年度に研究を進めた結果、当初令和4年度までに予定していた研究内容を概ね実施し、実施計画書記載の目標について達成することができた。令和3年度に残りの研究を行い、目標を達成できる見込みであることから、当初の研究計画を変更して、令和3年度で研究を終了することとした。

#### 5 従事時間割合

		業務全体に占める当該研究の従事割合（％） （従事日数（日／年））	
		研究計画時	期間中実績（年平均）
研究代表者	大熊 一也	3 % ( 7.5 日/年)	16 % ( 40 日/年)
共同研究者	小川 武	% ( 日/年)	3 % ( 7.5 日/年)
	天野 直哉	3 % ( 7.5 日/年)	3 % ( 7.5 日/年)
	佐久間 隆	3 % ( 7.5 日/年)	2 % ( 5 日/年)
	太田 耕右	15 % ( 37.5 日/年)	16 % ( 40 日/年)
当該研究に要した延べ従事日数 (人・日／年)		60 人・日／年	100 人・日／年

## 6 関係文献・資料等

### (1) 関係文献・資料名

- [1] 井上ら, 2019年大気環境学会年会 ポスター発表 P-144#
- [2] 荒木ら, 2019年大気環境学会年会 口頭発表 2D0900
- [3] 太田ら, 2020年大気環境学会年会 誌上発表 0L009
- [4] 太田ら, 第46回全国環境研協議会北海道・東北支部研究連絡会議(書面開催) 演題 1
- [5] 太田ら, 令和2年度環境衛生技術職員研修「全体研修」 紙上発表 P50
- [6] 太田ら, 第36回宮城県保健環境センター研究発表会 口頭発表 P7
- [7] 小川ら, 第37回宮城県保健環境センター研究発表会 口頭発表 P8

### (2) 研究成果の外部への発表の状況

- ・ 2019年大気環境学会年会 (誌上発表)
- ・ 第46回全環研北海道・東北支部研究連絡会議 (誌上発表)
- ・ 令和2年度環境生活部環境衛生技術職員全体研修 (誌上発表)
- ・ 第36回保健環境センター研究発表会 (口頭発表)
- ・ 第37回保健環境センター研究発表会 (口頭発表)

## 7 添付資料

別添資料のとおり

## 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

## 目的・手法

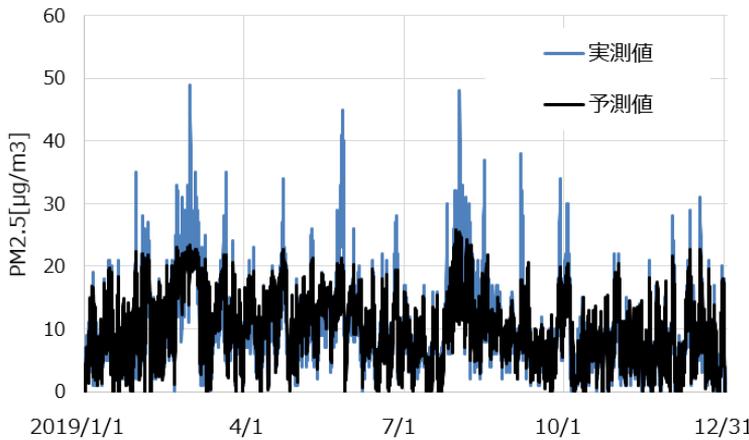
- ◆ 目的：7日後、ピンポイント地点のOx, PM<sub>2.5</sub>濃度を予測
- ◆ 予測手法：機械学習
  - 近年ではサポート体制の充実により、誰でも無料で利用可能



2

# 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<sup>[1]</sup>  
r=0.53  
1ヶ月平均値による予測<sup>[2]</sup>  
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 ポスター発表P-144#

3

# 研究計画

年度	R2	R3	R4
メインテーマ	モデル構築	モデル改良	モデル応用
予測期間・項目	1週間後のOx, PM <sub>2.5</sub> の一時間値		
目標精度 (相関係数r)	0.6	0.7	0.7
予測地点	岩沼測定局		測定局の無い 地点※

※七ヶ浜or多賀城を予定。移動測定車による測定データ、および周辺の測定局のデータを活用

4

添付資料

- <目的>
- 高濃度警報等の早急な発令のため、濃度予測手法の確立が必要
- <実施内容>
- 機械学習を用いたオキシダント及びPM2.5濃度の予測
- <成果>

予測項目	地点	精度 (実測値と予測値の相関係数)	教師データの種類	教師データの期間
1週間後のO <sub>3</sub> 1時間値 (2019.1.1~12.31)	岩沼局	r = 0.90	岩沼局O <sub>3</sub> PM2.5	2016.1.1~ 2018.12.31
1週間後のPM <sub>2.5</sub> 1時間値 (2019.1.1~12.31)	岩沼局	r = 0.83	岩沼局PM2.5, K	
1週間後のPM <sub>2.5</sub> 1時間値 (2019.1.1~2020.2.25)	測定用のない地点 (多賀城市)	r = 0.72	多賀城PM2.5 備置PM2.5	2017.5.30~ 2018.12.31
	測定用のない地点 (七ヶ浜町)	r = 0.70	七ヶ浜PM2.5 備置PM	
1週間後のO <sub>3</sub> 1時間値 (2019.1.1~2020.2.25)	測定用のない地点 (多賀城市)	r = 0.84	多賀城O <sub>3</sub> 電達O <sub>3</sub>	2017.5.30~ 2018.12.31
	測定用のない地点 (七ヶ浜町)	r = 0.91	七ヶ浜O <sub>3</sub> 電達O <sub>3</sub>	

添付資料 (補足)

過去の研究発表会のスライド抜粋

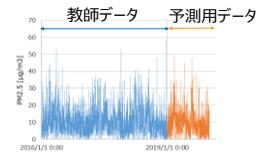
目的・手法

- ◆ 目的：7日後、ピンポイント地点のPM<sub>2.5</sub>濃度を予測
- ◆ 予測手法：機械学習
  - 近年ではサポート体制の充実により、誰でも無料で利用可能



本研究

- ◆ 項目：1週間後のPM<sub>2.5</sub>濃度(1時間値)
- ◆ 地点：岩沼局 (欠測が少なかったため)
- ◆ 教師データ：2016~2018年
- ◆ 評価用データ：2019年
- ◆ 予測手法：ニューラルネットワーク



※0未満の値→0  
欠測値→直近の値 に修正

予測環境

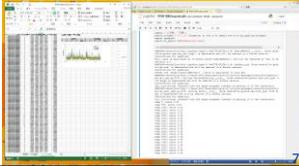
- ◆ 使用ライブラリ等：無料で利用可能
  - Python 3.5
  - TensorFlow 1.2.1：機械学習用ライブラリ
  - Numpy, Pandas：データ処理
  - Jupyter notebook：開発環境
  - Anaconda：環境構築
- ◆ 使用機器：市販PC
  - 製造元：NEC
  - プロセッサ：Intel Core i5
  - CPU@3.30GHz×2
  - メモリ：4GB



### 予測環境

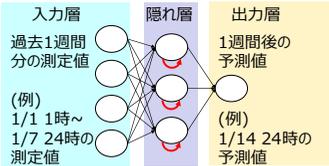
- ◆ 使用ライブラリ等：無料で利用可能
  - python 3.5
  - TensorFlow 1.2.1：機械学習用ライブラリ
  - ANACONDA：環境構築
  - Jupyter：開発環境
  - Numpy, Pandas：データ処理
- ◆ 使用機器：市販PC
  - 製造元：NEC
  - プロセッサ：Intel Core i5
  - CPU@3.30GHz×2
  - メモリ：4GB

作業画面（テレメータ室PC）



### 予測手法：ニューラルネットワーク

- ◆ 人間の脳細胞を数式的に表した予測手法
  - 本研究RNN(時系列分析が得意なニューラルネットワーク)を採用
  - Googleが提供するtf.nn.rnn\_cell.BasicRNNCellを独自に改良



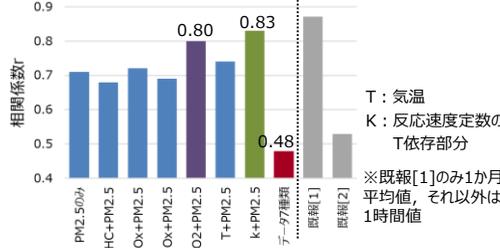
入力層：過去1週間分の測定値  
 (例) 1/1 1時～1/7 24時の測定値

隠れ層

出力層：1週間後の予測値  
 (例) 1/14 24時の予測値

※入出力はいずれもExcel形式

### 予測結果：使用データと精度の関係



項目	相関係数r
PM2.5のみ	0.70
NH <sub>4</sub> C+PM2.5	0.68
Ox+PM2.5	0.72
NOx+PM2.5	0.68
SO <sub>2</sub> +PM2.5	0.80
T+PM2.5	0.75
k+PM2.5	0.83
データ77種類	0.48
既報[1]	0.85
既報[2]	0.55

T：気温  
K：反応速度定数のT依存部分

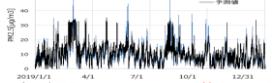
※既報[1]のみ1か月平均値，それ以外は1時間値

[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 ポスター発表P-144#

### 既往の研究(PM<sub>2.5</sub>の予測)

太田ら, 2020年大気環境学会年会 O-L-009

予測項目	地点	予測方法	教師データの期間	精度
1週間後のPM <sub>2.5</sub> 1時間値 (2019.1.1～12.31)	岩沼局 (塩釜保健所 岩沼支所 屋上)	機械学習 (ディープラーニング)	2016.1.1～2018.12.31	実測値と予測値との相関係数 r = 0.82

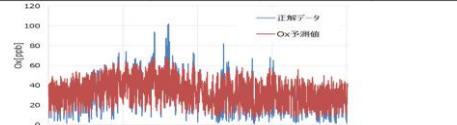


精度の高い予測を行うためには、**長期間のデータが必要**

### 既往の研究(Oxの予測)

太田ら, 2020年大気環境学会年会 O-L-009

予測項目	地点	予測方法	教師データの期間	精度
1週間後のOx 1時間値 (2019.1.1～12.31)	岩沼局 (塩釜保健所 岩沼支所 屋上)	機械学習 (ディープラーニング)	2016.1.1～2018.12.31	実測値と予測値との相関係数 r = 0.90



### データの少ない地点においても、予測ニーズ有り

- ◆ 大気環境移動測定車による測定 (H29～R1)

測定場所：多賀城市，七ヶ浜町  
 測定期間：1週間×4シーズン/年




測定イメージ

予測が可能になれば、**常時監視体制の強化につながる**

### 本研究

- ◆ 目的：データの少ない地点におけるPM<sub>2.5</sub>濃度の予測
- ◆ 手法：ディープラーニング(RNN)
  - 近年ではサポート体制が充実し、また無料で利用可能
  - Googleが提供するtf.nn.rnn\_cell.BasicRNNCellを活用

AI 機械学習

データから学習するAI  
(例：ニューラルネットワーク、ランダムフォレスト、SVM)

ディープラーニング

中間層が多層化したニューラルネットワークを用いた処理

ただし、何らかの工夫が必要

### 予測方法

- ◆ 項目：1週間後のPM<sub>2.5</sub>濃度(1時間値)
- ◆ 予測期間：2019年度の測定期間(下表)
- ◆ 教師データ：2017年5月30日1時～2018年12月31日24時測定していない期間においては、近隣(福室)のPM<sub>2.5</sub>測定値をもとに拡張データを作成し、教師データとして使用

2019年度	
多賀城	七ヶ浜
6/20~6/26	6/12~6/18
9/13~9/19	9/21~9/27
11/12~11/18	11/20~11/26
2/11~2/17	2/19~2/25

### 拡張データの作成

(1)2017~2018年度における測定期間(下表)について、福室と多賀城/七ヶ浜とのPM<sub>2.5</sub>濃度の関係式を求める

	2017年度	2018年度
多賀城	6/6~6/12	6/19~6/25
	7/21~7/27	8/14~8/20
	10/20~10/26	10/11~10/17
	1/26~2/1	2/13~2/19
七ヶ浜	6/30~7/6	5/25~5/31
	7/13~7/19	8/23~8/29
	10/12~10/18	10/19~10/25
	2/15~2/21	2/21~2/27

多賀城PM<sub>2.5</sub> =  
 $0.952 \times \text{福室PM}_{2.5} + 1.2245$

七ヶ浜PM<sub>2.5</sub> =  
 $0.7332 \times \text{福室PM}_{2.5} + 2.6808$

(2)測定していない期間について、関係式を用いて福室のPM<sub>2.5</sub>濃度から多賀城/七ヶ浜のPM<sub>2.5</sub>濃度を算出し、拡張データとする

### 教師データの選定

◆ PM<sub>2.5</sub>の生成機構を参考に、関連する物質を選定

PM<sub>2.5</sub>  
SPM  
Ox  
NOx  
SO<sub>2</sub>

※有機化合物(非メタン炭化水素)は、周辺局の長期欠測のためデータ使用不可

坂本和彦. 粒子状物質による大気汚染の変遷と現状. 表面科学, 2015, 36(3), p.141-143.

### 予測結果：教師データと予測精度との関係

教師データの種類※	実測値と予測値との相関係数	
	多賀城	七ヶ浜
福室Ox	0.39	0.47
福室NOx	0.68	0.62
福室SO <sub>2</sub>	0.66	0.67
福室PM <sub>2.5</sub>	0.72	0.26
塩釜Ox	0.46	0.48
塩釜NOx	0.67	0.60
塩釜SPM	0.65	0.70

※このほか、多賀城もしくは七ヶ浜のPM<sub>2.5</sub>(拡張データと実測データ)を教師データに使用

多賀城：福室PM<sub>2.5</sub>, 七ヶ浜：塩釜SPM を学習させると精度が向上

### 考察：教師データと精度の関係

風向頻度(多賀城)

風向頻度(七ヶ浜)

塩釜→七ヶ浜, 福室→多賀城への風による粒子の移動が影響か

## まとめ



- ◆ 機械学習(ディープラーニング)と大気環境の知見を併用することで、特定の地点における1週間後のPM<sub>2.5</sub>濃度を予測
- ◆ 教師データが少ない場合でも、周辺局における測定データをもとに拡張データを作成すれば予測は可能
- ◆ この方法は、光化学オキシダントといった他の物質の濃度予測にも適用できる可能性が示唆

19

## 予測方法



- ◆ 項目：7日後のOx濃度(1時間値)
- ◆ 予測期間：2019年度の測定期間(下表)
- ◆ 教師データ：2017年5月30日1時～2018年12月31日24時  
測定していない期間においては、**近隣(塩釜)のOx測定値をもとに拡張データを作成し、教師データとして使用**



2019年度	
多賀城	七ヶ浜
6/20~6/26	6/12~6/18
9/13~9/19	9/21~9/27
11/12~11/18	11/20~11/26
2/11~2/17	2/19~2/25

予測が可能になれば、常時監視体制の強化につながる

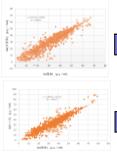
20

## 拡張データの作成



- (1)2017~2018年度における測定期間(下表)について、塩釜と多賀城/七ヶ浜とのOx濃度の関係式を求める

	2017年度	2018年度
多賀城	6/6~6/12	6/19~6/25
	7/21~7/27	8/14~8/20
	10/20~10/26	10/11~10/17
	1/26~2/1	2/13~2/19
七ヶ浜	6/30~7/6	5/25~5/31
	7/13~7/19	8/23~8/29
	10/12~10/18	10/19~10/25
	2/15~2/21	2/21~2/27



$$\text{多賀城Ox} = 0.9733 \times \text{塩釜Ox} - 0.0987$$

$$\text{七ヶ浜Ox} = 0.9894 \times \text{塩釜Ox} - 0.8241$$

- (2)測定していない期間について、関係式を用いて塩釜のOx濃度から多賀城/七ヶ浜のOx濃度を算出し、拡張データとする

21

## まとめ



- ◆ 多賀城、七ヶ浜とも、Ox予測値と実測値の相関係数に精度の良い結果が得られた。
- ◆ 固定局のない地域や取得可能なデータ量が限られる地点においても、地理的に近い地点のデータをもとに拡張データを作成し、教師データとして用いることにより、実測値に近い精度で予測し、再現できることが確認された。

22

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	機械学習による大気汚染物質濃度の予測(2020)			部名	大気環境部	
節区分	計画額	最終予算額	決算額	算出基礎		
7 報償費	0	0	0	@ × 時間	0	
8 旅費	36	36	0	「Pythonによる機械学習・集団学習の基礎と活用例」への参加 (東京都内, 1泊2日)⇒オンライン開催に変更	@ 35,900 × 0人	0
	23	23	0	「時系列データ解析・モデル化手法の基礎と予測・検知への応用」への参加 (東京都内, 日帰り)⇒オンライン開催に変更	22,800 × 0人	0
	46	46	0	大気環境学会年会への参加及び発表 (信州大学(長野県松本市), 2020年9月16~18日のうち1泊2日)⇒誌上開催に変更	45,400 × 0人	0
10-1 需用費	7	7	2	ガソリン代(産業技術総合センターおよび大学等)		948
					計	948
					税込10%	1,043
13 使用料	0	0	0			
18 負担金	72	72	50	「Pythonによる機械学習・集団学習の基礎と活用例」への参加	@ 49,500 × 1人	49,500
	49	49	50	「時系列データ解析・モデル化手法の基礎と予測・検知への応用」への参加	@ 49,500 × 1人	49,500
	14	14	10	大気環境学会年会への参加及び発表(誌上发表)	@ 10,000 × 1人	10,000
	2	2	0	人工知能学会入会費	@ 0 × 0人	0
	10	10	15	人工知能学会年会費	@ 15,000 × 1人	15,000
計	259	259	127			

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	機械学習による大気汚染物質濃度の予測(2021)			部名	大気環境部		
節区分	計画額	最終予算額	決算額	算出基礎			
7 報償費	0	0	0	@	×	時間	0
8 旅費	36	36	0	日本テクノセンター主催のセミナー* (予測モデル改良, Pythonの計算手法等)への参加 (東京都内, 1泊2日)⇒オンライン開催に変更	@	35,900 × 0人	0
	23	23	0	日本テクノセンター主催のセミナー* (予測モデル改良, Rの計算手法等)への参加 (東京都内, 日帰り)⇒オンライン開催に変更	@	22,800 × 0人	0
	46	46	0	大気環境学会年会への参加 ⇒オンライン開催に変更	@	45,400 × 0人	0
10-1 需用費	7	7	0	ガソリン代(産業技術総合センターおよび大学等)			0
						計	0
						税込10%	0
13 使用料	0	0	0				
18 負担金	72	72	50	日本テクノセンター主催のセミナー* (予測モデル改良, Pythonの計算手法等)への参加 (東京都内, 1泊2日)⇒オンライン開催に変更	@	49,500 × 1人	49,500
	49	49	50	日本テクノセンター主催のセミナー* (予測モデル改良, Rの計算手法等)への参加 (東京都内, 日帰り)⇒オンライン開催に変更	@	49,500 × 1人	49,500
	14	14	0	大気環境学会年会への参加及び発表 ⇒オンライン開催に変更(発表なし, 参加費は別課題でエントリー登録)	@	0 × 0人	0
	10	10	15	人工知能学会年会費	@	15,000 × 1人	15,000
計	257	257	115				

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	機械学習による大気汚染物質濃度の予測(2022)			部名	大気環境部	
節区分	計画額	最終予算額	決算額	算出基礎		
7 報償費	0			@	×	時間 0
8 旅費	36			日本テクノセンター主催のセミナー*（予測モデル応用、Pythonのデータ前処理方法等）への参加 （東京都内、1泊2日）⇒オンライン開催に変更	@ 35,900	× 1人 35,900
	23			日本テクノセンター主催のセミナー*（予測モデル改良、Pythonのデータ前処理方法等）への参加 （東京都内、日帰り）⇒オンライン開催に変更	@ 22,800	× 1人 22,800
	46			大気環境学会年会への参加及び発表 ※場所、日程未定	@ 45,400	× 1人 45,400
10-1 需用費	7			ガソリン代（産業技術総合センターおよび大学等）	@ 140	× 40 L 5,600 計 5,600 税込10% 6,160
13 使用料	0					
18 負担金	72			日本テクノセンター主催のセミナー*（予測モデル応用、Pythonのデータ前処理方法等）への参加 （東京都内、1泊2日）	@ 71,280	× 1人 71,280
	49			日本テクノセンター主催のセミナー*（予測モデル改良、Pythonのデータ前処理方法等）への参加 （東京都内、日帰り）	@ 48,600	× 1人 48,600
	14			大気環境学会年会への参加及び発表 ※場所、日程未定	@ 14,000	× 1人 14,000
	10			人工知能学会年会費	@ 10,000	× 1人 10,000
				<b>※上記については、事前評価時点での計画内容である(参考記載)。</b>		
計	257	0				



## 課題評価調書(事後評価)

令和4年8月12日

評価の種類	事後評価		
整理番号	経-終4	研究課題名	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
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		研究代表者名 吉川 弓林
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 平成28年度～令和3年度
研究経費	総額 2,661千円		

## 1 研究目的・背景

微小粒子状物質(以下、「PM2.5」という。)は、呼吸器及び循環器への影響が懸念されているが、PM2.5及びその前駆物質の挙動等に関する知見が十分でないことから、効果的な微小粒子状物質対策の検討のため、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24年度からPM2.5のイオン成分、無機元素成分及び炭素成分の分析を行っている。さらに平成28年度からは、炭素成分の多くを占める水溶性有機炭素の一つであり、バイオマス燃焼時の指標とされるレボグルコサンについて分析条件を検討し、分析を始めたところ、地点により炭素成分が高濃度に検出される事例が認められた。そこで、レボグルコサンのさらなるデータの蓄積と植物由来であるピノン酸や光化学反応由来のコハク酸を分析することにより、PM2.5発生源の推測や寄与割合の把握に繋げることとした。

## 2 研究成果

## (1) 成果

## 1) 分析法の確立

令和元年度にレボグルコサン、コハク酸、ピノン酸の一斉分析法を確立し、それに加え、令和2年度には光化学反応のマーカであるリンゴ酸、マレイン酸、アゼライン酸、スベライン酸と、バイオマス燃焼のマーカであるマンノサンのGC/MS一斉分析法の検討を行い、同じ分析条件で一斉分析が可能であることを確認した(表1, 図1)。

決定した分析条件で一斉分析を行った結果、令和2年度の回収率は、60～117%で、春季・秋季のリンゴ酸及び春季のアゼライン酸が70%に達しなかったが、令和3年度の回収率は、全ての成分が70～120%の範囲内であった(表2)。これは、試料の前処理操作には熟練を要するため、熟練の度合いが影響していると思われる。

2) 名取自動車排出ガス測定局（以下「名取自排局」）及び石巻一般環境大気測定局（令和2年10月から石巻西局に移設, 以下「石巻局」）におけるPM2.5成分分析結果

#### ①質量濃度

平成28年度から令和3年度までのPM2.5質量濃度は、名取自排局が0.9~27.9 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ で平均値は8.6 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ 、石巻局が0.8~40.1 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ で平均値は9.1 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ と、自動車排出ガス測定局である名取自排局よりも、一般環境測定局である石巻局の方が高い値であった（図2）。

#### ②レボグルコサン及びマンノサン

バイオマス燃焼の指標となるレボグルコサン及びマンノサン濃度は、両局ともに秋季及び冬季に高く、質量濃度に占める割合も大きかった（図3,4）。また、レボグルコサン/マンノサン比（以下「L/M」）は、両局ともに秋季は高く（>10）、冬季は低い値（<10）であった（図5）。広葉樹及び作物残渣の燃焼でL/Mは高くなる（>10）<sup>5)</sup>との報告があることから、秋季は収穫後の稲わらや落葉、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。

後方流跡線解析では、冬季に中国東北部からの移流がみられたこと（図6）、また、両局ともに秋季及び冬季は内陸寄りの風（図7,8）となっていることから越境汚染の可能性も考え、広域汚染の指標となるPb及びAsとレボグルコサンの相関を確認した結果、 $R^2$ は0.07~0.19と、両局とも低い結果であった（図9,10）。

上記の結果を踏まえ、秋季及び冬季のレボグルコサン濃度を平日と休日に分けて比較したところ、両局とも冬季においては差がみられなかったが、秋季においては名取自排局の平日の中央値が31 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ 、休日の中央値が37 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ 、石巻局の平日の中央値が41 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ 、休日の中央値が58 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ と、休日の方が高い結果となった（図11）。これは、平日より人手が確保しやすい休日に、農作物の野外焼却を行うことが背景にあるのではないかと推察された。

#### ③コハク酸及びピノン酸

光化学反応の指標となるコハク酸濃度とオキシダント濃度の令和元年度から令和3年度までの季節別平均値は、両局とも春季が最も高い値であった（図12,13）。

植物由来二次有機粒子の指標であるピノン酸は、両局ともに春季に高く、冬季に低い値であり、一年を通して検出された。これは、ピノン酸が、主に広葉樹を起源とする $\alpha$ -ピネンから二次生成されることが要因のひとつと考えられる（図14）。

コハク酸、ピノン酸ともに春季に高い値を示したことから、オキシダント濃度との比較を行ったが、両成分ともに相関はみられなかった（図15~18）。

#### ④その他の有機酸

一斉分析法による検出下限値は、リンゴ酸4.0 $\text{ng}/\text{m}^3$ 、マレイン酸5.5 $\text{ng}/\text{m}^3$ 、アゼライン酸7.2 $\text{ng}/\text{m}^3$ 、スベライン酸6.7 $\text{ng}/\text{m}^3$ で、令和2年度から令和3年度までの検出下限値以上の割合は、リンゴ酸が名取自排局で34%、石巻局で30%、アゼライン酸が石巻局で5.4%であり、マレイン酸、スベリン酸、及び名取自排局のアゼライン酸は、全て検出下限値未満であった（表3）。

#### ⑤PMF解析結果

多数組の観測データを用い、主要発生源（影響因子）に分解する手法であるPositive Matrix Factorization（以下「PMF」）解析により、各因子の寄与割合を推定した（表4）。

平成28年度から令和3年度までのイオン成分、無機元素、炭素成分（従来項目）の分析結果を用いてPMF解析を行った結果、発生源として5因子が推定され（図19）、Bootstrap法による統計的妥当性

の検証では、100回計算を行った場合のマッチングの当てはまりが91～99回という結果であった（表5）。

一方、従来項目にレボグルコサン、コハク酸、ピノン酸を分析データに加えた令和元年度から令和3年度までの分析結果を用いてPMF解析を行ったところ、発生源として6因子が推定され（図20）、Bootstrap法においても、マッチングの当てはまりが100回の計算中95～100回と、従来項目のみの場合よりも良好な結果が得られた（表6）。

新たにレボグルコサン、コハク酸、ピノン酸の分析結果を加えることで、より詳細な発生源の推定が可能となり、その有効性を確認することができた。

PMF解析により得られた6つの因子の割当と指標となった成分を表7に示す。令和元年度から令和3年度のPMF解析結果は採取地点ごとにそれぞれ特徴がみられ、名取自排局では道路交通が一年を通じて高く、一方、石巻局では生物起源二次有機粒子、二次生成硫酸塩、海塩粒子が比較的高い割合を占めた（図21、22）。また、両局ともに春季は生物起源二次有機粒子、夏季は海塩粒子、秋季及び冬季はバイオマス燃焼の占める割合が高く、季節により特徴がみられた。

## (2) 成果の活用と波及効果

従来の分析項目に加え、レボグルコサンや有機酸を分析項目に追加し、解析を行うことで、より詳細な発生源寄与割合の推定が可能となり、地点別、季節別の特徴が推定できたことから、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。

また、今後も解析データの蓄積を図り、発生源寄与割合の経年変化を推定することにより、実情に即したPM2.5対策や、PM2.5対策後の効果判定に活用できると考える。

## (3) 使用した主な分析機器

- ・炭素成分分析装置
- ・全有機体炭素計（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）

## 3 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、成分分析について平成 24 年度から質量濃度、イオン成分、無機元素成分及び炭素成分の測定を行ってきたが、これらの成分以外の物質についても詳細に調査を行うことは PM2.5 削減対策の貴重な資料となる。

(3) 担当課名

環境対策課

4 研究計画

(1) 当初の研究計画

・平成 28 年度～平成 30 年度

- ①PM2.5 中のレボグルコサンの分析条件等の検討及び分析
- ②PM2.5 の成分分析（質量濃度、イオン成分、無機元素成分、炭素成分、水溶性有機炭素）
- ③PM2.5 高濃度汚染時の分析（越境汚染等による高濃度汚染が予想される場合に試料採取）
- ④火力発電所設置予定地点周辺調査（※平成 29 年度：稼働前、平成 30 年度：稼働後）

(期間延長による追加)

・令和元年度～令和 3 年度

- ①PM2.5 中のレボグルコサン及び有機酸(ピノン酸, コハク酸)の分析条件等の検討と分析及び解析
- ②PM2.5 の成分分析（質量濃度、イオン成分、無機元素成分、炭素成分、水溶性有機炭素）及び解析
- ③火力発電所設置予定地点周辺調査（稼働後：令和元年度まで）
- ④発生源解析により有効となる有機酸等の分析条件の検討と分析及び結果の解析（令和 2～3 年度）

(2) 研究計画変更の内容と経緯

PM2.5 の成分分析結果から、PM2.5 の挙動には広範囲に影響を及ぼす要因と、観測点に近い発生源からの一時的な影響があると推測することができた。この推測を検証するためには、さらに情報を集積して検討する必要がある。また、これまで測定されていなかった有機酸の分析を追加することにより、PM2.5 の挙動のさらに正確な把握につなげられることが考えられた。

以上の状況に加え、当初計画期間での中間評価の際に、外部評価委員から延長も念頭に計画を適宜見直すよう意見を受けていたこともあり、健康影響が懸念されながら未解明な部分が多い PM2.5 に係る対策を検討するために、期間を延長し、それまでのレボグルコサンの分析を継続するとともに、新たに有機酸の分析を追加することとした。

5 従事時間割合

		業務全体に占める当該研究の従事割合（％） （従事日数（日／年））	
		研究計画時	期間中実績（年平均）
研究代表者	福原 郁子	4 % ( 10 日/年)	6 % ( 13 日/年)
	吉川 弓林	% ( 日/年)	3 % ( 8 日/年)

共同研究者	三沢 松子	% ( 日/年)	1 % ( 1 日/年)
	佐藤 健一	% ( 日/年)	1 % ( 1 日/年)
	大熊 一也	% ( 日/年)	1 % ( 2 日/年)
	天野 直哉	% ( 日/年)	3 % ( 8 日/年)
	佐久間 隆	8 % ( 20 日/年)	4 % ( 10 日/年)
	佐藤 由美	4 % ( 10 日/年)	1 % ( 3 日/年)
	小川 武	3 % ( 7 日/年)	1 % ( 2 日/年)
	菱沼 早樹子	% ( 日/年)	1 % ( 2 日/年)
	岩田 睦	% ( 日/年)	1 % ( 2 日/年)
	日野 栞	4 % ( 10 日/年)	1 % ( 2 日/年)
	太田 栞	% ( 日/年)	3 % ( 8 日/年)
	太田 耕右	% ( 日/年)	1 % ( 1 日/年)
当該研究に要した延べ従事日数 (人・日/年)		57 人・日/年	63 人・日/年

## 6 関係文献・資料等

### (1) 関係文献・資料名

- 1) 環境省告示 「微小粒子状物質による大気汚染に係る環境基準について」(平成21年9月9日環告33)
- 2) 環境省水・大気環境局大気環境課長, 自動車環境対策課長通知 「大気中微小粒子状物質(PM2.5)成分測定マニュアルの策定について」(平成24年4月19日環水大大発120419002号, 環水大自発第120419001号)
- 3) 環境省 「一次発生及び二次生成有機粒子の指標物質の測定方法」
- 4) 環境省環境研究総合推進費終了研究等成果報告書 「有機マーカーに着目したPM2.5の動態把握と正値行列因子分解モデルによる発生源寄与評価(平成26年度～平成28年度)」
- 5) 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, *Atmos. Chem. Phys.*, 13, 7765-7781(2013)
- 6) U.S. Environmental Protection Agency EPA Positive Matrix Factorization(PMF)5.0 Fundamentals and User Guide

### (2) 研究成果の外部への発表の状況

- 1) 第33回保健環境センター研究発表会での発表(平成30年3月2日 宮城県保健環境センター)(石巻・名取におけるPM2.5のレボグルコサンについて)
- 2) 宮城県保健環境センター年報 No.36 2018に掲載(石巻・名取におけるPM2.5のレボグルコサンについて)

- 3) 第34回保健環境センター研究発表会での発表（平成31年3月1日 宮城県保健環境センター）  
（石巻・名取におけるPM2.5のレボグルコサンについて（第2報））
- 4) 宮城県保健環境センター年報 No.37 2019に掲載  
（石巻・名取におけるPM2.5のレボグルコサンについて（第2報））
- 5) 第35回保健環境センター研究発表会での発表（令和2年3月4日 宮城県保健環境センター）  
（レボグルコサンと有機酸の一斉分析についての検討）
- 6) 宮城県保健環境センター年報 No.38 2020に掲載  
（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）
- 7) 宮城県保健環境センター年報 No.39 2021に掲載  
（宮城県における大気中微小粒子状物質（PM2.5）成分分析結果）
- 8) 第37回保健環境センター研究発表会での発表（令和4年3月4日 宮城県保健環境センター）  
（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）

## 7 添付資料

別紙のとおり

表 1 GC/MS 分析条件

装置	GCMS-QP2010Ultora (島津)
カラム	DB-5MS(Agilent J&W) (内径0.18 mm,長さ20 m,膜厚0.18 μm)
カラム温度	60°C(2min)→(5°C/min)→200°C(2min) →(27°C/min)→300°C(7min)
注入	スプリットレス(注入時間1min), 1μL, 270°C
キャリアス	ヘリウム(流速約1mL/min)
イオン源	EI法, 70eV, 230°C
測定方法	Scan / SIM 検出法

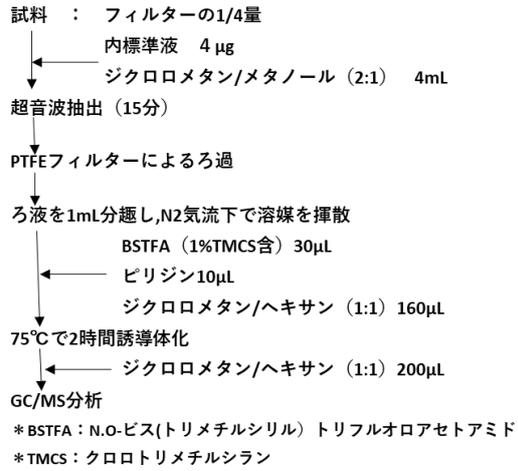


図 1 GC/MS 一斉分析法抽出フロー

表 2 一斉分析法回収率

	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	レボグルコサン	マンノサン
R2 春季	117	77	60	95	69	90	116	90
R2 夏季	99	95	77	96	103	101	106	78
R2 秋季	100	95	60	75	109	114	98	78
R2 冬季	80	87	77	103	73	88	101	117
R3 春季	111	92	76	119	73	92	116	94
R3 夏季	118	95	77	117	78	90	120	82
R3 秋季	99	92	74	89	90	98	98	93
R3 冬季	95	94	89	82	92	96	101	89

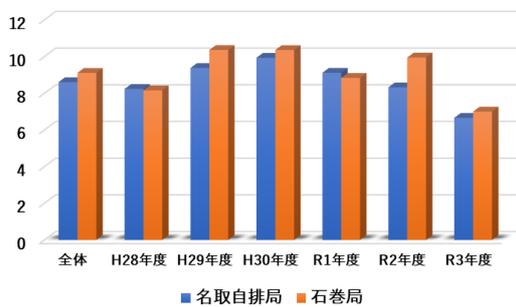


図 2 平成 28 年度～令和 3 年度名取自排局及び石巻局における PM2.5 質量濃度の平均値 (μg/m³)

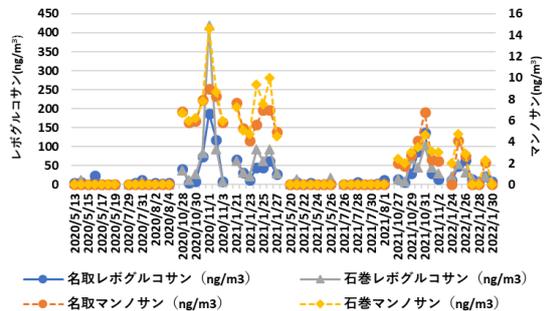


図 3 平成 28 年度～令和 3 年度名取自排局及び石巻局における PM2.5 成分中レボグルコサン濃度とマンノサン濃度

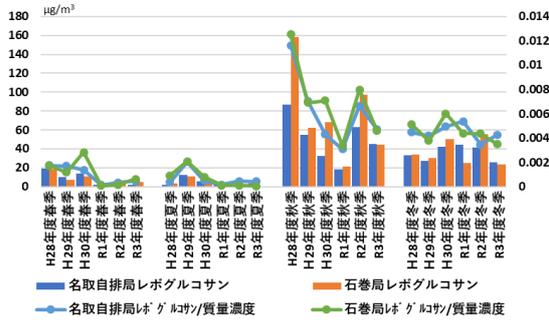


図4 平成28年度～令和3年度名取自排局及び石巻局におけるPM2.5成分中レボグルコサン濃度の平均値と質量濃度比

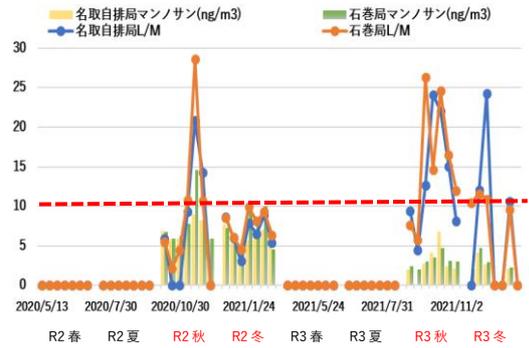


図5 令和2年度～令和3年度名取自排局及び石巻局におけるPM2.5成分中マンノサン濃度とL/M

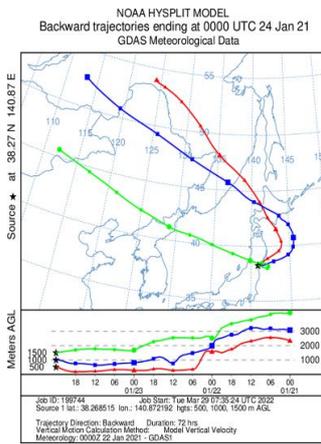


図6 令和3年1月24日後方流跡線解析

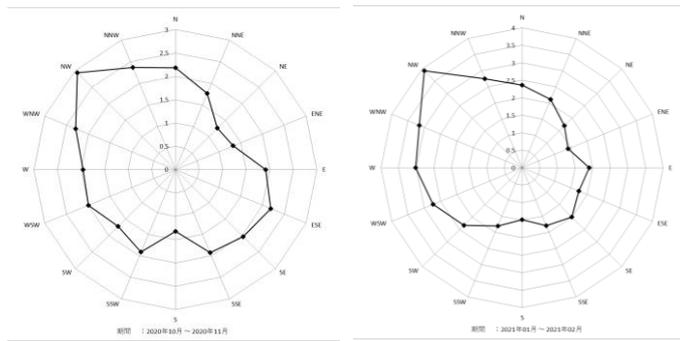


図7 令和2年度10～11月及び1～2月における岩沼局風向別風速 (m/s)

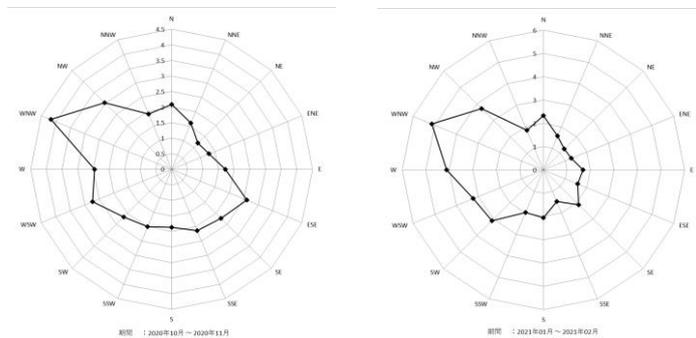


図8 令和2年度10～11月及び1～2月における石巻西局風向別風速 (m/s)

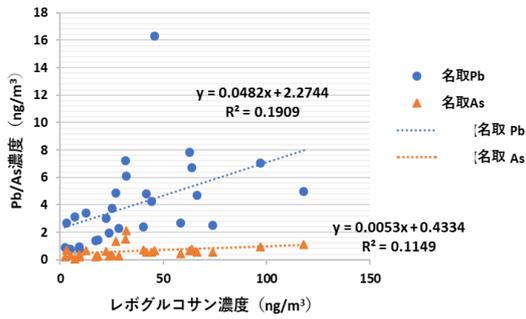


図 9 令和元年度～令和 2 年度秋季及び冬季における名取自排局のレボグルコサン濃度と Pb・As 濃度

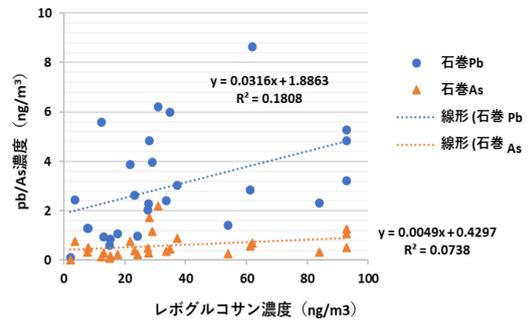


図 10 令和元年度～令和 2 年度秋季及び冬季における石巻西局のレボグルコサン濃度と Pb・As 濃度

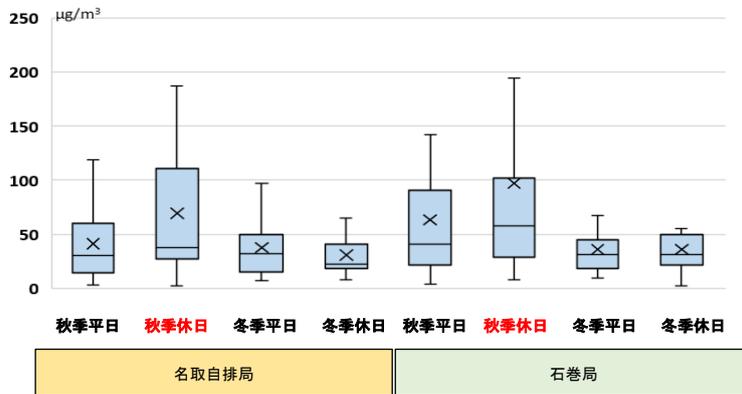


図 11 平成 28 年度～令和 3 年度名取自排局及び石巻局における平日・休日別レボグルコサン濃度

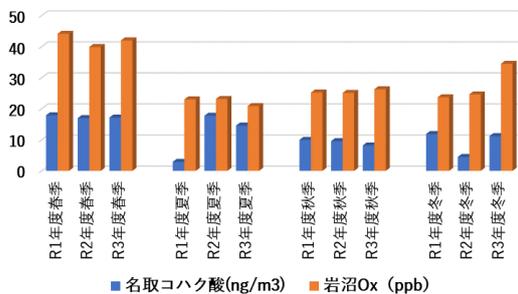


図 12 令和元年度～令和 3 年度名取自排局におけるコハク酸濃度及びオキシダント濃度季節別平均値

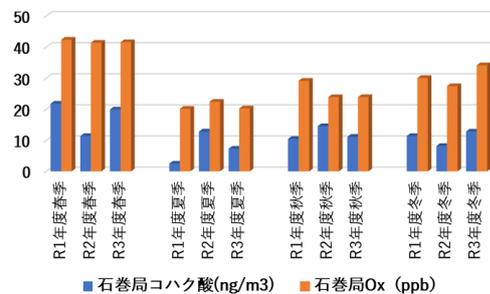


図 13 令和元年度～令和 3 年度石巻局におけるコハク酸濃度及びオキシダント濃度季節別平均値

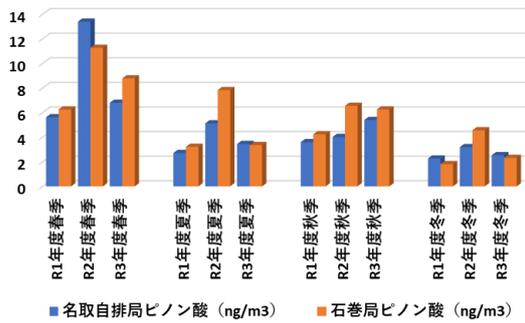


図 14 令和元年度～令和3年度名取自排局及び石巻局におけるピノン酸濃度

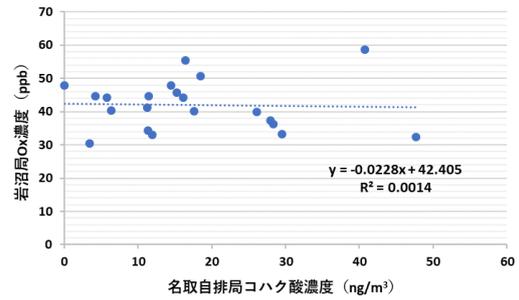


図 15 令和元年度～令和3年度春季における名取自排局のコハク酸濃度及び岩沼局のオキシダント濃度

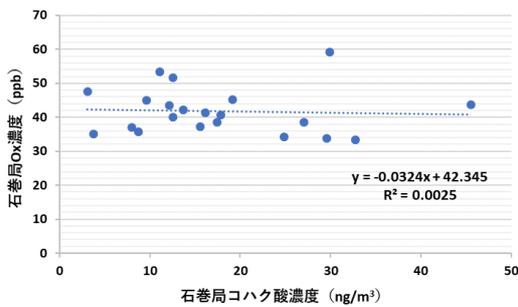


図 16 令和元年度～令和3年度春季における石巻局のコハク酸濃度及びオキシダント濃度

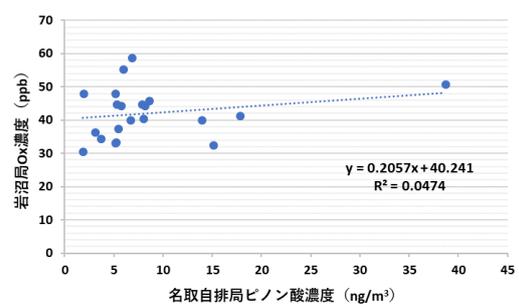


図 17 令和元年度～令和3年度春季における名取自排局のピノン酸濃度と岩沼局におけるオキシダント濃度

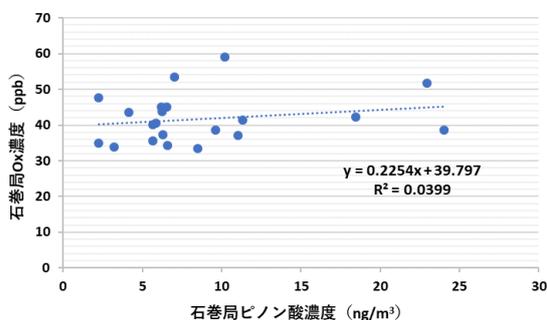


図 18 令和元年度～令和3年度春季における石巻局のピノン酸濃度及びオキシダント濃度

表 3 令和2年度～令和3年度名取自排局及び石巻西局における有機酸の検出下限値以上の割合

(単位：%)

	名取自排局	石巻局
リンゴ酸	34	30
マレイン酸	0	0
アゼライン酸	0	5.4
スベリン酸	0	0

表 4 PMF 解析条件

解析ソフト	EPA PMF5.0
解析データの抽出	<ul style="list-style-type: none"> <li>・イオンバランス (0.7~1.3)</li> <li>・マスクロージャーモデル (0.7~1.3)</li> <li>・検出下限値未満のデータが20%を超える成分を除外</li> </ul>
対象期間及び解析データ数	<ul style="list-style-type: none"> <li>・平成28年度~令和3年度：20成分、247データ</li> <li>・令和元年度~令和3年度：23成分、127データ</li> </ul>
解析対象成分	質量濃度, OC, EC, Cl <sup>-</sup> , SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup> , NO <sub>3</sub> <sup>-</sup> , Na <sup>+</sup> , NH <sub>4</sub> <sup>+</sup> , K <sup>+</sup> , Mg <sup>2+</sup> , Ca <sup>2+</sup> , Al, V, Mn, Fe, Sb, Ba, Pb, As, Mo, レボグルコサン*, コハク酸*, ピノン酸* (* : 令和元年度~令和3年度のみ)

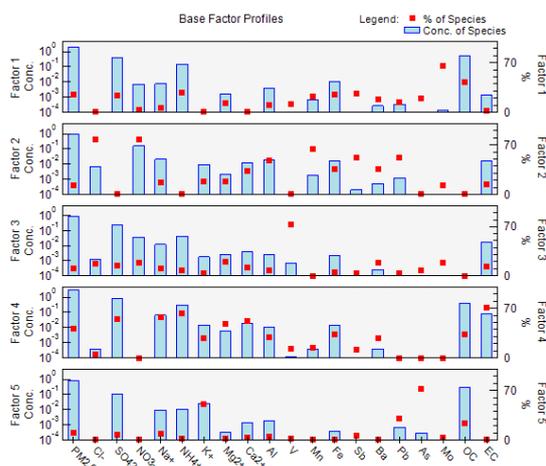


図 19 平成 28 年度~令和 3 年度因子別成分濃度及び成分割合

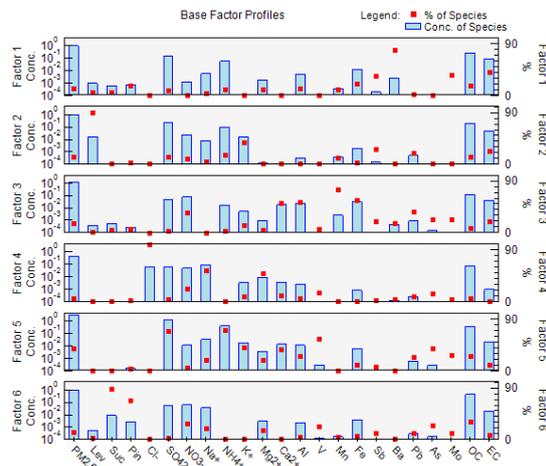


図 20 令和元年度~令和 3 年度因子別成分濃度及び成分割合

表 5 平成 28 年度~令和 3 年度データでの Bootstrap 法による検証結果

	Factor 1	Factor 2	Factor 3	Factor 4	Factor 5	Unmapped
Boot Factor 1	93	5	0	0	2	0
Boot Factor 2	0	95	0	0	5	0
Boot Factor 3	1	1	98	0	0	0
Boot Factor 4	0	1	0	99	0	0
Boot Factor 5	4	5	0	0	91	0

表 6 令和元年度~令和 3 年度データでの Bootstrap 法による検証結果

	Factor 1	Factor 2	Factor 3	Factor 4	Factor 5	Factor 6	Unmapped
Boot Factor 1	96	0	1	0	0	3	0
Boot Factor 2	0	100	0	0	0	0	0
Boot Factor 3	0	0	95	0	3	2	0
Boot Factor 4	0	0	0	100	0	0	0
Boot Factor 5	0	0	0	0	96	4	0
Boot Factor 6	0	0	0	0	1	99	0

表 7 令和元年度～令和 3 年度 PMF 解析結果の推定因子と指標成分

因子名	推定因子	指標成分
Facter1	道路交通	EC, Ba, Sb
Facter2	バイオマス燃焼	レボグルコサン, K <sup>+</sup>
Facter3	土壌	Mn, Fe, Al, Ca <sup>2+</sup>
Facter4	海塩粒子	Na <sup>+</sup> , Cl <sup>-</sup> , Mg <sup>2+</sup>
Facter5	二次生成硫酸塩	SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup> , NH <sub>4</sub> <sup>+</sup>
Facter6	生物起源二次生成有機粒子	コハク酸, ピノン酸

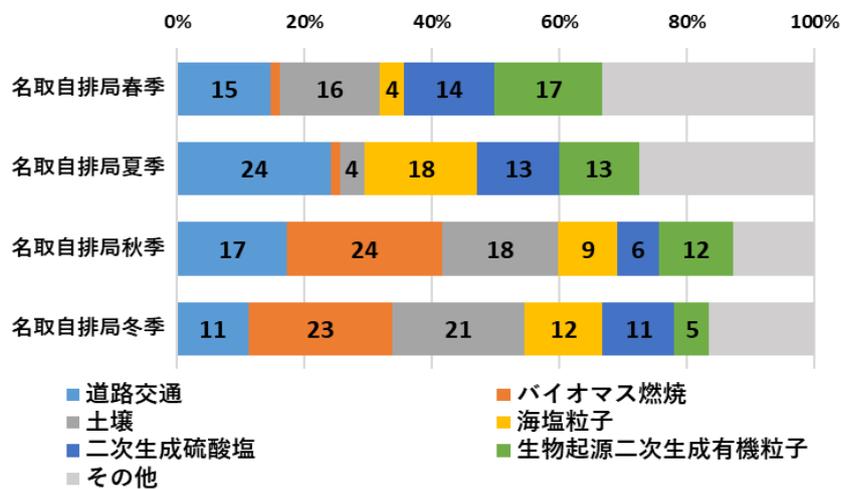


図 21 令和元年度～令和 3 年度名取自排局 PM2.5 寄与割合

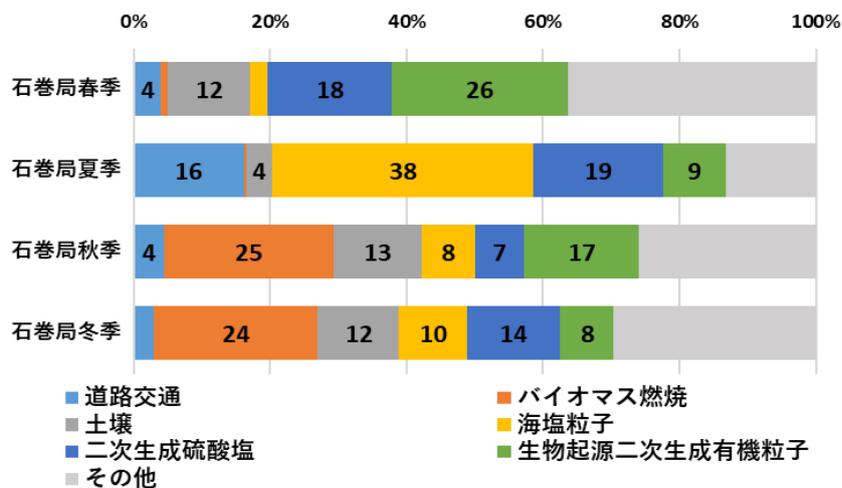


図 22 令和元年度～令和 3 年度石巻局 PM2.5 寄与割合

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中のレボグルコサンと有機酸の解析(2016)			部名	大気環境部		
節区分	計画額	最終予算額	決算額	算 出 基 礎			
9 旅費	109	96	96	大気環境学会年会(札幌市内, 三泊四日) @	95,100 ×	1 人	95,100
11-1 需用費	294	294	190	1. 試薬・資材			
				内標準試薬レボグルコサンd体	@ 125,280 ×	1 本	125,280
				分析カラム	@ 58,969 ×	1 個	58,969
				2. 資料代			
				要旨集	@ 5,000 ×	1 冊	5,000
						小計	189,249
14 使用料	32	32	23	自動車道使用料			
				利府中～鳴瀬奥松島～名取	@ 1,940 ×	7 回	13,580
				利府中～鳴瀬奥松島	@ 610 ×	4 回	2,440
				利府中～鳴瀬奥松島～多賀城	@ 1,370 ×	2 回	2,740
				利府中～松島北	@ 400 ×	2 回	800
				泉～築館	@ 1,360 ×	2 回	2,720
						小計	22,280
19 負担金	10	10	7	参加費(大気環境学会年会)	@ 7,000 ×	1 人	7,000
計	445	432	316				313,629

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中のレボグルコサンと有機酸の解析(2017)			部名	大気環境部		
節区分	計画額	最終予算額	決算額	算出基礎			
9 旅費	112	84	84	大気環境学会年会(神戸市内, 3泊4日)@	83,940 ×	1 人	83,940
11-1 需用費	225	225	220	1. 試薬・資材			
				石英繊維フィルター	@ 16,000 ×	0 箱	0
				ガラス製シリンジ	@ 450 ×	35 本	15,750
				ジクロロメタン	@ 3,500 ×	0 本	0
				メタノール	@ 2,300 ×	0 本	0
				ヘキサン	@ 2,400 ×	0 本	0
				ピリジン	@ 1,000 ×	1 本	1,000
				誘導体化試薬(BSTFA+1%-TMCS)	@ 12,320 ×	3 箱	36,960
				レボグルコサン	@ 5,950 ×	1 本	5,950
				内標準試薬	@ 116,000 ×	0 本	0
				スクリーバイアル	@ 18,600 ×	1 箱	18,600
				スクリーバイアルキャップ	@ 20,200 ×	1 箱	20,200
				マイティバイアル	@ 7,100 ×	2 箱	14,200
				マイクロシリンジ(100μL)	@ 6,300 ×	2 本	12,600
				マイクロシリンジ(500μL)	@ 5,900 ×	2 本	11,800
				円錐型ねじ口遠沈管	@ 495 ×	10 本	4,950
				円錐型ねじ口遠沈管	@ 504 ×	60 本	30,240
				ペトリスライド	@ 13,000 ×	2 箱	26,000
				2. 燃料費			
				ガソリン代(小型車 15km/L)	@ 119 ×	0 L	0
						試薬・資材計	198,250
						税込8%	214,110
				3. 資料代			
				要旨集	@ 5,000 ×	1 冊	5,000
						需用費計	219,110
14 使用料	24	24	16	自動車道使用料			
				利府中～鳴瀬奥松島	@ 610 ×	10 回	6,100
				鳴瀬奥松島～名取	@ 1,330 ×	2 回	2,660
				多賀城～鳴瀬奥松島	@ 760 ×	8 回	6,080
				利府中～松島北	@ 400 ×	1 回	400
						自動車道使用料計	15,240
19 負担金	12	5	5	参加費(大気環境学会年会)	@ 5,000 ×	1 人	5,000
計	373	338	325				323,290



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PM <sub>2.5</sub> 中のレボグルコサンと有機酸の解析(2019)			部名	大気環境部		
節区分	計画額	最終予算額	決算額	算出基礎			
9 旅費	58	58	58	大気環境学会年会(東京都府中市, 3泊4日)	57,180 ×	1 人	57,180
11-1 需用費	654	654	654	1. 試薬・資材			
				石英繊維フィルター	@ 16,000 ×	0 箱	0
				メンブレンフィルター	@ 7,900 ×	3 箱	23,700
				ガラス製シリンジ(5mL)	@ 360 ×	30 本	10,800
				マイクロシリンジ(10μL)	@ 4,350 ×	5 本	21,750
				マイクロシリンジ(100μL)	@ 5,800 ×	3 本	17,400
				マイクロシリンジ(500μL)	@ 5,450 ×	2 本	10,900
				10mL茶メスフラスコ SIBATA製	@ 3,080 ×	0 本	0
				20mL茶メスフラスコ SIBATA製	@ 3,080 ×	0 本	0
				円錐型ねじ口遠沈管	@ 400 ×	80 本	32,000
				キャピラリーカラム DB5-ms	@ 52,500 ×	1 本	52,500
				アセトニトリル	@ 2,610 ×	2 本	5,220
				ジクロロメタン	@ 2,400 ×	2 本	4,800
				メタノール	@ 1,260 ×	2 本	2,520
				ヘキサン	@ 1,260 ×	5 本	6,300
				アセトン	@ 2,900 ×	0 本	0
				ピリジン	@ 3,100 ×	0 本	0
				誘導体化試薬(BSTFA+1%-TMCS)	@ 11,050 ×	3 箱	33,150
				レボグルコサン	@ 15,800 ×	0 本	0
				レボグルコサンd <sub>7</sub> 内標準試薬	@ 116,000 ×	0 本	0
				コハク酸	@ 23,500 ×	1 本	23,500
				(s)-(+)-ケトピン酸内標準試薬	@ 9,150 ×	1 本	9,150
				ピノン酸	@ 12,450 ×	1 本	12,450
				マイティバイアルNo. 1茶	@ 6,900 ×	2 本	13,800
				スクリュューバイアル	@ 9,500 ×	0 箱	0
				シリカろ紙	@ 42,750 ×	1 箱	42,750
				Succinic Anhydride-d4	@ 22,000 ×	1 本	22,000
				マイティバイアルNo. 3茶	@ 8,050 ×	2 箱	16,100
				広口スクリュューキャップバイアル(バイアルのみ)	@ 2,200 ×	3 箱	6,600
				広口スクリュューキャップバイアル(青キャップ)	@ 2,800 ×	3 箱	8,400
						小計	375,790
						税込(8%)	405,853
				交換用キャップ(円錐型ねじ口遠沈管用)	@ 91 ×	40	3,640
				ミニ秤量皿 MW-15	@ 1,440 ×	10	14,400
				10ml ビーカー	@ 295 ×	10	2,950
				1.6-アンピロ-β-D-ガラクトピラノース	@ 12,000 ×	1	12,000
				1.6-anhydor-β-D-mannopyranose	@ 15,500 ×	1	15,500
				ミニバイアル 3.0mL 36本入	@ 59,650 ×	1	59,650
				ミニバイアル 3.0mL用穴あきキャップ 12個入	@ 2,200 ×	1	2,200
				ミニバイアル 3.0mL用セブタム 12枚入	@ 3,730 ×	3	11,190
				ベヘン酸標準品	@ 9,000 ×	1	9,000
				DL-リンゴ酸標準品	@ 11,250 ×	1	11,250
				マレイン酸標準物質	@ 12,000 ×	1	12,000
				スベリン酸	@ 5,850 ×	1	5,850
				アゼライン酸	@ 7,000 ×	1	7,000
				N, O-ビス(トリメチルシリル)トリフルオロアセトアミド(オープンカウンター)	@ 10,500 ×	2	21,000
				マイティバイアルNo. 1茶(通常発注)	@ 8,200 ×	1	8,200
				N, O-ビス(トリメチルシリル)トリフルオロアセトアミド(通常発注)	@ 11,700 ×	1	11,700
						小計	207,530
						税込(10%)	228,283
				2. 燃料費			
				ガソリン代(5月分)	@ 132 ×	27 L	3,564
				ガソリン代(6~9月分)	@ 137 ×	71 L	9,727
						小計	13,291
						税込	14,354
						試薬・資材・燃料費計	648,490
				3. 資料代			
				要旨集	@ 5,000 ×	1 冊	5,000
						需用費計	653,490
14 使用料	24	24	23	自動車道使用料			
				利府中~鳴瀬奥松島	@ 610 ×	6 回	3,660
				多賀城~鳴瀬奥松島	@ 760 ×	10 回	7,600
				多賀城~鳴瀬奥松島	@ 770 ×	13 回	10,010
				鳴瀬奥松島~利府塩釜	@ 650 ×	1 回	650
				多賀城~鳴瀬奥松島~多賀城(ポイント還元)	@ 730 ×	1 回	790
						小計	22,710
19 負担金	12	12	12	参加費(大気環境学会年会)	@ 12,000 ×	1 人	12,000
計	748	748	747				745,380

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PM <sub>2.5</sub> 中のレボグルコサンと有機酸の解析(2020)			部名	大気環境部				
節区分	計画額	最終予算額	決算額	算出基礎					
9 旅費	75	76	0	大気環境学会年会(紙上発表)	@	0	×	1人	0
11-1 需用費	417	416	411	1. 試薬・資材					
				メンブレンフィルター	@	8,000	×	2箱	16,000
				アセトニトリル	@	2,900	×	2本	5,800
				ジクロロメタン	@	2,100	×	2本	4,200
				メタノール	@	1,500	×	2本	3,000
				ヘキサン	@	1,500	×	3本	4,500
				アセトン	@	1,700	×	3本	5,100
				誘導体化試薬(BSTFA+1%-TMCS)	@	12,000	×	1箱	12,000
				レボグルコサンd <sub>7</sub> 内標準試薬	@	131,000	×	1本	131,000
				スクリュウキャップバイアル	@	2,400	×	4箱	9,600
				1,6-アンヒドロ-β-D-グルコース	@	4,800	×	1箱	4,800
				パストツールピペット	@	6,200	×	1本	6,200
				マニュアルシリンジ(固定型)100μl	@	6,050	×	1本	6,050
				マニュアルシリンジ(固定型)10μl	@	4,600	×	1本	4,600
				マニュアルシリンジ(固定型)500μl	@	5,700	×	1本	5,700
				ディスポーザブルメンブレンフィルターユニット	@	8,200	×	3箱	24,600
				スクリュウキャップバイアル用キャップ	@	3,200	×	4袋	12,800
				ねじ口遠沈管10mL交換用キャップ	@	120	×	40個	4,800
				キャピラリーカラムDB-5MS	@	49,700	×	1個	49,700
				ねじ口遠沈管キャップ付10mL 円錐	@	490	×	90本	44,100
				250μL不活性化ガラスインサート	@	11,200	×	1箱	11,200
				アジレント広口スクリュウキャップバイアル	@	2,100	×	1箱	2,100
				アジレント広口スクリュウキャップバイアル用キャップ	@	2,730	×	1袋	2,730
								計	370,580
								税込10%	407,638
				2. 燃料費					
				ガソリン代(小型車 15km/L)	@	123	×	21.0 L	2,583
								税込10%	2,841
								合計	410,479
14 使用料	26	26	17	自動車道使用料					
				多賀城～鳴瀬奥松島	@	770	×	14回	10,780
				鳴瀬奥松島～名取	@	1,340	×	3回	4,020
				鳴瀬奥松島～仙台港北	@	870	×	1回	870
				仙台港北～名取	@	470	×	1回	470
								小計	16,140
19 負担金	12	12	0	参加費(大気環境学会年会)	@	0	×	1人	0
				* 紙上開催。要旨集は演題発表者と共有。					
計	530	530	428						426,619

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PM <sub>2.5</sub> 中のレボグルコサンと有機酸の解析(2021)			部名	大気環境部		
節区分	計画額	最終予算額	決算額	算出基礎			
8 旅費	107	60	0	大気環境学会年会 仮(山口県宇部市内, 4泊5日@	106,340 ×	0 人	0
10-1 需用費	474	472	472	(オンライン開催)			
				1. 試薬・資材			
				メンブレンフィルター	@ 8,200 ×	3 箱	24,600
				メンブレンフィルター	@ 8,800 ×	3 箱	26,400
				メタノール	@ 1,700 ×	3 本	5,100
				ヘキサン	@ 1,500 ×	5 本	7,500
				アセトン	@ 1,700 ×	5 本	8,500
				誘導体化試薬(BSTFA+1%-TMCS)	@ 12,000 ×	4 箱	48,000
				マニュアルシリンジ10μL	@ 4,800 ×	2 本	9,600
				マニュアルシリンジ25μL	@ 5,700 ×	2 本	11,400
				マニュアルシリンジ25μL	@ 6,600 ×	2 本	13,200
				マニュアルシリンジ50μL	@ 6,400 ×	1 本	6,400
				マニュアルシリンジ100μL	@ 7,300 ×	1 本	7,300
				TC燃焼管(ケース入り)	@ 18,000 ×	1 本	18,000
				高感度TC触媒セット	@ 55,400 ×	1 式	55,400
				プラスチックピンセット	@ 800 ×	3 個	2,400
				ESDハンドラップ	@ 1,450 ×	1 個	1,450
				共栓遠心遠沈管	@ 1,500 ×	10 本	15,000
				クリーンノールニトリル手袋 ブルーM	@ 3,000 ×	1 箱	3,000
				クリーンノールニトリル手袋 ブルーS	@ 3,000 ×	1 箱	3,000
				クリーンノールニトリル手袋 ブルーSS	@ 3,000 ×	1 箱	3,000
				クリーンノールニトリル手袋 ブルーM	@ 1,850 ×	7 箱	12,950
				クリーンノールニトリル手袋 ブルーS	@ 1,850 ×	7 箱	12,950
				ビニローブ(腕カバー付厚手)	@ 900 ×	3 双	2,700
				高気密保存瓶 茶色	@ 7,600 ×	4 本	30,400
				250μL不活性化ガラスインサート	@ 13,600 ×	4 箱	54,400
				フェノールキャップ15 シリコン/PTFEパッキン	@ 120 ×	100 個	12,000
				安全ピペッターブルー	@ 1,300 ×	1 個	1,300
				安全ピペッター緑	@ 2,100 ×	3 個	6,300
				マイクロ秤量皿ロート	@ 23,000 ×	1 箱	23,000
						計	425,250
						税込10%	467,775
				2. 燃料費			
				ガソリン代 (小型車 15km/L)	@ 144 ×	25 L	3,600
						税込10%	3,960
						計	471,735
13 使用料	24	24	12	自動車道使用料			
				多賀城～鳴瀬奥松島	@ 770 ×	12 回	9,240
						(ポイント還元)	-380
				鳴瀬奥松島～名取	@ 1,340 ×	2 回	2,680
						計	11,540
18 負担金	12	14	10	参加費(大気環境学会年会)	@ 10,000 ×	1 人	10,000
計	617	570	494				493,275

## 課題評価調書(事後評価)

令和4年10月3日

評価の種類	事後評価		
整理番号	経-終5	研究課題名	公共用水域におけるネオニコチノイド系殺虫剤の調査
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	水環境部	研究代表者名	岩田 睦
計画立案 課室・公所名	保健環境センター		
共同研究機関 ・協力機関		研究期間	令和2年度～令和3年度
研究経費	総額	588千円	

## 1 研究目的・背景

1990年代から使用され始めたネオニコチノイド系殺虫剤は、様々な農作物に広く使用され、生産性向上に役立ってきた。

しかしながら、近年、本殺虫剤による直接的及び間接的な生態系への影響が懸念されるようになってきた。特にミツバチ減少の原因物質としても疑われている。水溶性であることから水環境へ移行することが考えられ、国内においても河川水等からの検出事例が報告されるなど、環境汚染物質としての関心が高まっている。

全国的に地方環境研究所や大学でのネオニコチノイド系殺虫剤の調査事例が増える中、本県における本殺虫剤の今後の水域環境中での評価指標の基礎作りのため、加えて、県内での適正な使用管理等に向けた水域環境動態を把握するための調査を行うものである。また、平成30年に公布された農薬取締法の一部を改正する法律(令和2年4月1日施行)に基づく再評価制度では、登録済のネオニコチノイド系殺虫剤等については、ユスリカ幼虫を用いた毒性試験の提出を要求することとされた。今回、河川水を試験液としてユスリカ幼虫による生態影響試験を行い、この試験結果と河川水中ネオニコチノイド系殺虫剤の濃度を比較した。

## 2 研究成果

## (1) 成果

## 1.1 分析方法(水質)

水質の分析フローチャートを図1に示す。

## 1.2 分析方法(底質・抽水植物)

底質及び植物の前処理手順を図2及び図3に示す。

## 1.3 調査結果

### (1. 3. 1) 水質

令和2年度及び3年度の水質調査結果を表1に示す。

ジノテフラン、クロチアニジン、チアメトキサムはいずれの地点でも検出され、濃度も他の化合物と比較し高い傾向であったものの、いずれの化合物も基準値を下回っていた。

これらの化合物は、県内のネオニコチノイド系殺虫剤の出荷量の上位3位と重複していた。<sup>3)</sup>

他県で行われた調査結果の各化合物の最大値(水質)と、宮城県の結果との比較を表2に示す。

8), 10), 11), 12), 13)

ジノテフラン、チアメトキサム、クロチアニジンの令和3年度河川水中濃度の経月変化を図4に示す。ジノテフラン及びクロチアニジンは、調査地点5地点中4地点において、8月に通年の最大値を検出した。また、西前橋のチアメトキサムは、6月に最大値となった。また、伊豆沼出口のクロチアニジンは使用時期のピーク時から約1か月遅れて検出された。

令和3年8月16日に迫川、伊豆沼流入河川に調査地点を追加して水質を調査した。(図5)

迫川の若石大橋から約30km下流の西前橋ではチアメトキサムは約63倍に濃度が上昇していた。迫川の西前橋は、江合川の及川橋と比較し、チアメトキサムは約19倍の濃度、クロチアニジンは約3.6倍の濃度であった。一方、伊豆沼流入河川と流出河川を比較したところ、流入は流出の、ジノテフランで約11倍、クロチアニジンで約14倍の濃度であった。

伊豆沼出口から上流の負荷量を、図6に示す。

荒川のスワン橋は、照越川橋と比較し、ジノテフランの負荷量が高かった。採水時に、クロチアニジンの空中散布が荒川1か所、照越川1か所で行われており、ドリフトが、伊豆沼入口におけるクロチアニジン負荷量増大に影響したことが示唆された。

### (1. 3. 2) 抽水植物及び底質調査結果

及川橋(江合川水系)で、抽水植物は、5~7月に水際に生息していたヨシ(イネ科)を採取した。また、4~7月に底質を採取した。分析結果を、表3~4に示す。植物の添加回収率は、フィプロニルのみ70%未満(5~47%以下)で、その他は、88~108%であった。底質の添加回収率は、87~119%であった。

### (1. 3. 3) 生態影響試験結果

魚毒試験で使用しているアカヒレ(体調1.8cm, 体重約0.05g)を用い、水域の生活環境動植物の被害防止に係る農薬登録基準が低いフィプロニルの試験水(基準値0.024 $\mu$ g/L, 基準値の10倍濃度, ブルーギル急性毒性濃度LC<sub>50</sub>(半数致死濃度)85 $\mu$ g/Lの3段階)で48時間飼育したところ、全数生存した。(表5) また、ユスリカ幼虫を用いた生態影響評価を試みた。(詳細については、添付資料「ユスリカ幼虫を用いた生態影響評価の試み」のとおり) また、ユスリカ幼虫を用いた生態影響試験を試みた結果、クロチアニジンが最も高濃度(阻害値換算2.9%)で検出された8月の若石大橋(迫川水系)で48時間LC50が、46%(試験液比率)であった。河川水にはネオニコチノイド系以外の殺虫剤も混入していることも想定され、その濃度は測定しなかったことから、ネオニコチノイド系殺虫剤がユスリカ幼虫を死亡させた原因であると言い難い結果となった。

#### (1.3.4) まとめ

ネオニコチノイド系殺虫剤のうち6化合物及びフィプロニルが県内の環境水中から検出された。検出率や検出値が高い化合物は、県内のネオニコチノイド系殺虫剤の出荷量の上位と重複し、主に夏季に高い検出値を示す傾向が見られた。いずれも使用時期が過ぎると減少していった。この傾向は他県の報告と同様であった。<sup>7),8)</sup>

底質や抽水植物中のネオニコチノイド系殺虫剤を分析し、大まかな傾向を捉えることができた。

また、生態影響試験については、アカヒレを用いてフィプロニルの試験水で実施したが、急性毒性の相関性等は確認できなかった。一方、ユスリカ幼虫については、1地点1時期の河川水暴露で、ユスリカ幼虫が阻害を受けた様子が観察された。

#### (2) 成果の活用と波及効果

本県の公共用水域のネオニコチノイド系殺虫剤の濃度の現状を把握することは、今現在での生態系への影響を把握するのに重要であるとともに、今後の生態系への影響、環境行政、農業行政を行う上でも有用なデータとなる。

#### (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), 加圧定量型固相抽出装置

### 3 県の施策体系と研究課題との関連

#### (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

- ・水環境の保全

安全な水環境の保全, 清らかな水環境の保全, 健全な水環境の保全

#### (2) 施策と研究課題との関連

公共用水域の汚染状況の把握は、「水環境の保全」に連動するものであり、安全安心な水環境の保全に寄与するものである。

#### (3) 担当課名

環境対策課

### 4 研究計画

#### (1) 当初の研究計画

- ・令和2年度

①ネオニコチノイド系殺虫剤に関する分析法（水質・底質）の検討

②県内での使用状況の把握

③環境基準点を中心とした県内主要河川・湖沼の調査

④水域における動植物への影響評価（農薬登録基準との比較検証）

・令和3年度

- ①水域環境中のネオニコチノイド系殺虫剤の濃度変化等の挙動検証
- ②水域における底質及び植物への影響等評価（農薬登録保留基準との比較）

(2) 研究計画変更の内容と経緯

・令和2年度

- ①ネオニコチノイド系殺虫剤に関する分析法（水質・底質）の検討
- ②県内での使用状況の把握
- ③環境基準点を中心とした県内6河川・1湖沼の代表各1地点を対象とした計7地点を四半期毎に1回の調査
- ④水域における動植物への影響評価（農薬登録基準との比較検証）

・令和3年度

- ①初年度の結果を基に調査地点を絞り込み,その上流、下流を対象とした詳細調査を実施すると共に年6回の調査
- ②水環境中のネオニコチノイド系殺虫剤の濃度変化等の挙動検証
- ③水域における動植物への影響等評価（農薬登録基準との比較検証）

経緯

令和2年度：調査地点数や調査回数を設定した。  
 令和3年度：上流,下流を対象にすることなどを加えた。

5 従事時間割合

		業務全体に占める当該研究の従事割合（％） （従事日数（日／年））	
		研究計画時	期間中実績（年平均）
研究代表者	岩田 睦（ ）	10％（ 20 日/年）	30％（ 60 日/年）
共同研究者	下道 翔平（ ）	5％（ 10 日/年）	10％（ 20 日/年）
	（ 黒江 聡 ）	％（ 日/年）	0％（ 0 日/年）
	後藤 つね子（ ）	％（ 日/年）	10％（ 20 日/年）
	高橋 恵美（ ）	％（ 日/年）	2％（ 4 日/年）
	（赤崎 千香子）	15％（ 30 日/年）	0％（ 0 日/年）
当該研究に要した延べ従事日数 （人・日／年）		60人・日／年	104人・日／年

## 6 関係文献・資料等

### (1) 関係文献・資料名

(文献名等を保健環境センター年報の記載方法に準じて記載する。)

(例：著者，学会誌名，巻，号，ページ，発行年)

- 1) 我が国における農薬がトンボ類及び野生ハナバチ類に与える影響について（平成 29 年 11 月農薬の昆虫類への影響に関する検討会）
- 2) 伊東優介，藤田一樹，鈴木義浩，江原均，井上雄一：川崎市内水環境中におけるネオニコチノイド系農薬等の実態調査結果（2016～2018 年度）（川崎市環境総合研究所年報，p63-69，2019）
- 3) 一般社団法人日本植物防疫協会：農薬要覧 2020 年版
- 4) 宮城県農政部みやぎ米推進課：令和 3 年度産水稻 の出穂状況について（8 月 10 日現在）（令和 3 年 8 月 11 日報道発表資料）
- 6) 中山駿一，三島聡子：底質中のネオニコチノイドの分析法（神奈川県環境科学センター研究報告 No. 41（2018）p37-41）
- 7) 高村範亮，八児裕樹，常松順子：福岡市内河川におけるネオニコチノイド系農薬類の実態調査（福岡市保健年報，44，2019）
- 8) 中山駿一，三島聡子：神奈川県におけるネオニコチノイド系農薬等の環境実態（神奈川県環境科学センター研究報告 No. 42（2019）p16-21）
- 9) 農薬評価書（食品安全委員会農薬専門調査会）
- 10) 吉田真，斎藤康樹：八郎湖流入河川におけるネオニコチノイド系農薬の流出実態（秋田県分析化学センター）
- 11) 中村玄，伊原裕，山本直美，神藤正則：河川水中のネオニコチノイド系農薬およびフィプロニル，その分解物の調査（堺市衛生研究所年報）
- 12) 大塚宜寿，茂木守，野尻喜好，簗毛康太郎，堀井勇一：県内の河川におけるネオニコチノイド系殺虫剤の汚染実態の把握（埼玉県環境科学国際センター報 第 14 号）
- 13) 藤田直希，豊田みちる，紙本佳奈，安永恵：中讃地域河川のネオニコチノイド系農薬の実態調査（香川県環境保健研究センター所報 第 20 号(2021)）
- 14) 水産動植物の被害防止に係る農薬登録保留基準として環境大臣が定める基準の設定に関する資料（農林水産省）

### (2) 研究成果の外部への発表の状況

令和 4 年 3 月 4 日宮城県保健環境センター第 37 回研究発表会

## 7 添付資料

- ・公共用水域におけるネオニコチノイド系殺虫剤の調査地点（令和 2 年）
- ・ユスリカ幼虫を用いた生態影響評価の試み

1.1 分析方法（水質）

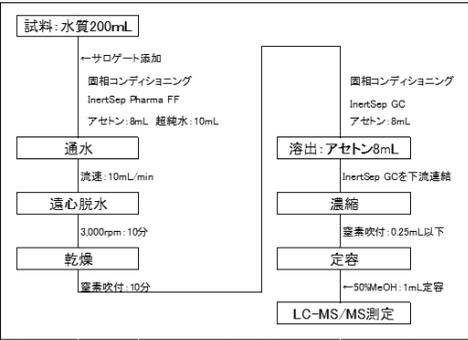


図1 分析フローチャート

1.2 分析方法（底質）

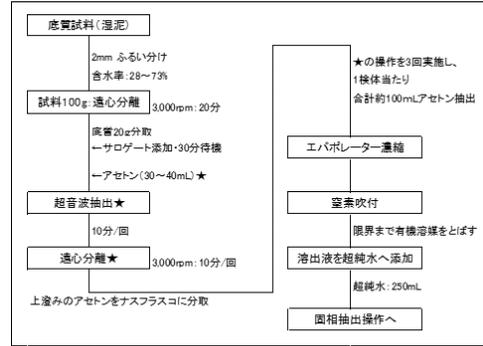


図2 前処理フローチャート(底質)

1.2 分析方法（抽水植物）

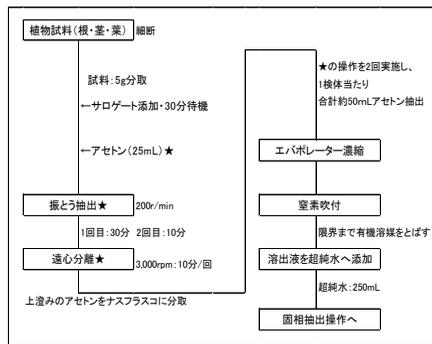


図3 前処理フローチャート(植物)

表1 令和2年度及び3年度の水质調査結果

化合物	検出率 (%)	最大値 (ng/L)	最大値 検出年月	基準値 (ng/L)	最大値 /基準値
ジノテフラン	100	989	R3.8	12,000	8 %
ニテンピラム	0-4	0.4	R3.9	11,000	0.003 %
クロチアニジン	85-86	908	R3.8	2,800	32 %
チアメトキサム	61-93	494	R3.6	3,500	14 %
アセタミプリド	0-70	5	R3.7	2,500	0.2 %
イミダクロプリド	61-78	21	R2.6	1,900	1 %
チアクロプリド	0	—	—	3,600	—
フィプロニル	0-18	11	R2.6	24	46 %

基準値：水域の生活環境動植物の被害防止に係る農薬登録基準

表2 他県で行われた調査結果との比較 (単位: ng/L)

成分	宮城県 2021	秋田県 2020	大阪府堺市 2019	神奈川県 2018	埼玉県 2013	香川県 2020
ジノテフラン	989	2,500	2,120	43	250	2,100
ニテンピラム	0	N.D.	<0.01	21	6	N.D.
クロチアニジン	908	120	112	53	110	14
チアメトキサム	494	50	23	11	32	24
アセタミプリド	5	N.D.	21	6	19	120
イミダクロプリド	21	480	42	95	57	37
チアクロプリド	N.D.	30	0	11	1	7
フィプロニル	11	25	25	37	0	6
合計	2,428	3,205	2,343	277	475	2,309

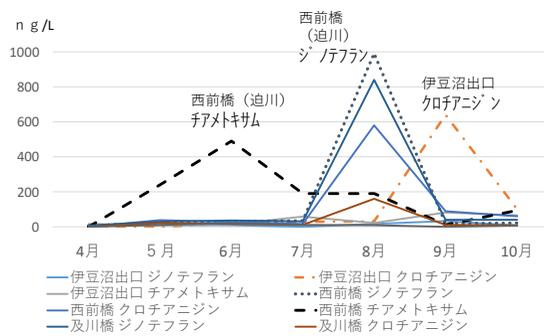


図4 河川水中濃度 (経月変化: 令和3年度)

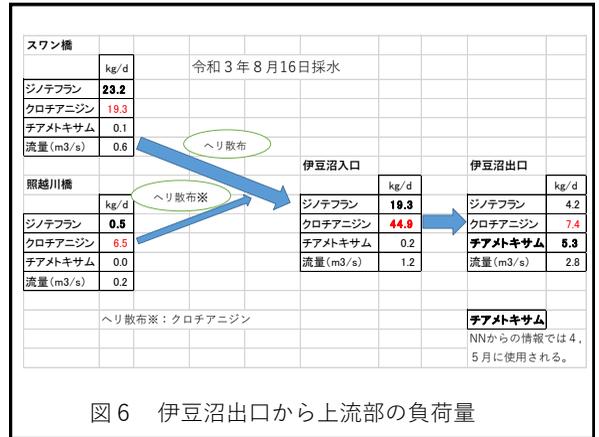
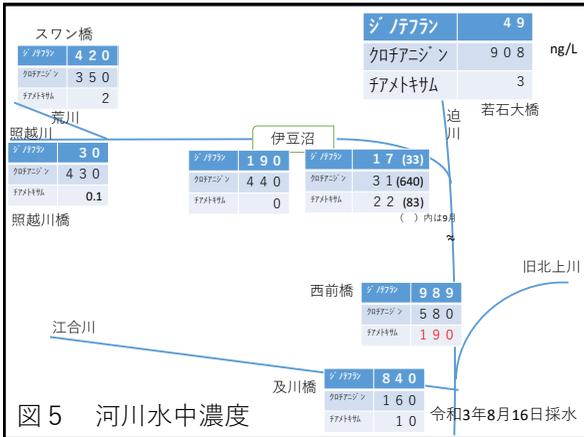


表3・表4 抽水植物及び底質調査結果

化合物	5月	6月	7月
ジノテフラン	N.D.	N.D.	N.D.
ニテンピラム	4,300	N.D.	N.D.
クロチアニジン	N.D.	50	120
チアメトキサム	9,300	N.D.	N.D.
イミダクロプリド	N.D.	270	310

化合物	4月	5月	6月	7月
ジノテフラン	9	28	30	13
ニテンピラム	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.
クロチアニジン	27	78	66	11
チアメトキサム	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.
イミダクロプリド	N.D.	23	23	3

表5 アカヒレによる魚毒試験

魚毒試験				
被験検体名	ファイプロニル標準液			
供試生物	アカヒレ			
暴露方法	止水式			
暴露期間	48 h			
濃度 (μg/L)	0	0.024	0.24	85
死亡数/供試生物数 (尾)	0/7	0/7	0/7	0/7
LC50	-			

# ユスリカ幼虫を用いた生態影響評価の試み

## 1 はじめに

これまで、農薬の生態影響試験については、魚類甲殻類等のオオミジンコ、藻類等のムレミカツキモが主要な試験となっていた。ところが、ネオニコチノイド系等の殺虫剤では、甲殻類等の種によって感受性の差が大きいことが判明し、従来のミジンコを用いる試験ではリスクを過小評価してしまう可能性が示唆された。このため、平成30年に公布された農薬取締法の一部を改正する法律（令和2年4月1日施行）に基づく再評価制度では、新規に登録をうけようとする殺虫剤、及び登録済のネオニコチノイド系殺虫剤については、ユスリカを用いた毒性試験の提出を要求することとされた。

今回、河川水や河川底泥を試験液としてユスリカ幼虫による生体影響試験を行った。また、この試験結果と河川水中等のネオニコチノイド系殺虫剤の濃度を比較した。

## 2 方法

ユスリカ幼虫急性毒性試験は、OECD(経済開発協力機構)が定めたテストガイドラインを参考に一部を改変して実施した。供試生物には、セスジユスリカの1齢幼虫が推奨されるが、他のユスリカを用いても良いとされていることから、市販のアカムシユスリカを用いた。照明は12~16時間明期とされているがネオニコチノイド系殺虫剤には水中光分解性半減期が1時間未満のものもあることから暗所で暴露した。暴露期間は48~72時間、水温は23~25℃とした。試験区毎に15~20個体を3~4連に分けて実施し、暴露開始後48、72、96時間目における死亡の有無について観察し記録した。なお、河川水等を含まない対照区を設けた。

## 3 結果と考察

### 3.1 48時間後の生存率

- ・ 及川橋（江合川水系）の5月と6月の生存率は100%であった。なお、ネオニコチノイド系農薬の濃度は、ユスリカ幼虫阻害値の約0.3%相当であった。
- ・ 7月の伊豆沼出口、西前橋、及川橋での生存率は約70%前後であった。（阻害値0.2~0.8%相当）
- ・ 8月には7地点分の河川水中、生存率が低かったのは若石大橋（迫川水系）で67%であり、阻害値は4.3%相当、他の6地点では生存率は約90%前後（阻害値1.6~5.1%）であった。
- ・ 9月の5地点では生存率は全て90%前後（阻害値0.1~2.4%相当）であった。
- ・ 10月の5地点では生存率は65~80%（阻害値0.0~0.6%相当）であった。

### 3.2 試験液比率別の死亡数

生存率が一番低かった8月採水の若石大橋を段階的に希釈してユスリカ幼虫を暴露した。一部の比率では逆転したものの試験液比率が高い程、死亡数が多い傾向が認められた。（下表）

表 試験液比率別の死亡数

被験検体名	河川水、若石大橋（迫川）R3/8/16採水					
供試生物	アカムシユスリカ（Tokunagayusurika akamushi）					
暴露方法	止水式					
試験液比率(%)	対照	10	18	32	56	100
死亡数/供試生物数（頭）	3/20	8/20	11/20	8/20	11/20	13/20
	5/20	9/20	13/20	11/20	11/20	16/20
	7/20	12/20	14/20	12/20	15/20	18/20
	暴露期間：上段48時間、中段72時間、下段96時間後					
LC50	48時間後:46% 72時間後:12% 96時間後:10未満					

## 3.2 考察

5月と6月に採水した及川橋で48時間後の生存率がいずれも100%（20個体生存/20個体暴露）でのネオニコチノイド系農薬の濃度も極低濃度であった。

クロチアニジンが最も高濃度（阻害値2.9%）で検出された8月の若石大橋で48時間後の生存率が67%（10個体生存/15個体暴露）で8月の若石大橋を希釈して暴露したところ48時間後の100%の生存率は、上表のとおり35%であり、再現性は低かった。

8月の西前橋は、阻害値が5.1%（ジノテフランで2.6%、クロチアニジン1.9%）と全ての検体中、最も阻害値が高かったが、48時間後の生存率は100%であった。

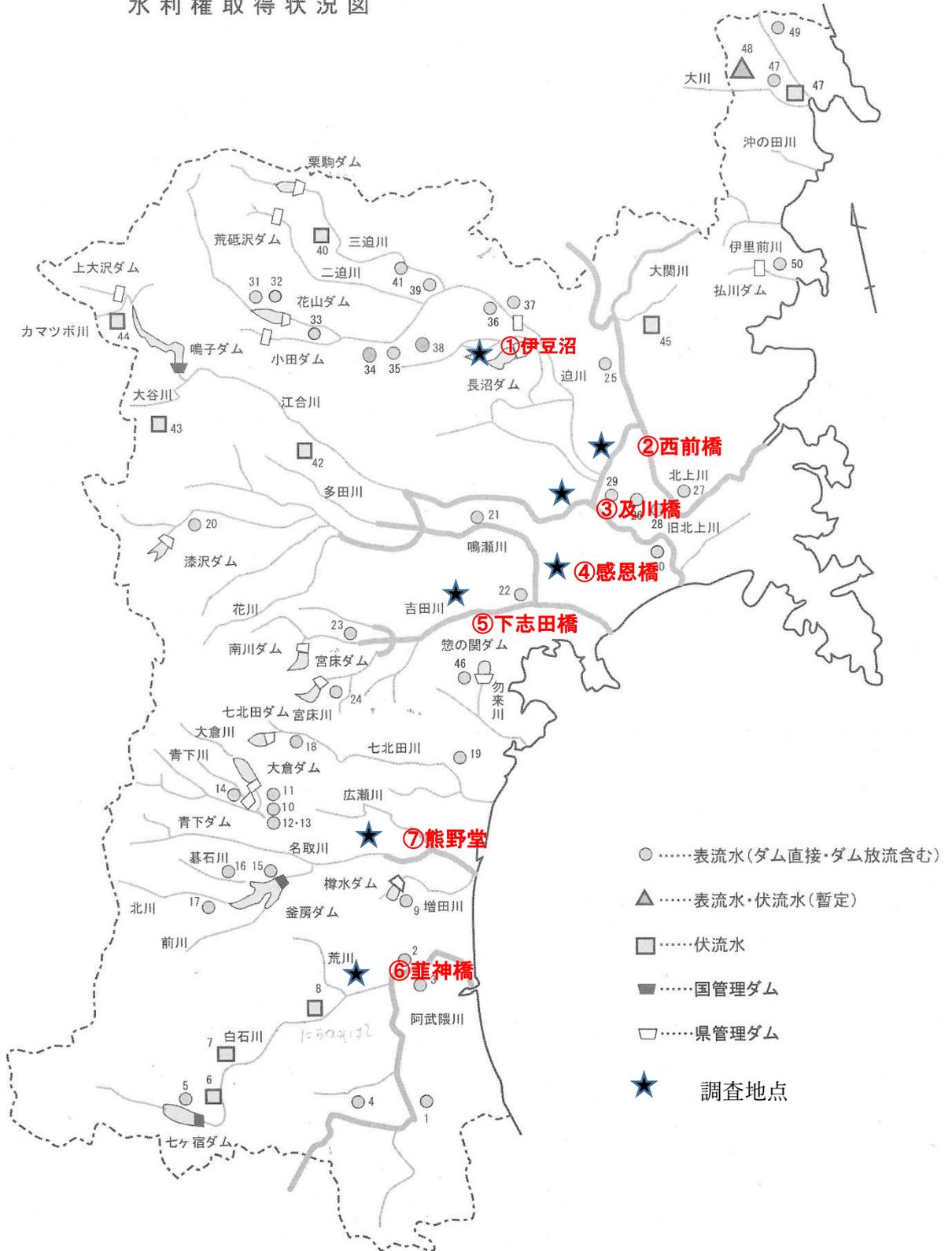
## 4 まとめ

ネオニコチノイド系農薬のユスリカ幼虫阻害値と実河川水中の同系農薬の濃度を比較したところ、同系農薬濃度が、同阻害値を大幅に下回ってはいたが、1地点1時期の河川水暴露で、ユスリカ幼虫が阻害を受けた様子が観察された。しかし、その再現性は低かった。河川水にはネオニコチノイド系以外の殺虫剤も混入していることが想定されること、また、対照区においてもユスリカ幼虫が時間の経過により死亡したことから、ネオニコチノイド系農薬がユスリカ幼虫を死亡させた原因であるとまでは言いがたい結果となった。

## 5 反省点及び今後の展開

齢が一定したユスリカ幼虫が用意出来なかったこと、採水から暴露までの時間が開いてしまった検体もあったことも原因で、再現性などが不安定であった。今後、河川水中のネオニコチノイド系農薬が最高値となる8月上旬から中旬頃に採水した河川水を用いて、ユスリカ幼虫暴露試験を実施するなど、操作が簡易で、低コストなバイオアッセイ手法として普及できるように検討してまいりたい。

# 水利権取得状況図



公共用水域におけるネオニコチノイド系殺虫剤の調査地点(令和2年)

## 《 公共用水域におけるネオニコチノイド系殺虫剤の調査》

### 背景

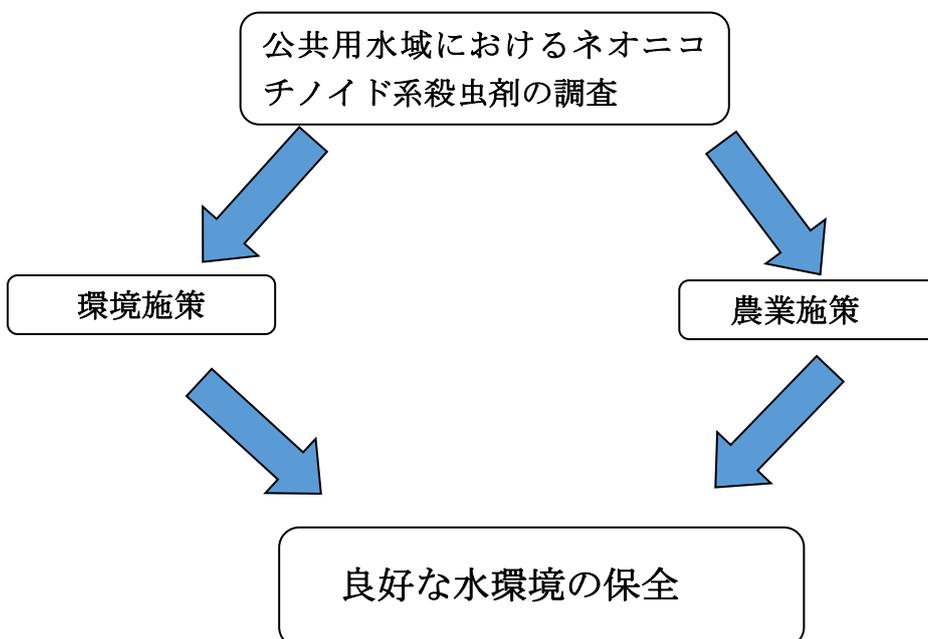
- ネオニコチノイド系殺虫剤は昆虫の神経伝達を阻害することで殺虫活性を発現し、適用できる害虫の種類が広いと。
- 脊椎動物への急性毒性が低く、環境中で分解されにくく残効性があり、水溶性で植物体への浸透移行性が高いことなどから、様々な植物に広く使用され、農作物の生産性向上等に役立ってきた。しかし、近年、昆虫などの無脊椎動物だけでなく脊椎動物に対する免疫機能や生殖機能の低下などの慢性毒性が報告されるようになり、直接的及び間接的な生態系への影響が懸念されるようになってきた。
- ネオニコチノイド系殺虫剤は、各国において一般家庭のガーデニング用から農業用、シロアリ駆除、ペットのシラミ・ノミ取り、ゴキブリ駆除、スプレー殺虫剤、新築住宅の化学建材など広範囲に使用されている。水溶性であることから水環境へ移行することが考えられ、事実、河川水等からの検出事例が報告されるなど、環境汚染物質としての関心が高まってきている。
- しかし、農業県である本県での河川中の濃度については未だ測定されたことがない。

### 目的

- ネオニコチノイド系殺虫剤の分析法を検討する。
- 河川を中心とした公共用水域でネオニコチノイド系殺虫剤の濃度を調査する。
- 検出された地点について詳細調査を行い、最も高い時期の濃度把握を行い他県の状況等と比較を行う。

### 期待される効果

- 環境中の現在の濃度を把握することは、生態系への影響を考える上でも貴重な資料となり得る。
- また得られたデータは環境施策にとどまらず、本県の農業行政においても有用なデータとなる。



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	公共用水域におけるネオニコチノイド系殺虫剤の調査(2020)			部名	水環境部		
節区分	計画額	最終予算額	決算額	算出	基礎		
8 報償費	0	0	0	@	×	時間	0
9 旅費	0	0	0	@	×	人	0
10-1 需用費	325	325	324				
				PL農業混合標準溶液(8種類混合) ネオニコチノイド系	@ 22,000	×	1 箱 22,000
				PL農業サロゲート混合標準溶液(7種類混合) ネオニコ	@ 74,000	×	1 箱 74,000
				固相カートリッジ InertSep Pharma FF	@ 28,000	×	1 箱 28,000
				固相カートリッジ InertSep GC	@ 20,000	×	1 箱 20,000
				ACQUITY UPLC カラム BEH Phenyl	@ 114,000	×	1 本 114,000
				メタノール5,000	@ 17,200	×	1 本 17,200
				イネ科ハンドブック	@ 1,991	×	1 冊 1,991
				アセトン5000	@ 1,800	×	4 本 7,200
						計	284,391
						税込10%	312,830
				2 ガソリン代	@ 135.3	×	77 L 10,418
13 使用料	19	19	12				
				泉IC~築館IC	@ 1,390	×	5 回 6,950
				松島北IC~岩沼IC	@ 1,440	×	1 回 1,440
				仙台宮城IC~村田IC	@ 720	×	3 回 2,160
				仙台南IC~村田IC	@ 570	×	1 回 570
						計	11,120
計	344	344	336				

所要額積算内訳

保健環境センター (単位:千円)

調査研究 課題名	公共用水域におけるネオニコチノイド系殺虫剤の調査(2021)			部名	水環境部		
	計画額	最終予算額	決算額		算出基礎		
8 報償費	0	0	0	@	×	時間	0
9 旅費	79	79	0	@	×	人	0
10-1 需用費	241	241	241				
				PL農薬混合標準溶液(8種類混合) ネオニコチノイド系	@	22,500 × 1 箱	22,500
				PL農薬サロゲート混合標準溶液(7種類混合) ネオニコチノ	@	76,500 × 1 箱	76,500
				固相カートリッジ InertSep Pharma FF	@	25,400 × 1 箱	25,400
				固相カートリッジ InertSep GC	@	18,200 × 1 箱	18,200
				ハミルトンμシリンジ 10μL用	@	7,500 × 2 本	15,000
				アセトニトリル Plus LC/MS用 1L	@	4800 × 3 本	14,400
				メタノールPlus LC/MS用 1L	@	1,200 × 11 本	13,200
				アセトニトリル Plus LC/MS用 1L	@	4400 × 7 本	30,800
						計	216,000
						税込10%	237,600
				2 ガソリン代	@	138.0 × 20 L	2,763
13 使用料	31	31	11	泉IC～築館IC	@	1,390 × 7 回	9,730
				三本木IC～泉	@	730 × 1 回	730
						計	10,460
18 負担金	10	10	0				
計	361	361	252				