

験例数は、JMPR<sup>1)</sup>では『試験例数（一般的には、最低6～10例）』と試料点数は、使用条件の変わりやすさ、残留データのバラツキ、生産、流通、食料消費量の各面からみた当該農産物の重要性によって異なる。』としている。

EU<sup>2,3)</sup>では、1日当たりの摂食量 (>7.5g/60kg 体重, >栽培面積 1万 ha, または >年産 20万トンの主要作物(数十品目)について南北各4例を2作シーズン(ただし, <LOQの場合は1シーズン)をカバーして計16例(4例 x 2地域 x 2シーズン)以上, これに該当しないマイナー作物では4例以上の, どちらも予定されている栽培地域を代表した地域で試験することが要求している。ただし, 残留が検出されないことが2例以上の試験で確認されればそれ以上の試験は不要としている。なお, 栽培面積 < 600ha, 1日当たりの摂食量 < 1.5g/60kg 体重の極めてマイナーな作物も4例以上の試験が必要とされているが, 同時に若干の簡略化を図るべきとしている。EUの残留試験では, 予定されたPHIにおける残留濃度を試験するほかに, 要求されている残留試験例数の半数例を, 残留レベルの経時変化(最終施用日と収穫日を含む通常, 5時点, または短縮残留物減少試験では多くの場合3時点)を調べる残留物減少試験とすることとされている。

なお, 上記EUのガイドラインの規定とは異なるが, 英国農薬安全局(PSD)が欧州委員会に依頼されて作成した, インポートトレランスを含む残留基準を設定するために必要な最小限のデータ要求のガイドラインを作成するためのガイダンス文書<sup>4)</sup>で

は次の提案をしている。インポートトレランスを含め, 残留基準の設定に最低限必要な圃場試験例数は食事におよび通商上の重要性ならびにGAPのある地域(ゾーン)の数を基準にし, 3から16例とする。残留物減少試験は, 収穫物となる最終農産物が形成されている作シーズンの後期に農薬処理される場合に必要である。代謝試験および物理化学特性から無残留が予想される場合は, 食事に重要な農産物でも3例の作物残留試験でよく, 食事に重要でない農産物では作物残留試験は無くても良い。また, ポストハーベスト処理の場合は, 残留量が予測可能かつ均一な場合を除いて, 貿易上と食事にの重要度に応じて分類し, 最低3例から8例必要である。食事に重要とは, 食事総摂取量の0.5%以上か以下かで分類される。貿易上の重要度の定義付けはできていない。

米国<sup>5)</sup>では栽培面積が全米で200エーカー未満の作物に適用される最低1例(れんこん等)から, 栽培面積が大きく国民全体または幼児による消費量の高い作物では最大20例までの例数の試験を要求しており, 全土を13地域に分けて, 地域間での試験地の配置も定めている。また, 例数を25%削減できる条件, 反対に例数の増加が求められる基準をガイドラインで細かく設定している。20例の試験を要求される主要作物はコーン(飼料用), 大豆, 小麦の3作物。16例必要なのが5作物(りんご, オレンジ, ばれいしょ, 米, トマト, えんぱく), 12例が12作物(大麦, いんげん, スートコーン, 棉, ぶどう, すもも, らっかせい, てんさい, ソルガム, クローバ, アルファ

ルファ、牧草類)である。

なお、上記試験の大部分は予定された PHI における残留濃度を調べるだけの試験であるが、予定されている最短 PHI のほかに 3 から 5 時点でも試料を採取して残留濃度の経時変化を調べる残留物減少試験を含めることが求められる。必要な残留物減少試験の例数は、EU よりも少なく、必要な試験の総例数が 5 から 12 例の作物では 1 例、16 から 20 例の試験が求められる作物では 2 例であり、総試験例数が 3 例以下の作物には要求されない。また、PHI が長くなっても残留レベルが増加しないことが代表作物で示されれば、当該作物群の別の作物を追加して減少試験を要求されることはない。広範な作物種に使用される農薬では、木の実、根菜、葉菜、穀物、果菜の各代表作物 5 作物で残留物減少試験を実施することが推奨されている。

豪州<sup>6)</sup>では栽培面積 >10% または 1 万 ha の主要作物では 8~12 例、主要なマイナー作物 6 例、マイナー作物 2 例という標準推奨試験例数を作物ごとに示している。この例数の中には使用パターンおよび GAP が類似している場合、国外で実施された試験も含めている。また、1 年に 2 回以上栽培される作物ではシーズンを反映させた試験とすることを求めている。例数を減らすことができる例を示し、個別に決定している。この判断には、主要作物かマイナー作物か、輸出品としての重要度、国民栄養上の重要度、リスクが勘案される。豪州では、予定されている最大施用量に対応した用量とその 2 倍量での作物残留試験が推奨されているが、倍用量試験の代わりに

予定最大施用量での試験例数を増やしても良いとされている。作物残留試験の半数以上の試験を、残留物減少試験とすることが推奨されている。

試験例数については、平成 21 年 1 月に農林水産省で主要作物については、ガイドラインを改定後 3 年を目処として、生産量が 30 万トン以上の作物および生産量が 3 万トン以上 30 万トン以下で、食品摂取量に対する割合が 1% を超える農作物は 6 例以上、準主要作物は 3 例以上、生産量が 3 万トン以下の作物については 2 例以上の作物残留性試験成績が求められることに決定された。また、生産量が 3000 トン以下の超マイナーな作物は類似作物のデータの利用を可とすると決定された。

## 2) 作物群および作物群としての残留基準設定(グループトレランス)

JMPR<sup>1)</sup> は群 MRL を設定するための代表的作物の選択の基準などで国際的なレベルでの正式な合意はできておらず、ケースバイケースで設定している。それに当たっての原則ならびに考慮すべき事項として、グループトレランスは、果実類などの大枠の食品群ではなく、梨花類、柑橘、根菜、豆類、穀類、うり科果菜類など、より小さな分類に相当である。群内主要作物の残留量の変動があまりに大きい場合は、グループトレランスは設定すべきでなく、群内の多くの農産物での残留レベルの変動が大きい場合は、個々の農産物毎に個別の提案がなされるべきである。ただし、“但し 1 つまたは 2 つの農産物を除く”という方法は正当化される；グループトレランスを設定す

るに当たっては、群内の主要農産物での残留濃度に大きな差が無いだけでなく、残留濃度に影響するような作物の特性（果皮と果肉重量比、表面積／重量比、肥大生長速度の差、個々の作物の栽培慣行や GAP 等も考慮すること、ならびに、一つ以上の作物での代謝についての詳細な知見を考慮に入れること、など下記の 13 項目をあげている。また、推定暴露量 (EDI) の評価においては、グループトレランスが設定された場合、その作物群には単一の STMR を算定して評価すべきとしている。

(a) JMPR は食品と飼料に関する Codex 分類を個々の作物または作物群に MRL を提案するための第一義的なベースとして使用することを継続する。

(b) 一般的に、JMPR は果実、野菜、牧草、ナッツ及び種子、ハーブとスパイス類、又は肉製品といったような大枠の食品及び飼料に関する Codex 分類毎に最大残留レベルを推定することはしない。残留データ及び認可される使用法は、通常、梨花類果実、柑橘、根菜、豆類、穀類、ウリ科果菜類、牛乳、家畜の肉類、等の Codex の小分類に対してである。同様に入手可能な残留データ及び GAP に関する情報によって正当化できる場合、これは各国のアプローチにより沿った形となると判断でき、摂餌暴露のより正確な推定を可能とする。

(c) 適切な残留データがその食品群の数少ない農産物についてしか入手できない場合は、データを基に適切な個々の農産物に MRL を設定すべきである。

(d) いくつかのケースでは、JMPR は一つの農産物について十分なデータがなくて

も、GAP が類似している類似した作物のデータを最大残留レベルの推定をするために用いる。(例えば、なしとりんご、ブロッコリーとカリフラワー等)

(e) その他の状況が許す場合、群の中で残留が高いと思われる主たる農産物の全て又は大部分についての残留データを、その群内のマイナーな作物の残留量に外挿することができる。ただし、その群の主要作物の残留データが入手できても、残留量の変動が著しく大きい場合には、群としての MRL は設定できない。

(f) ある群での多くの農産物での残留レベルの変動が大きい場合は、個々の農産物毎に個別の提案がなされるべきである。経験則からある群“但し一つ又は二つの農産物を除く”との方法は正当化される(例えば、マンダリンを除く柑橘類)。そのような場合、除外した特定の農産物について、個別の MRL を設定する。

(g) 群 MRL を設定する場合、その群内の主要農産物での残留レベルに大きな差が無いだけでなく、残留レベルに影響するような作物の物理的な性質やその他の性質、個々の作物の栽培慣行や GAP 等も考慮しなければならない。

(h) 一般に、夏に急速に生育する作物の残留データは、悪条件で成長速度が遅くなった同一の作物、又は関連した作物には外挿できない(例えば、ペポカボチャ (summer squash) からクリカボチャ (winter squash)へ)。

(i) 群としての MRL を設定する際には、一つ以上の作物での代謝や農薬の運命に関する詳細な知見を考慮に入れなければならない。

- (j) 許容されるであろう JMPR から提案される群 MRL には、穀類（粟，ライ麦やソルガムでのデータ無しで，トウモロコシ，小麦，大麦，オート麦及び米を含む穀物群として設定），梨花類果実をりんごとなしのデータでマルメロ(quince)への外挿，核果類果実，家禽類の肉，牛乳，海洋哺乳動物以外の哺乳動物の肉，油搾種子等がある。
- (k) 群 MRL は一般的に柑橘の場合，好ましいと考えられる。しかし群としての最大残留レベルの推定には十分注意する必要がある。多くの農薬では果皮に残留が高いことに加え，果物のサイズおよび皮と果肉の比率の大きな変動を考慮する必要がある。柑橘の主要作物でのデータが特に重要である。柑橘に治する MRL は，個々の柑橘類（12 農薬）に対してよりも群として設定した（41 農薬）方が多い。
- (l) 同等でない場合でも，成熟まで急速に生育する作物の未成熟段階でのデータも表面積／重量比が小さい類似した作物に時には外挿できる。作物の生育により残留物が希釈されるため，推定した最大残留レベルはガーキン（gherkin）からキュウリには外挿できるが，その逆はできない。
- (m) 最終的な残留が見られないと期待できる場合や代謝試験データによってそれが裏付けられている場合には，個々の MRL を群の MRL により容易に外挿できる。例えば，生育初期での散布，種子処理，果樹での除草剤等がある。

EU<sup>7)</sup>は，GAP が同等である場合で，その

残留値の分布が平均値から  $1\sigma$  までの範囲（正規分布の場合）または中央値から 75 パーセンタイル値までの範囲（非正規分布の場合）が重複し，かつ，算定された最大残留量が，最も近い残留基準値カテゴリーと一致するか隣接カテゴリーに入る場合には，入手している全データからグループトレランスを設定できる。最大残留量は，残留データの分布が正規分布する場合は平均残留値 $+k$ ・標準偏差，非正規分布する場合は 75 パーセンタイルの 2 倍で算定する（ $k$  は 95%片側許容レンジの係数）。同等性がなければ，グループトレランスは設定されないか，または作物残留試験の追加が求められる。

なお，PSD 報告<sup>4)</sup>は，その付属書 3 にプレハーベスト処理とポストハーベスト処理に分けてグループトレランスの設定案（外挿可能作物案）を提示しているが，グループトレランスについて，1つの作物群内でも GAP が一致しない場合が多いこと，ならびに大きな作物群では精密な暴露評価を行うことが難しくなることを問題点として指摘している。

豪州<sup>6)</sup>は，グループトレランスが設定できるのは，同じ作物群に属する作物の GAP が同等で，気候，形態と生産時期が類似している場合のみであるとしている。また，個々の作物の残留レベルが  $>5$  倍（または  $<1/5$ ）異なる場合，通常，群 MRL は設定されないとしている。

米国<sup>5,8,9)</sup>は，作物を 19 群+17 亜群（2008 年の 40CFR180.41 の改定で，22 作物群+27 亜群になった）に分け，それぞれに属す

る代表作物（多くの例で、群あたり3～4作物、亜群あたり1～3作物）を定めている。農薬の使用パターン（施用の方式、施用量、回数、時期、間隔、収穫前使用禁止期間）が類似していて、代表作物に対する最大残留値（トレランス）が当該作物群内の作物の残留値の最高値から5を超えて異なっていない場合、グループトレランスを設定できるとしている。または、残留レベルが他より著しく低いか高い特定農作物を除いてグループトレランスが設定される。なお、グループトレランス設定に必要な試験例数は代表作物ごとに設定されている。例えば、作物群1の根菜および塊茎野菜では、にんじん6例、ばれいしょ12例、はつかだいこん5例、てんさい9例の合計32例（これら4作物に個別の残留基準を設定するにはそれぞれ5例から16例、合計で41例の試験が必要）。

### 3)適用範囲からの許容逸脱範囲

JMPR<sup>1)</sup>では、施用量、PHI、製剤、散布回数、散布法について、単独の逸脱の場合と複数事項について逸脱の場合のそれぞれについての考え方を示している。最大施用量の±30%、残留レベルとして±30%以内の変動を基準としており、例えば、PHIについては、残留量の減衰を一次反応と仮定できる場合、 $GAP$ の $PHI - 0.38 \cdot \text{半減期}$ から $GAP$ の $PHI + 0.51 \cdot \text{半減期}$ までを許容範囲としている。また、散布回数に関しては、散布回数が多い場合(回数以上)には、特に残留性が高い化合物か特に短い間隔で処理されない限り残留量への影響は一定以上にはならない。約3半減期を超える時点での処理は最終残留物に大きくは寄与しない。

製剤については、EC、WP、SCの残留性は類似しているなどとしている。

EU<sup>7)</sup>は同等性と外挿に関するガイドラインを持っており、製剤型、施用量、施用回数、施用方法、施用時期(PHI)、施用場面の変更・逸脱について考え方を示している。製剤型：EC、WP、WG、SC製剤は、PHIが8日以上の場合、通常、同等な残留を生じるとし、十分に根拠がある文書化された逸脱であれば考慮できるとしている。含有量の変更については、ケースバイケースで評価。施用量については、最大±25%の増減は経験的に同等の残留となるとしている。施用回数は±25%(4±1回)、ただし、残留性の低い残留物ではケースバイケースで判断してそれ以上も許容される。また、収穫目の最終施用が最も残留に寄与し、開花前の施用回数はあまり重要でないとしている。PHIについても±25%未満の変更は経験的に同等の残留を仮定できるとしている。複数の要因による影響については、25%則は適用されない。

米国については関連した文書を見付けられなかったが、米国EPAとカナダPMRAが作っているNAFTAのトレランス/MRL整合化作業グループが作成した文書<sup>10)</sup>では、トレランス設定に使用するデータセットはGAP最大施用量の±25%以内、最短PHIの±25%であることとして、±25%まで許容することを示唆している。

豪州<sup>8)</sup>は、施用量については±25%までは同等、施用回数も施用間隔に差が無ければ、開花後の施用回数が25%以内の増加は同

等の残留結果と見なし得るとしている。施用法については異なる施用法は原則として同等の残留結果を生じないとしている。PHI については、その長さに依存するが、±25%以下は同等としている。

## 2. 散布濃度、散布回数の逸脱の影響調査

前述のように、JMPR, EU, 米国, 豪州における、施用量, 施用回数, PHI, 施用剤型についての許容範囲を調査では、各国とも1つの項目についてのパラメーターの逸脱のみであれば、±25%の逸脱を許容する点で一致していた。ただし、JMPR は、施用量と PHI については、実際の残留濃度として±30%までの逸脱を許容している。これらについて、入手可能な資料を基に、その残留量に対する影響を試算した。

これまでに平成 17 年度以降新規、または適用拡大、または健康影響評価にかかわる見直し等で健康影響評価および基準値設定に使用された 60 農薬の作物残留性試験を調べ、施用濃度および施用回数の影響に関して調査した。試験例数が少ないことから、原則として、同一圃場で同一時期に平行して実施された試験で、LOQ を超える残留が認められた例のみを調査対象とした。剤型については、適切に比較できるデータは見出せなかった。散布液量に関しても同様であった。

### 散布濃度 (希釈倍率) :

5 農薬, 8(9)農作物, 18 の試験例があった (表 1)。希釈倍率の異なる 2 種濃度の散布液の濃度比に対する、対応した作物中残留濃度の比の相対比は、0.6 から 1.8 の範囲であり、総平均では  $1.1 \pm 0.39$  であった。

限られた数の農薬と作物でのデータではあり、また、散布液の濃度 (希釈倍率) も最大で 2.5 倍の狭い幅での違いではあったが、作物中の残留濃度は、予想される通り、施用液の濃度に概ね比例することを示唆している。

### 散布回数 :

散布回数の影響は、当該農薬の代謝・分解による消失のほか、作物の種類および対象部位によっては、作物の肥大生長による希釈効果等も加わることから、収穫期における残留量は散布回数が増えても回数増加率に対応しては高くはならない。収穫前 2 ~ 3 回の散布が主に寄与しており、それ以前の散布は収穫期の残留量には余り寄与しないと考えられるが、同一圃場、同一時点で平行して実施され、比較可能な実際の残留データでそれを示した例は余りない。13 農薬, 24 農作物, 104 組 (209) データ、散布回数の差の組み合わせ 5 種類 (1 回/2 回, 1 回/3 回, 2 回/3 回, 2 回/4 回, 3 回/5 回) の試験例を見出すことができ、散布回数増加率と残留濃度の比率を算出したほか、3 時点以上で残留濃度が測定されている例については、残留濃度低下は一次式に従うと仮定して、回帰式から推定半減期(HL)を算出し、次式から、w 日間隔で n 回散布後 p 日と n・a 回散布後 p 日の濃度比 R を計算した。

$$R = \frac{\sum_{N=1}^{N=n} (1/2)^{[W \times (N-1) + p] / HL}}{\sum_{N=1}^{N=m} (1/2)^{[W \times (N-1) + p] / HL}}$$

表 2 に示すように、例数の最も多かった

1 回散布と 2 回散布の比較では、調査した薬剤と作物については、1 回散布に対して 2 回散布が  $1.35 \pm 0.44$  倍 ( $n=22$ ) であった。この比率は、薬剤の代謝、分解ならびに肥大生長による作物部位からの消失速度と PHI(+ 散布間隔 1 週間) に依存するため、個別に検討が必要ではあるが、JMPR の勧告すなわち、散布回数については、特に残留性の高い化合物を短間隔で処理しない限り、残留量への影響は一定以上にならない。約 3 半減期を越える時点での処理は最終残留量に大きく寄与しないとの勧告を支持する結果であった。なお、推定半減期は 1 ~ 25 日 ( $6.6 \pm 6.7$  日) であり、計算による推定比率と実測濃度の濃度比率 R は、概ね一致していた。

作物残留性試験条件のうち、施用濃度については、PHI が比較的短いものについては、残留濃度とほぼ正比例し、影響が大きいと考えられることから、逸脱許容幅を超えた試験を参考に基準値を設定せざるを得ない場合、残留濃度を適用範囲内の最高施用濃度と試験濃度との比で補正することも考慮できる。

海外で採用されている  $\pm 25\%$  という逸脱の許容範囲は、分析のばらつきを考慮すると妥当な範囲と思われる。散布回数については、適用範囲 2 回に対して 3 回の散布は許容しないが、適用範囲 4 回に対して 5 回は許容するというものであり、今回の調査結果から見ても妥当なものと思われる。

### 3. 提案

以上の情報収集、検討を踏まえ、以下の提案をする。また、残留基準設定に参照す

る観点から作物残留性試験とその結果ならびに海外基準を評価する際のチェックポイントを表にまとめた。

#### 提案：

(1) 既存の作物残留性試験データを基に残留量と散布濃度、散布回数との相関等を検討した。残留基準値設定に参照する作物残留性試験は、適用範囲（使用基準）の農薬使用条件から原則、 $\pm 25\%$  以上逸脱してはならない。

(2) 作物群として基準値が設定されている場合の推定暴露量 (EDI) の算定では、従来は作物残留性試験が実施された農産物以外は EDI 試算の対象にしてこなかったが、それらも EDI 試算の対象にする。すなわち、作物群としての基準値を設定するのに参照された作物残留性試験の農産物については、当該試験の平均値を代表的な残留値として採用する。当該作物群のその他の作物種については、当該作物群の基準値に直接採用された最高残留値を与えた作物種の作物残留性試験結果の中央値 (STMR) または平均値を代表的な残留値とする。

### D. 結論

農産物への残留基準設定に参照する国内および海外作物残留と試験条件逸脱の許容範囲に関する海外情報を収集した。 $\pm 25\%$  を逸脱許容幅とすること、および作物群としての基準値が設定されている作物群の EDI 試算法の改良について提案した。残留値と処理濃度を越試験の妥当性を評価するためのチェックポイントを纏めた。

#### D. 参考文献

- 1) FOA : "FAO manual on the submission and evaluation of pesticide residues data for the estimation of maximum residue levels in food and feed", 2002
- 2) Guidelines for the generation of data concerning residues as provided in Annex II part A, section 6 and Annex III, part A, section 8 of Directive 91/414/EEC concerning the placing of plant protection products on the market , Appendix B : General recommendations for the design, preparation and realization of residue trials (Doc 7029/VI/95rev.5), 22 July 1997
- 3) Working document: Guidelines on comparability, extrapolation, group tolerances and data requirements for setting MRLs , Appendix D: Comparability, extrapolation, group tolerances and data requirements, Doc.7525/VI/\*95-rev7, 12/6/2001
- 4) Harris C and Pim J:Minimum Data Requirements for Establishing Maximum Residues Limits (MRLs) including Import Tolerances - Recommendation : from Scientific Workshop held at the Pesticide Safety Directorate , York, UK on 6-8 September 1999
- 5) USA, EPA-OPP: Residue Chemistry Test Guidelines, OPPTS860.1500 Crop Field Trials, EPA712-C-96-183, Aug. 1996
- 6) APVMA: Residue Trials to Obtain

#### Permanent MRLs for Crops

- 7) Working document: Guidelines on comparability, extrapolation, group tolerances and data requirements for setting MRLs , Appendix D: Comparability, extrapolation, group tolerances and data requirements, Doc.7525/VI/\*95-rev7, 12/6/2001
- 8) USA, 40CFR 180.40 Tolerances for crop groups
- 9) USA, 40CFR 180.41 Crop group tables
- 10) Statistical Basis of the NAFTA Method for Calculating Pesticide Maximum Residue Limits from Field Trial Data (2005)

#### F. 危険情報

なし

#### G. 研究発表

なし

#### H. 知的財産権の出願・登録状況

なし

表1 残留濃度に対する散布液濃度の影響

農薬	作物	残留濃度 (mg/kg)*	希釈倍率	施用回数	PHI (日)	残留濃度比/希釈倍率比**	
A	殺虫剤	なし	0.14/0.08	2000倍/5000倍	2回	14	0.7
			0.19/0.06	2500倍/5000倍	2回	14	1.6
		もも果肉	0.12/0.04	2500倍/5000倍	2回	14	1.5
			0.11/0.06	2500倍/5000倍	2回	14	0.9
		もも果皮	0.53/0.26	2500倍/5000倍	2回	14	1.0
			1.2/0.70	2500倍/5000倍	2回	14	0.9
すもも	0.07/0.02	2500倍/5000倍	2回	21	1.8		
	ぶどう	1.07/1.26	4000倍/5000倍	2回	14	0.7	
		0.96/0.29	1000倍/2000倍	3回	14	1.7	
B	殺虫剤	だいこん葉	1.66/0.53	1000倍/2000倍	5回	14	1.6
			1.13/0.72	1000倍/2000倍	2回	14	0.8
C	殺虫剤	柿	0.50/0.30	1000倍/2000倍	2回	14	0.8
			0.36/0.20	1000倍/2000倍	2回	14	0.9
		なし	0.26/0.14	1000倍/2000倍	2回	14	0.9
			5.02/2.60	1000倍/2000倍	1回	7	1.0
D	殺虫剤	しゅんぎく	2.92/2.60	1000倍/2000倍	1回	7	0.6
			3.74/2.74	1000倍/2000倍	2回	7	0.7
			4.38/1.48	1000倍/2000倍	2回	7	1.5
			平均±SD				

\* 分母は高希釈倍率散布液による残留濃度, 分子は低希釈倍率散布液による残留濃度

\*\* [低希釈倍率散布液による残留濃度/高希釈倍率散布液による残留濃度] ÷ [高希釈倍率/低希釈倍率]

表2 残留濃度に対する散布回数の影響

農薬	作物	散布回数	PHI 日	実測		計算値	
				残留濃度比*	平均値	残留濃度比*	半減期(日)
A 殺虫剤	みずな	1回/2回	3	1.1	1.3	2.7	
		2回/2回	3	1.0	#	#	
	倉用剤	1回/2回	7	1.1	0.9	#	
		2回/2回	7	0.6			
	オクラ	1回/2回	7	1.6	1.5	1.1	2.0
		2回/2回	7	1.4			
		1回/2回	7	1.1	1.2	1.1	
		2回/2回	7	1.2			
		1回/2回	7	1.5	1.3	0.6	3.6
		2回/2回	7	1.0			
B 殺虫剤	茶	1回/2回	7	1.0	1.7	1.5	7.6
		2回/2回	7	2.3			
	根際ほぎ	1回/2回	7	3.0	3.0	1.8	
		2回/2回	7	3.0			
	いちご	1回/2回	1	1.2	1.2	1.6	5.2
		2回/2回	1	1.3			
		1回/2回	1	1.2	2.6	1.8	24.0
		2回/2回	14	3.3			
		1回/2回	14	1.9	1.1	1.0	1.3
		2回/2回	14	1.2			
D 殺虫剤	オクラ	1回/2回	1	0.9	1.1	1.0	1.3
		2回/2回	1	1.3			
	なし	1回/2回	1	1.2	1.2	1.6	5.2
		2回/2回	1	1.2			
	大豆	1回/2回	1	1.0	1.2	1.8	24.0
		2回/2回	1	1.5			
		1回/2回	14	1.0	0.9	1.2	2.9
		2回/2回	14	1.0			
		1回/2回	7	1.8	1.5	1.2	
		2回/2回	7	1.8			
F 殺虫剤	茶	1回/2回	7	1.8	1.5	1.2	2.9
		2回/2回	7	1.8			
	なし	1回/2回	7	1.4	0.9	1.2	2.9
		2回/2回	7	1.4			
	なす	1回/2回	1	0.6	1.1	1.1	1.1
		2回/2回	1	1.0			
		1回/2回	1	1.8	1.1	1.1	1.1
		2回/2回	1	1.8			
		1回/2回	7	1.5	1.1	1.2	3.5
		2回/2回	7	1.5			
G 殺虫剤	しゅんぎく	1回/2回	7	0.7	1.1	1.1	1.1
		2回/2回	7	0.7			
	チンゲンサイ	1回/2回	7	0.3	1.7	1.2	3.5
		2回/2回	7	0.3			
	トマト	1回/2回	7	3.0	1.6	1.6	1.6
		2回/2回	7	3.0			
		1回/2回	1	1.7	1.6	1.6	1.6
		2回/2回	1	1.7			
		1回/2回	1	0.8	1.1	1.1	1.1
		2回/2回	1	0.8			
H 殺虫剤	おくら	1回/2回	1	0.9	1.0	1.1	4.5
		2回/2回	1	0.9			
	きゅうり	1回/2回	1	1.1	1.2	1.0	1.8
		2回/2回	1	1.1			
	いちご	1回/2回	1	1.5	1.3	1.5	7.0
		2回/2回	1	1.1			
		1回/2回	1	1.0	0.8	0.8	0.8
		2回/2回	1	0.6			
		1回/2回	1	1.7	1.1	1.1	1.1
		2回/2回	1	1.5			
K 殺虫剤	なす	1回/2回	1	0.7	1.1	1.0	3.1
		2回/2回	1	0.7			
	トマト	1回/2回	1	1.1	1.2	1.2	1.2
		2回/2回	1	1.2			
	おくら	1回/2回	1	1.2	1.2	1.2	1.2
		2回/2回	1	1.2			
		1回/2回	1	1.1	1.1	1.1	1.1
		2回/2回	1	1.1			
		1回/2回	1	1.1	1.1	1.1	1.1
		2回/2回	1	1.1			

Q 殺虫剤  
 \* [散布回数の多い方の残留濃度] ÷ [散布回数の少ない方の残留濃度] × 100% (散布回数は5回以内)  
 # 2時点のみのデータであり、計算対象とせず。 - 検算がとれず。  
 \*\* 残留濃度の経時推移からみて0.03mg/kgは算出値と見られる。  
 \*\*\* 残留濃度の多い方のデータから推定。

厚生労働科学研究費補助金（食品の安心・安全確保推進研究事業）

Ⅱ. 分担研究報告書

食品中に残留する農薬等におけるリスク管理手法の精密化に関する研究

6 残留基準設定データの精密化：

調理加工に関する試験

分担研究者 永山敏廣  
（東京都健康安全研究センター）

研究協力者 山田貞二  
（愛知県衛生研究所）

## Ⅱ. 分担研究報告書

食品中に残留する農薬等のリスク管理手法の精密化に関する研究:

### 6. 残留基準設定データの精密化

分担研究者 永山敏廣 東京都健康安全研究センター

#### 研究要旨

1995年以降の調理加工による残留農薬等の消長に関する文献、ならびに1993～2007年のJMPRで評価され、FAOの刊行物として公表されている農産物加工データ、さらにOECD、米国、EUなど諸外国における加工影響評価試験とその利用法に関する指針等を収集、翻訳し、それらの内容について比較検討した。また、農産物の調理加工による影響評価に関するデータを整理するとともに、これらの情報を基に農産物等の加工による影響調査の試験方法、その結果の暴露量評価への適用方法について検討を加えた。

#### 研究協力者

山田貞二 愛知県衛生研究所

#### A. 研究目的

食品中残留農薬のより精密なリスク管理に資することを目的とする。

農産物からの残留農薬の暴露量評価法については、平成10年8月に食品衛生調査会から出された『残留農薬基準設定における暴露評価の精密化に関する意見具申』があり、その中で日本型推定一日摂取量方式として、①作物残留試験における残留量の平均値等の採用のほか、②非可食部の除去、③加工調理による残留への影響を考慮することが明示されている。ポジティブリスト制度導入に伴う基準値の再評価に際し、暴露量算定に加工の要因を含めることの重要性が増しているが、基準値設定に参照できる加工試験

法や試験結果の暴露評価への適用方法については明確ではない。また、調理加工による残留農薬への影響を示す係数の定義が、海外および国際機関(Codex, JMPR, OECD)におけるものと異なっているという問題も含んでいる(『加工調理係数』と『Processing Factor』)。そこで、本研究では、基準値が定められていない加工品について原材料の残留基準値から加工食品中の残留基準相当値を判断するための基礎資料として、加工に関する既存のデータを収集、整理し、また、残留基準設定データの精密化として、残留基準設定の際の暴露量評価に農産物の加工の影響を含めることを可能にするため、および残留基準が設定されていない加工食品の検査に役立てるため、試験方法とその結果の暴露評価への適用法を指針案に取り纏めた。

## B. 研究方法

加工食品について、原材料の残留基準値から加工食品中の残留基準相当値を判断するための基礎資料として、種々の文献、JMPR 等における農産物の調理加工による影響データを収集、整理した。また、農産物の加工による影響を考慮した残留農薬の暴露評価および残留基準が設定されていない加工農産食品の検査に資するため、加工影響評価試験とその結果の利用法に関して、米国、EU の他、OECD における指針等を収集した。これらの情報を基に、農産物等の加工による影響調査の試験方法を取りまとめた指針案を作成し、当該試験で得られた結果の暴露量評価への適用方法について検討を加えた。

## C. 研究結果及び考察

### C-1. 既存の調理加工に関するデータ

生鮮食品に残留した農薬の調理加工後の残存、挙動に関する文献を収集した。

#### a. 学術雑誌掲載の調理加工に関するデータ

a-1. 「野菜に残留する農薬の除去に関する研究（第1報） コマツナに残留する農薬の洗浄除去性について」<sup>1)</sup>

農薬散布歴既知の農場野菜のコマツナを用いて、ヒ酸鉛と BHC の洗浄による除去性を検討した。

a-2. 「野菜に残留する農薬の除去に関する研究（第2報） サントウサイおよび他の野菜に残留する農薬の除去性について」<sup>2)</sup>

農薬散布歴既知の農場野菜のサントウ

サイを用いて、ヒ酸鉛、フェニトロチオンおよびフェントエートの洗剤洗浄効果を検討した。

a-3. 「小麦粉中の有機リン農薬について」<sup>3)</sup>

輸入玄麦中の残留マラチオンについて、玄麦の製粉分画におけるマラチオンの分布及び小麦粉の貯蔵による減少並びに加熱処理による変化を検討した。

a-4. 「ピレスロイド系殺虫剤の洗浄による減少と煮沸処理による減少」<sup>4)</sup>

モデル的にりんご及びホウレンソウの表面に付着させたピレスロイド系農薬 4 種（アレスリン、レスメスリン、フタルスリン、パーメスリン）の洗浄及び煮沸処理による減少を調査した。

a-5. 「農薬の食品調理処理における挙動（第2報） 食品試料」<sup>5)</sup>

白菜、にんじん、じゃがいも及びグリーンピースを農薬標準溶液に浸漬して試料を調製し、調理処理を施した後の農薬残存量を検討した。

使用農薬は、クロルフェンビンホス-E 及び-Z、ダイアジノン、ジクロルボス、ジメトエート、EPN、IBP、モノクロトホス-E、フェニトロチオン、フェンチオン、ディルドリン、クロロタロニルの 12 種、農薬乳剤としてフェニトロチオン乳剤及びダイアジノン乳剤を用いた。

a-6. 「小麦の製粉及び調理加工後における有機リン系農薬の残留」<sup>6)</sup>

クロルピリホスメチル及びマラチオンが残留した玄麦から、それぞれの食品製造用途に応じて製粉した小麦粉を用いて作製した食品中の農薬残留量を調査した。

a-7. 「ジクロルボス等 20 種農薬をモデ

的に添加したばれいしょ、にんじんにおける洗浄・調理過程での減少度の検討<sup>7)</sup>

有機リン系農薬 12 種(ジクロロボス, ダイアジノン, ジメトエート, マラチオン, メチルパラチオン, フェニトロチオン, パラチオン, フェントエート, フェンスルホチオン, エディフェンホス, EPN, ホサロン), 有機窒素系農薬 6 種(オキサミル, クロルプロファム, エチオフェンカルブ, ベンダイオカルブ, カルバリル, アミトラズ) 及び有機塩素系農薬 2 種(エンドリン, p,p'-DDT) の計 20 種について, これら農薬を塗布・添加した試料を洗浄あるいは調理したときの残存量を調査した。

a-8. 「フェニトロチオン等 12 種農薬をモデル的に添加したピーマン, ぶどう及びほうれんそうにおける洗浄・調理過程での消長」<sup>8)</sup>

有機リン系農薬 7 種(クロルピリホス, ダイアジノン, EPN, エトプロホス, フェニトロチオン, マラチオン, キナルホス), 有機窒素系農薬 3 種(カルバリル, エチオフェンカルブ, フェノブカルブ) 及び有機塩素系農薬 2 種(ピリフェノックス-E, ピリフェノックス-Z) の計 12 種を選び, 浸漬法にてピーマン, ぶどう及びほうれんそうに添加した。なお, ピーマンでは, キナルホス, カルバリル, ピリフェノックス-E, ピリフェノックス-Z の 4 種を, ほうれんそうでは, エトプロホス, キナルホス, ピリフェノックス-E, ピリフェノックス-Z の 4 種を対象外とした。これら試料について, 洗浄及び調理過程での農薬の減少を調査した。

a-9. 「葉もの野菜における有機リン系農薬の残留性について」<sup>9)</sup>

生育中の小松菜にジクロロボス, マラチオン, フェントエート, EPN, イソキサチオンの 5 種有機リン系殺虫剤を散布して, その経日変化と調理過程での消長を検討した。

a-10. 「キャプタン等の残留農薬含有国産農作物の調理・加工過程での消長」<sup>10)</sup>

市販国産農作物のうち農薬残留を確認した小松菜, ししとう, たまねぎ, 白菜, いちご, キウイフルーツ及びりんごを用いて調理及び加工過程における農薬の消長を調べた。

a-11. 「Influence of Frying and Baking on Chlorpropham Residue」<sup>11)</sup>

冷凍ポテト中のクロルプロファムの調理加工に伴う挙動を調べた。

加熱分解物として *m*-クロロアニリンの生成が確認された。

a-12. 「Behavior of Residual Organophosphorus Pesticides in Foodstuffs during Leaching or Cooking」<sup>12)</sup>

ほうれんそう, いちご, オレンジ及びグレープフルーツを用いて, 調理加工時における農薬の減衰について調べた。また, 製品に残存した農薬量と各農薬の有する水への溶解性やオクタノール・水係数 (Pow) との関係調べた。

a-13. 「Disappearance of Tetradifon from Field-Sprayed Apricots and the Apricots Juice Produced from Them」<sup>13)</sup>

殺ダニ剤テトラジホンのアンズ圃場試験における減衰及びジュース加工におけ

る消長を調査した。

a-14. 「Fate of Some Insecticides from Vine to Wine」<sup>14)</sup>

5種の殺虫剤(クロロピリホスメチル, フェンチオン, メチダチオン, パラチオンメチル及びピキナルホス)の圃場試験, ワイン製造における消長及びワインの濁りを取り除く清澄剤の効果を調査した。

a-15. 「Persistence and Metabolism of Folpet in Grapes and Wine」<sup>15)</sup>

フタルイミド系の接触性殺菌剤のホルペットについて, ブドウ圃場試験とワイン製造における消長を調査した。

a-16. 「Fate of Some New Fungicides(Cyprodinil, Fludioxonil, Pyrimethanil, and Tebuconazole) from Vine to Wine」<sup>16)</sup>

4種の殺菌剤(シプロジニル, フルジジオキソニル, ピリメタニル及びテブコナゾール)の圃場及びワイン製造における消長並びにワインの濁りを取り除く清澄剤の効果を調査した。

a-17. 「Fate of Azoxystrobin, Fluazinam, Kresoxim-methyl, Mepanipyrim, and Tetraconazole from Vine to Wine」<sup>17)</sup>

5種の殺菌剤(アゾキシストロビン, フルアジナム, クレソキシムメチル, メパニピリム及びテトラコナゾール)の圃場及びワイン製造における消長並びにワインの濁りを取り除く清澄剤の効果を調査した。

a-18. 「Effect of Household Preparation on Levels of Pesticide Residues in Produce」<sup>18)</sup>

農薬が検出された農産物について, 家

庭で一般的に行われている処理によりどの程度残留量が増減するかを調査した。

分析対象農薬は有機塩素系としてキヤプタンを始め5種, 有機リン系としてアセフェートを始め11種, N-メチルカルバメート系としてアルジカルブを始め3種, その他農薬としてベノミル, ダミノジド, チラム(EBCD)の3種, 計22種。

a-19. 「Residues of Some Pesticides in Fresh and Dried Apricots」<sup>19)</sup>

フェニトロチオン, ジメトエート及びジラムのアンズ圃場試験における減衰及びアンズの乾燥過程における消長を調査した。

a-20. 「Pesticide Residues on Field-Sprayed Apricots and in Apricot Drying」<sup>20)</sup>

アンズ圃場での農薬(イプロジオン, ダイアジノン, ビテルタノール, プロシミドン及びホサロンの5種類)の減衰と乾燥方法(オープン乾燥と天日乾燥)の違いによる農薬の消長を調査した。

a-21. 「Pesticide Residues in Raisin Processing」<sup>21)</sup>

レーズン製造における天然法(天日乾燥)と人工法(オープン乾燥)によるベナラキシル, ジメトエート, イプロジオン, メタラキシル, ホサロン, プロシミドン及びピンクログゾリンの7種農薬の消長を調査した。

a-22. 「Disappearance of Azoxystrobin, Pyrimethanil, Cyprodinil, and Fludioxonil on Tomatoes in a Greenhouse」<sup>22)</sup>

温室栽培のトマトにアゾキシストロビン, ピリメタニル, シプロジニル及びフ

ルジオキソニルを散布して、それらの消長を調査した。

a-23. 「The Impact of Household Preparations on the Residues of Pesticides in Selected Agricultural Food Commodities Available in India」<sup>23)</sup>

インド国内の小売店で購入した5種の野菜(トマト, ジャガイモ, オクラ, キャベツ, green beans), 6種の穀類と豆類(米, トウモロコシ, 小麦, red gram, black gram, green gram)及び6種の果物(マンゴー, オレンジ, グアバ, バナナ, リンゴ, ブドウ)に農薬を添加し, インドの一般家庭での調理法による農薬の消長を検討した。用いた農薬は, エンドスルファン始め有機塩素系4種, クロロピリホス始め有機リン系17種, カルバリル始め有機窒素系10種の計31種であった。

a-24. 「Effect of Storage Temperature on Degradation of Methidathion in Fortified Orange and Peach Juices」<sup>24)</sup>

オレンジ及びピーチジュース中での貯蔵温度におけるメチダチオンの分解の程度を調査した。

a-25. 「Fate of Postharvest-Applied Dichlorvos in Stored and Processed Dates」<sup>25)</sup>

収穫後にジクロロボス(DDVP)で処理したナツメヤシ果実(デーツ)の保存及び調理加工における消長を調査した。調理加工法は一般家庭で行われている方法を採用した。

a-26. 「生鮮野菜・果実中の残留農薬の調理過程における消長」<sup>26)</sup>

農薬残留を確認した市販の野菜・果実類を用いて調理過程における農薬の消長を検討した。

a-27. 「Residues of Azoxystrobin from Grapes to Raisins」<sup>27)</sup>

水洗によるブドウ中のアゾキシストロビン残留量の減少, 並びにアルカリ洗浄後の天日乾燥及び天日乾燥のみを施したレーズン中の残留量の消長を調査した。

b. 1993~2007年にJMPRから報告された調理加工による残留農薬等の消長に関する事例

FAO Plant Production and Protection Paper, Pesticide residues in food, Evaluations シリーズで1993~2007年に報告された農産物の調理加工による残留量への影響評価に関するデータを収集, 整理した。その結果, 120農薬以上の70農作物以上に関する延べ約770の農薬と農作物の組合せによる事例が収集できた。各年度に報告された農薬と農作物の組合せ例を表1~14に示した。

野菜及び果実等では, 洗浄, 乾燥, 剥皮などの他, ジュース, ジャムなどの製造, 穀類では製粉, オイルシードでは製油などの加工が行われた。それぞれの事例について, 原材料とその製品中の濃度が示され, 原材料中濃度に対する調理加工後の製品中濃度の比が Processing Factor (PF) として表されている。



表 2. JMPR で評価された加工による残留量への影響研究例 (1994)

No.	JMPR 報告年	農薬名	農作物名		
40	1994	acephate	corn		
41			dried beans		
42			green beans		
43			mint		
44			soya beans		
45		aldicarb		citrus fruits	
46				coffee	
47				cotton seed	
48				grapes	
49				maize	
50			peanuts		
51			sorghum		
52			soya beans		
53			sugar beat		
54			sugar cane		
55			grapes		
56			pineapples		
57			plums		
58			tomatoes		
59			captan		apple
60	grapes				
61	tomatoes				
62	Chlormequat		barley		
63			oats		
64			rape		
65			rye		
66			wheat		
67		Clethodim	cotton seed		
68			soya bean		
69			sunflower seed		
70			barley		
71			oilseeds		
72		Diquat		sorghum grain	
73				soya beans	
74				wheat	
75				apples	
76				cotton seed	
77		Ethephon	cranberries		
78			grapes		
79			olives		
80			peppers		
81			pinapples		
82			sugar cane		
83			tomatoes		
84			wheat		
85			Ethion		apples
86					citrus fruits
87	grapes				
88	Glufosinate-ammonium		maize		
89			citrus fruits		
90			potatoes		
91			rape seed		
92			sunflower seed		
93	wheat				
No.	JMPR 報告年	農薬名	農作物名		
94		Iprodione	maize		
95			potates		
96			cotton seed		
97		Parathion-methyl		maize	
98				potatoes	
99				rice	
100				soya beans	
101				sugar beet	
102				wheat	
103				citrus fruits	
104	Phosalone		tea		
105			apples		
106			grapes		
107	Tebuconazole		peach		
108			peanuts		
109			rape seed		
110			wheat		
111			potatoes		
		Tecnazene			

表 3. JMPR で評価された加工による残留量への影響研究例 (1995-1996)

No.	JMPR 報告年	農薬名	農作物名	No.	JMPR 報告年	農薬名	農作物名
113	1995	aziphos-methyl	grapes	135	1996	acephate	tomatoes
114		bifenthrin	barley	136		aldicarb	potatoes
115		buprofezin	tomatoes	137		bifenthrin	wheat
116		chlorpyrifos	grapefruit	138		chlorofvinphos	carrots
117			lemons	139		haloxyfop	cotton seed
118			oranges	140			rape seed
119			tangelons	141			rice
120			wheat	142			soya beans
121			apples	143			sugar beet
122			olives	144		methamidophos	peaches
123			oranges	145		tebufenozide	apples
124			cotton seed	146			grapes
125			rape seed	147			tea
126			soya beans	148			apples
127		sugar beet	149		cotton seed		
128		sunflower seed	150		grapes		
129		apples	151		plums/cherries		
130		grapes	152		potatoers		
131		pears	153		soya beans		
132		grapes	154		tomatoes		
133		potatoes	155		apples		
134		tomatoes	156		grapes		
			157		apples		
					thiram		
					ziram		

表 4. JMPR で評価された加工による残留量への影響研究例 (1997)

No.	JMPR 報告年	農薬名	農作物名	No.	JMPR 報告年	農薬名	農作物名
158	1997	abamectin	apples	181		folpet	apples
159			hops	182			grapes
160			pears	183			cotton
161		potatoes	184	maize			
162			barley	185		sorghum	
163		bifenthrin	apples	186		citrus fruits	
164		captan	grapes	187		grapes	
165		carbofuran	coffee	188		blackcurrant	
166			cotton	189		strawberries	
167			grapes	190		tomatoes	
168		maize	191	apples			
169		pimento peppers	192	apricots			
170		potatoes	193	grapes			
171		rice	194	olives			
172		sorghum	195	peaches			
173		sugar beet	196	potatoes			
174		sugar cane	197	prunes			
175	sunflowers	198	grapes				
176	carbosulfan	199	peanuts				
177	clethodim	200	plums				
178	fenbuconazole	grapes	201	apples			
179		peaches	202	citrus fruit			
180		wheat	203	potatoes			