

2) 確率モデルによる短期暴露量の推定方法の検討

基本的な検討として、作物残留データ(n=3~18)について理論分布を仮定せず、そのままの値をモデルに入れ、上限量のリミットなしで行ったシミュレーション結果を表4に示す。

表4においては、1日摂取量の分布として、99.999パーセントイルまで示したが、これは10万分の1に相当するものであり、その値においても、21すべての農作物において、AcetamidridのARfD(100 μg/kg bw)を超えることはなかった。

さらに、表2に仮定した摂取量の上限リミットを各農作物の摂取量分布に適用し、同様のシミュレーションを行った結果を表5に示す。その結果、暴露量の推計値にはほとんど影響を与えず、リミットをかけることによる暴露量推計値の減少よりも、作物残留データに起因すると考えられるランダムな影響の方が大きかったと考えられた。

n>10の作物残留データが利用可能であった「りんご」「トマト」「ブドウ」については、ブートストラップ法により分布を仮定した上で、同様のシミュレーションを行った結果を表6に示す。併せて、1点推定法による暴露量推定値も示し、比較した。

1点推定法との確率モデルによる推定値(上限値リミットなし、作物残留データの分布の仮定なし)との比較では、1点推定法による値が、<99パ

表4 確率モデルによるAcetamidridの短期経口暴露量の推定

*作物残留データは理論分布を仮定せずそのままの値(ただし、LOQ未満の場合はLOQ値)を用い、摂取量の上限リミットなし。

食品グループ	2bの頻度# (%)	1日摂取量(μg/kg bw / day)							
		平均値	中央値	SD	97.5%tile	99.0%tile	99.9%tile	99.99%tile	99.999%tile
1 ねぎ(含リーキ)	99.47	0.74	0.24	1.28	4.28	6.29	11.30	14.14	17.55
2 玉ねぎ	98.90	0.03	0.02	0.03	0.10	0.14	0.18	0.24	0.32
3 メロン類(果実)	99.76	0.35	0.20	0.47	1.62	2.33	4.67	6.21	9.68
4 はなやさい(ブロッコリー)	99.80	0.11	0.04	0.19	0.65	0.95	1.98	3.14	3.77
5 セロリー	100.00	0.48	0.27	0.67	2.25	3.24	6.91	12.16	14.26
6 レタス	100.00	1.29	0.78	1.66	5.56	7.91	16.46	29.90	50.67
7 ほうれんそう	98.88	2.96	1.14	4.94	16.86	24.73	43.04	57.32	77.55
8 オレンジ(含ネーブルオレンジ)	96.78	0.97	0.68	0.92	3.61	4.64	5.89	7.69	8.72
9 レモン	99.99	0.16	0.10	0.18	0.64	0.85	1.49	2.26	3.08
10 りんご	96.45	1.33	0.89	1.38	5.03	6.96	11.49	15.10	24.49
11 アーモンド	0.01	0.00	0.00	0.00	0.01	0.01	0.01	0.02	0.02
12 きゅうり(含ガーキン)	93.25	0.09	0.05	0.10	0.37	0.55	0.79	1.18	1.70
13 トマト	95.81	0.13	0.07	0.17	0.61	0.87	1.32	1.95	2.38
14 ししとうがらし	11.78	0.04	0.03	0.03	0.13	0.16	0.30	0.48	0.61
15 ピーマン	88.93	0.03	0.02	0.03	0.12	0.14	0.21	0.31	0.40
16 いちご	1.51	0.11	0.08	0.09	0.34	0.46	0.84	1.36	1.76
17 さくらんぼ	9.32	0.37	0.27	0.39	1.35	1.90	3.76	6.98	11.46
18 もも	89.14	1.00	0.72	0.87	3.16	3.76	5.91	8.66	13.54
19 西洋なし	90.93	0.68	0.49	0.61	2.36	2.80	4.05	5.87	7.87
20 ぶどう	93.15	0.17	0.12	0.16	0.61	0.72	0.98	1.39	1.76
21 ブルーベリー	0.02	0.17	0.11	0.19	0.67	0.91	1.70	3.08	4.70

#1個の果実や野菜の可食部重量(ユニット重量)が、1日の総摂取量よりも大きい場合。

表5 確率モデルによるAcetamidridの短期経口暴露量の推定(リミット値を適用)

*作物残留データは理論分布を仮定せずそのままの値(ただし、LOQ未満の場合はLOQ値)を用い、摂取量の上限リミットあり。

食品グループ	1日摂取量(μg/kg bw / day)								リミット無しの場合との比較*	
	平均値	中央値	SD	97.5%tile	99.0%tile	99.9%tile	99.99%tile	99.999%tile	99.9%tile	99.99%tile
1 ねぎ(含リーキ)	0.74	0.24	1.27	4.30	6.19	11.33	13.62	17.59	0.02	-0.52
2 玉ねぎ	0.03	0.02	0.03	0.10	0.14	0.18	0.24	0.34	0.00	0.00
3 メロン類(果実)	0.35	0.20	0.47	1.62	2.33	4.73	6.63	7.48	0.06	0.42
4 はなやさい(ブロッコリー)	0.11	0.04	0.19	0.65	0.95	1.91	3.00	3.32	-0.07	-0.14
5 セロリー	0.48	0.27	0.68	2.21	3.25	7.21	11.30	15.16	0.30	-0.86
6 レタス	1.28	0.77	1.63	5.59	7.89	16.02	28.13	51.33	-0.44	-1.77
7 ほうれんそう	2.97	1.16	4.95	17.19	24.51	43.18	56.90	76.06	0.14	-0.42
8 オレンジ(含ネーブルオレンジ)	0.98	0.68	0.93	3.60	4.66	5.94	7.79	11.00	0.05	0.10
9 レモン	0.16	0.10	0.17	0.64	0.84	1.46	2.43	3.03	-0.03	0.18
10 りんご	1.33	0.89	1.38	5.06	6.91	11.36	16.06	19.98	-0.13	0.97
11 アーモンド	0.00	0.00	0.00	0.01	0.01	0.01	0.02	0.02	0.00	0.00
12 きゅうり(含ガーキン)	0.09	0.05	0.10	0.38	0.55	0.81	1.15	1.76	0.02	-0.03
13 トマト	0.13	0.07	0.17	0.62	0.86	1.29	1.80	2.35	-0.03	-0.16
14 ししとうがらし	0.04	0.03	0.03	0.12	0.16	0.30	0.51	0.78	0.00	0.04
15 ピーマン	0.03	0.02	0.03	0.12	0.15	0.21	0.28	0.44	0.00	-0.04
16 いちご	0.11	0.08	0.09	0.35	0.46	0.83	1.32	1.60	-0.01	-0.04
17 さくらんぼ	0.37	0.27	0.39	1.35	1.86	3.82	7.61	11.16	0.06	0.63
18 もも	1.00	0.72	0.86	3.14	3.75	5.79	7.56	8.30	-0.13	-1.10
19 西洋なし	0.69	0.49	0.62	2.41	2.85	4.25	5.96	9.26	0.20	0.09
20 ぶどう	0.17	0.12	0.16	0.61	0.72	1.02	1.42	1.75	0.04	0.03
21 ブルーベリー	0.17	0.11	0.19	0.67	0.92	1.78	2.93	4.73	0.08	-0.15

\$ (リミットをかけた場合:表4の値) - (リミットをかけない場合:表3の値)

ーセントイル 4 農作物、99~<99.9 パーセントイル 12 農作物、99.9~<99.99 パーセントイル 4 農作物、≥99.99 パーセントイル 1 農作物(ぶどう)であった。おおよそ、99~<99.9 パーセントイルに分布していたが、ぶどうについては、1点推定法に用いたHR(0.25mg/kg)が分布全体の中で飛び離れていたことから、1点推定法による値が相対的に大きくなったと考えられる。

また、作物残留データをそのままシミュレーションに加えた場合と、ブートストラップ法を用いて理論分布に当てはめた場合の比較では、「りんご」の場合(図 2a)では、両者に大きな違いはなかったが、「トマト」及び「ブドウ」では理論モデルを適用した場合の方が、暴露量の推定値が3~8 倍程度大きくなった(表6)。

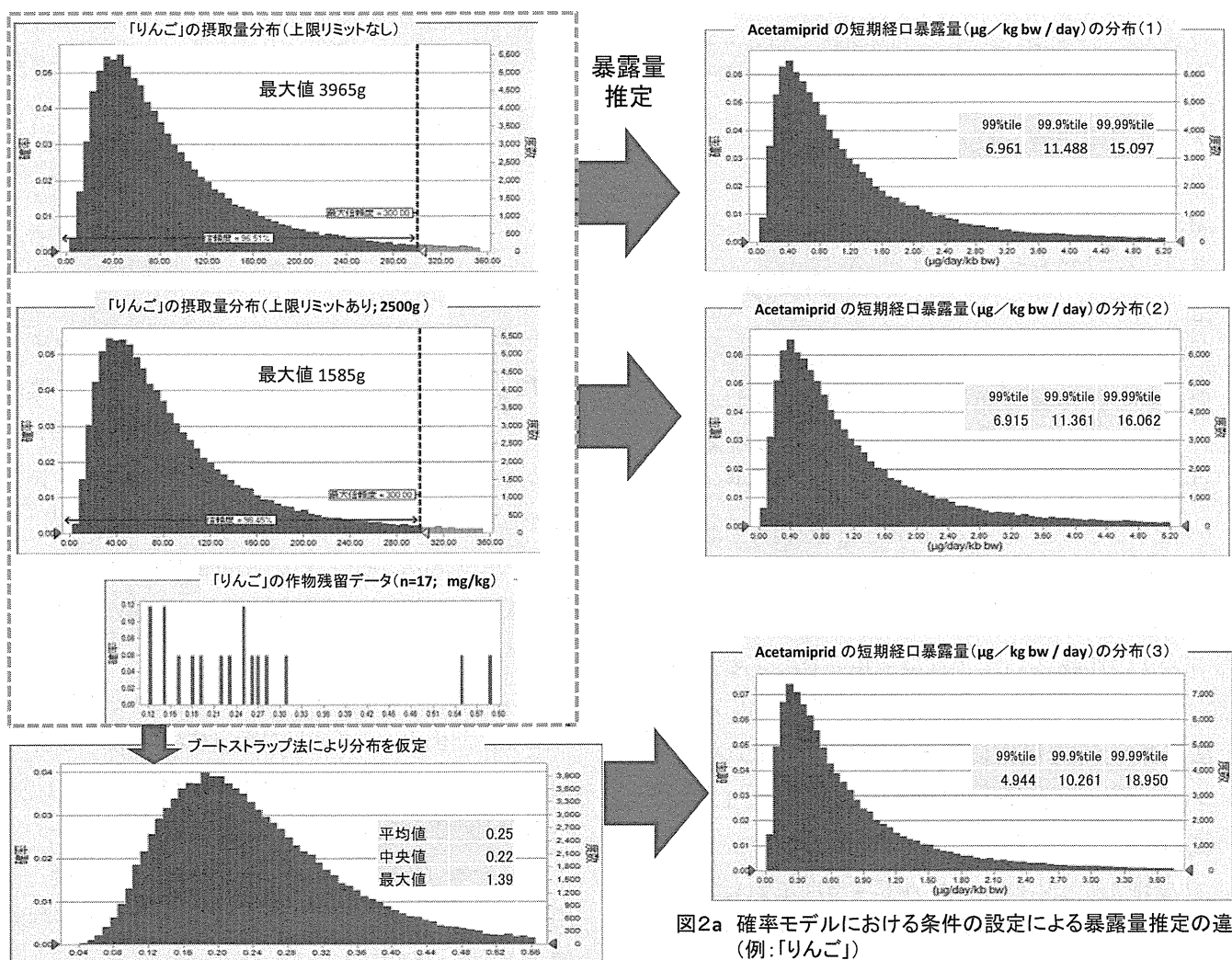
表6 1点推定法及び確率モデルによるAcetamidrid の短期経口暴露量の比較

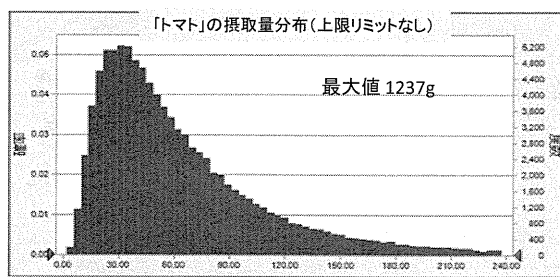
食品グループ	暴露量 試算の ケース*	97.5パー セントイ ル摂取 量(g)	ユニット 重量(g)	摂取者 体重 (kg)	作物残 留デー タ数	HR (mg/kg)	1点推 定法	リミットなし×分布仮定なし#			リミットあり×分布仮定なし#			リミットなし×ブートストラップ\$		
								99%tile	99.9%tile	99.99%tile	99%tile	99.9%tile	99.99%tile	99%tile	99.9%tile	99.99%tile
1 ねぎ(含リーキ)	2b	76.5	100	56.01	3	2	8.196	6.291	11.304	14.137	6.194	11.327	13.617			
2 玉ねぎ	2b	147.9	250	54.77	6	0.01	0.081	0.139	0.181	0.242	0.138	0.181	0.244			
3 メロン類(果実)	2b	300.9	1000	53.65	6	0.1	1.683	2.332	4.669	6.210	2.332	4.730	6.634			
4 はなやさい(ブロッコリー)	2b	107.1	230	54.85	9	0.22	1.289	0.948	1.980	3.143	0.949	1.908	3.000			
5 セロリー	2b	102.0	1400	55.09	8	0.78	4.332	3.236	6.910	12.162	3.245	7.213	11.303			
6 レタス	2b	107.1	500	55.95	8	1.9	10.912	7.914	16.461	29.902	7.891	16.020	28.127			
7 ほうれんそう	2b	178.5	300	54.92	8	2.5	24.377	24.729	43.042	57.318	24.506	43.177	56.897			
8 オレンジ(含ネーブルオレンジ)	2b	198.9	205	51.69	7	0.4	4.618	4.643	5.888	7.690	4.656	5.936	7.791			
9 レモン	2b	40.8	120	55.48	3	0.45	0.993	0.847	1.493	2.258	0.843	1.463	2.433			
10 リンゴ	2b	255.0	300	53.95	17	0.59	8.366	6.961	11.488	15.097	6.915	11.361	16.062	4.944	10.261	18.950
11 アーモンド	2a	30.6	1	50.71	6	0.02	0.013	0.008	0.012	0.016	0.008	0.012	0.017			
12 きゅうり(含ガーキン)	2a	158.1	110	55.40	6	0.09	0.614	0.548	0.788	1.181	0.548	0.808	1.154			
13 トマト	2a	219.3	200	55.48	18	0.1	1.116	0.867	1.324	1.951	0.862	1.291	1.796	1.508	3.398	7.345
13 トマト								(LOQ未満の場合、LOQ値×1/2を使用)*					1.764	4.504	9.806	
14 ししとうがらし	2a	66.3	5	58.39	3	0.14	0.183	0.165	0.299	0.475	0.162	0.298	0.511			
15 ピーマン	2a	76.5	40	55.45	8	0.09	0.254	0.145	0.208	0.315	0.145	0.210	0.279			
16 いちご	2a	198.9	10	53.25	10	0.24	0.987	0.460	0.843	1.357	0.457	0.830	1.319			
17 さくらんぼ	2a	127.5	7	51.90	8	0.88	2.399	1.898	3.762	6.979	1.863	3.822	7.614			
18 もも	2a	280.5	230	52.69	10	0.44	6.184	3.760	5.914	8.659	3.751	5.785	7.557			
19 西洋なし	2a	249.9	180	53.54	9	0.32	3.646	2.798	4.051	5.869	2.852	4.253	5.963			
20 ぶどう	2a	234.6	200	52.83	18	0.25	3.003	0.722	0.983	1.387	0.724	1.020	1.421	2.227	5.909	12.260
21 ブルーベリー	2a	81.6	1	55.98	6	0.62	0.926	0.906	1.705	3.077	0.917	1.784	2.929			

"リミットなし": 摂取量分布において、リミット値を設けない。"分布仮定なし": 作物残留データをそのまま使用。

\$ ブートストラップ: 利用可能な作物残留データがn>10の場合に、ブートストラップ法により理論分布をあてはめ、それを用いて暴露量を推定。

* ブートストラップ法において、LOQ未満の場合に、LOQ値×1/2を適用した場合も検討した。





暴露量
推定

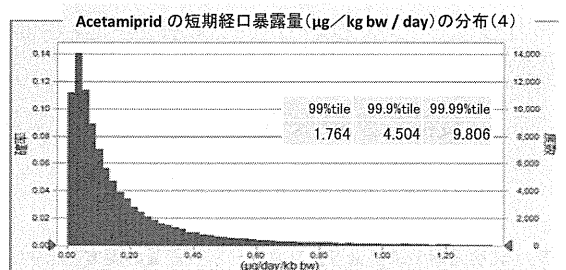
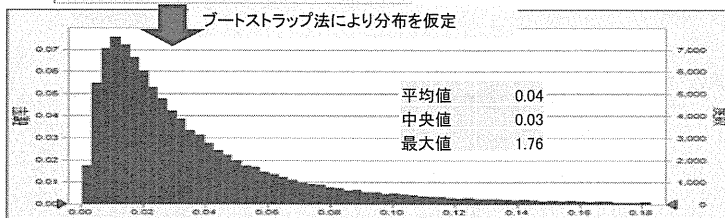
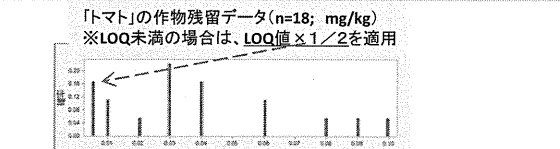
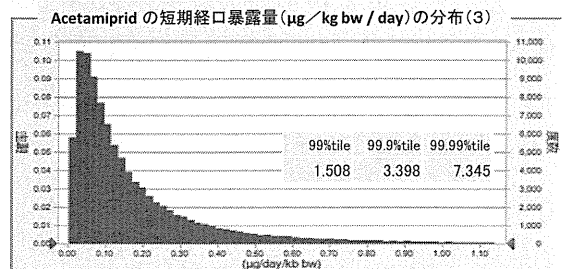
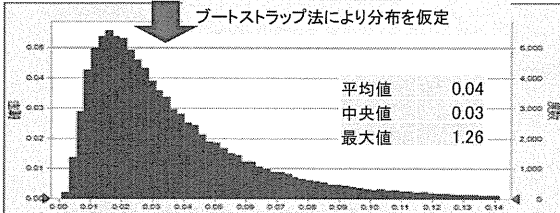
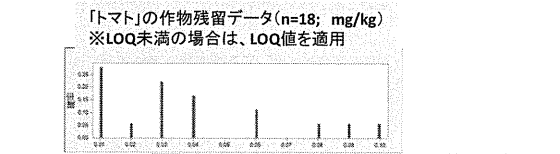
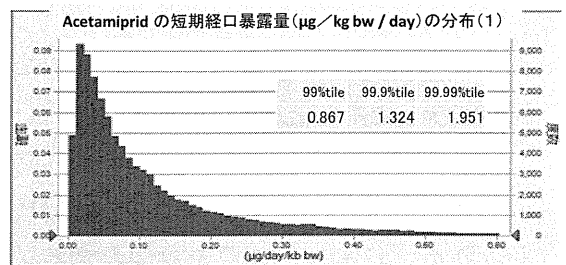


図2b 確率モデルにおける条件の設定による暴露量推定の違い (例:「トマト」)

これは、もともとの作物残留データの分布パターンに依存するもので、相対的に多くのデータが利用可能な今回の3農作物(n=17~18)においても、その分布型(データ数や精度等に依存)により最終的な暴露量推定値に大きな影響を及ぼすことが確かめられた。

LOQ 未満のデータの取り扱い方について、それらを n=18 のうち3個を含む「トマト」において、LOQ 値ではなく、LOQ 値×1/2を適用すると、ブートストラップ法による分布型が変化し、シミュレーションによる最大値が、LOQ 値を適用した場合には 1.26mg/kg、LOQ 値×1/2を適用した場合には 1.76mg/kg となった。最終的な暴露量の推定においても、99.9 パーセントイル値は、LOQ 値を適用した場合には 3.398 $\mu\text{g}/\text{kg bw}$ 、LOQ 値×1/2を適用した場合には 4.504 $\mu\text{g}/\text{kg bw}$ となった(図 2b)。

3) 乳幼児の食事摂取量を報告した論文における記述状況と活用可能性の検討²⁾

主要3誌の創刊号から2010年、及びデータベースでは1983～2010年に国内外において発表された、日本人乳幼児を対象とする栄養素等及び食品群別摂取量の両方あるいは何れか一方を定量的に報告している論文として、ハンドサーチから21件、医中誌から3件、MEDLINEから0件が該当した。また、今回の検索では抽出されなかったが、該当論文において引用されている論文から、今回の抽出条件に該当したもの1件を加え、25件の論文を抽出した。それらのうち、栄養素等及び食品群別摂取量の両方を記述した論文³⁻¹²⁾は10件(表7)、食品群別摂取量のみを記述した論文¹³⁻¹⁵⁾は3件(表8)であった。

その中で、国民健康・栄養調査において摂取量データを得ることの出来ない乳児を対象としたものは3件³⁻⁵⁾に過ぎなかった。詳細については、文献2)を参照のこと。

表7 乳幼児期の栄養素等及び食品群別摂取量の両方を記述した研究報告(1)

目的	離乳期の食生活の実態を把握し、適正な離乳の進め方、乳児期の栄養法等との関係を知る資料とすること。	対象児の食事の現状を把握し、その問題点を検討すること。	離乳期の栄養素等摂取状況について調査を行うこと。	幼児の栄養素摂取量を明らかにするとともに、保育所給食の栄養上の位置づけを考察すること。	就労等による母親の社会的状況の変化に着目し、保育所及び幼稚園児の栄養摂取状況について調査し、社会栄養学的検討を行うこと。	
調査地区	東京都4区	島根県松江市	埼玉県戸田市	岩手、鳥取及び和歌山県	愛知県名古屋	
観察年	1979年	1979年	1989～1990年	1954～1955年	1972年	
対象者 (人数)	1歳6カ月±2カ月児 (40名)	3カ月～17カ月児 (249名)	12カ月児 (311名)	保育所児 (60名)	保育所及び幼稚園児 (530名)	
対象者の詳細	・調査地区の一部の保健所 来所児 ・食事調査を除く、一般調査 のみの実施は427名	・台帳から抽出した742名 中、調査票が回収できた児	・1歳児健康相談来所者で 栄養調査のできた児	・6施設 6歳児	・3施設 4, 5歳児	
調査方法	手法*	食事記録法	食事記録法	食事記録法(秤量)	—	
	記録者	母親	母親	調査員	父母	
	日数	連続3日間	1日間	1日間	2日間	2日間(平日)
	精度管理に関する 記述	—	・目安で記入してあるものは 実測し、換算約束を作っ て数量を決定。	・記録の確認(フードモデ ル等を用い、対象者全員 に面接聞き取りを行い修 正)。	—	—
栄養素等摂取量 算出方法†	—	3	4	2	—	
結果の記述方法	表	表	表	表	表及び図(食品群)	
栄養素等摂取量の 記述項目‡	基本10項目(炭水化物除 く)・リン・ナイアシン	基本10項目・ビタミンD・ニコ チン酸	基本10項目・ナトリウム・飽和 脂肪酸・多価不飽和脂肪酸	基本10項目・リン・ナイアシン	基本10項目	
食品群別摂取量の 記述項目	穀類・いも 澱粉類・砂糖 甘 味料・菓子類・油脂類・種実 類・豆類・魚介類・種実類 類・卵類・乳類・野菜類・果実 類・きのこ類・藻類・嗜好飲料 類・調味料 香辛料類 (18 群)	乳類・穀類・いも類・卵類・魚 介類・肉類・大豆製品・野菜 (緑黄)・野菜(淡色)・果実 ・油脂類・砂糖類・菓子類・そ の他・番茶 (15群)	穀類・いも類・菓子・植物油・ 動物油・大豆製品・果物・緑 黄色野菜・その他の野菜・海 草きのこ・嗜好飲料・魚介類・ 肉類・卵・牛乳 乳製品・粉ミ ルク (16群)	穀類及び穀類製品・いも類・ 油脂類・種実類・動物性食品 ・豆及び豆製品・野菜及びそ の加工品・果実類・海藻 菌 茸・菓子類及び砂糖(10群:さ らに細目があり32項目で記 述)	穀類・菓子類・魚類・肉類・卵 類・野菜類・果実類 (7群)	
文献番号	3) 桜井ら	4) 西村ら	5) 寺島ら	6) 武藤ら	7) 棚橋ら	

表7 乳幼児期の栄養素等及び食品群別摂取量の両方を記述した研究報告(2)

目的	幼児の食事調査及び生活調査から、摂取熱量と消費熱量を算出し、1日の中の好ましい3食の配分について検討すること。	母親の就業状況、生活時間から、幼児の栄養摂取状況の検討を行うこと。	冬季と夏季の気温差の大きい厳寒地域に居住する幼児の栄養摂取状況を調査し、問題点を検討すること。	循環器疾患の一次予防に関する基礎資料を得るため、就学前小児の栄養摂取状況を把握し、脂肪摂取パターンについて明らかにすること。	幼児の日常の食事調査から亜鉛を含む栄養素等摂取量及び食品群別摂取量を算出し、亜鉛摂取の発育への影響や亜鉛摂取量を的に保つ上で考慮すべき点を明らかにすること。	
調査地区	福岡県北九州市	愛知県名古屋	北海道名寄市	埼玉県戸田市	新潟県	
観察年	1973年	1974年	1980年	1986年, 1987年	1998年	
対象者 (人数)	幼稚園児 (400名)	保育所児 (433名)	保育所児 (84名)	4歳6カ月児健診対象児 (274名)	幼稚園児 (30名)	
対象者の詳細	・2施設 5歳2カ幼児	・17施設 4, 5歳児	・2施設 4, 5歳児 ・解析対象56名(5日中3日間以上の有効データが得られた児)	・925名から無作為抽出 解析対象101名	・5-6歳児	
調査方法	手法*	食事記録法	—	食事記録法(目安量)	食事記録法(目安量)	食事記録法(秤量)
	記録者	母親	父母	保護者・保育所(給食分)	母親	母親
	日数	連続3日間(平日)	2日間(土日を除く)	5日間	1日間	連続3日間(日曜祝祭除く) ×2回=6日間
	精度管理に関する記述	・記録の不備な点があった場合は、個別面接によって確認。	—	・不明確な記録があった場合の直接聞き取り。 ・記入の注意書き(大きさ, 商品名, 価格等)を配布し, 詳細記載を依頼。 ・重量換算時, 地域によって重量の異なる食品は別途測定。	・対象者全員に面接聞き取り法を併用し, 記録内容を確認・修正。	—
栄養素等摂取量算出方法†	—	大型計算機名の記述のみ	3	4	5	
結果の記述方法	表	表	表	表	表	
栄養素等摂取量の記述項目‡	基本10項目	基本10項目	基本10項目・リン・ナイアシン・動物鉄	基本10項目・コレステロール・食塩相当量・飽和脂肪酸・多価不飽和脂肪酸	基本10項目・コレステロール・食塩相当量・飽和脂肪酸・多価不飽和脂肪酸・亜鉛	
食品群別摂取量の記述項目	米・めん・パン類・いも類・砂糖・菓子類・油脂類・大豆及び大豆製品・みそ類・その他の豆類・果実類・緑黄色野菜・淡色野菜・海藻類・調味嗜好品及び飲料・魚介類・獣鳥肉類・卵類・生乳・乳製品(19群)	穀類・いも類・豆類・菓子類・油脂類・魚介類・獣鳥肉類・卵類・乳類・野菜類・果実類(11群)	穀類・いも類・砂糖類・菓子類・油脂類・豆類・果実類・野菜類・きのこ類・藻類・嗜好飲料・味噌以外の調味料・魚介類・獣鳥肉類・乳類・卵類(16群:さらに細目が31項目で記述)	めし・穀類・芋類・豆類・果物・卵類・魚介類・肉類・大豆製品・乳製品・植物油・動物油・野菜類・茸海草・砂糖・菓子類・嗜好飲料・みそ(18群)	米類・その他穀類・いも類・砂糖類・菓子類・油脂類・種実類・豆類・魚介類・肉類・卵類・乳類・緑黄色野菜・その他の野菜・果実類・きのこ類・藻類・嗜好飲料・調味料(19群)	
文献番号	8)石松	9)棚橋ら	10)木村	11)熊谷ら	12)岡田ら	

表中の「—」は記述なし

* 用いられた手法が明確に把握できたものは()中に記した。

† 1:文献から使用した食品成分表の詳細が把握できない 2:改訂日本食品成分表 3:三訂(三訂補含む)日本食品標準成分表 4:四訂日本食品標準成分表 5:五訂日本食品標準成分表

‡ 基本10項目:エネルギー, たんぱく質, 脂質, 炭水化物(糖質), カルシウム, 鉄, レチノール当量(ビタミンA), ビタミンB₁, ビタミンB₂, ビタミンC (摂取比率に関する記述は除く)

表8 乳幼児期の食品群別摂取量のみを記述した研究報告

目的	核燃料再処理施設周辺住民の安全評価の妥当性を検証するための基礎データを得るため、青森県全域の乳幼児の食品摂取量を調査すること。	幼児の食物摂取量調査により、小児期のダイオキシン類への曝露状況を明らかにすること。	幼児の食事調査により、食品群別摂取量に基づいたダイオキシン類摂取量を推計すること。	
調査地区	青森県南部及び津軽地区	沖縄県O市(島嶼地域)	東京都	
観察年	1995年, 1996年	2000年	2004年	
対象者 (人数)	1歳及び4歳を中心とする乳幼児 (360名)	3歳児健康診査受診児 (37名)	幼稚園児 (27名)	
対象者の詳細	・1歳児グループ(平均1歳2カ月), 4歳児グループ(平均4歳1カ月)	・受診者108名中協力の得られた者		
調査方法	手法*	食事記録法	食事記録法(秤量)	食事記録法(秤量)
	記録者	対象世帯	保護者	—
	日数	3日間(祝休日含む)	2日間(土日を除く指定した3日間で2日)	2日間(指定した5日間で2日)
	精度管理に関する記述	—	・誤差1gのデジタル式秤を使用。 ・記入意欲を高めるための配慮(結果のフィードバックを事前に約束)。 ・記載内容に関する疑問は栄養士が電話で確認。	・不確実な点があった場合は、栄養士が個別に確認。
結果の記述方法	表	表	表	
食品群別摂取量の記述項目	海産物・農産物・日常のストック品・その他(4群:さらに細目があり、32項目で記述)	米 米加工品・芋 穀類 種子・砂糖 菓子・油脂・豆類・果実・有色野菜・その他の野菜 茸類 海草・嗜好品・魚介類・肉 卵・乳 乳製品・その他(13群)	米・雑穀 芋・砂糖 菓子類・油脂類・豆類 豆加工品・果実類・緑黄色野菜・その他の野菜 海藻きのこ・嗜好品・魚介類・肉類 卵・乳 乳製品・加工食品 (13群)	
文献番号	13)五代儀	14)佐藤ら	15)溝井ら	

表中の「—」は記述なし

* 用いられた手法が明確に把握できたものは()中に記した。

D. 考察

JMPR は、1990 年代後半に農薬の急性参照用量 (ARfD) の設定を開始し、すでに数多くの農薬に ARfD が設定されている。一方、わが国で ARfD が設定されているのは Methamidophos と Aceamiprid のみである。また、わが国においては、適切な作物残留データに乏しく、短期経口暴露量の評価が困難となっている。一方、各農作物の摂取量に関しては、幼児を含めてデータの整備が進んできており、地域差や季節差などについても検討が行われている¹⁾。

そのようなことから、本分担研究課題では、平成 22 年度までの検討結果を踏まえ、JMPR で急性参照用量が設定されており、わが国でも登録のある 8 農薬 (Bifenthrin, Cadusafos, Chlorpyrifos, Chlorpyrifos-methyl, Dimethoate, Ethylthiometon, Fenproximate, Fipronil) について、使用が承認されている農作物に由来する短期経口暴露量を 1 点推定法により試算した。その結果 Bifenthrin (260%; ブドウ, 他), Cadusafos (260%; ゴボウ), Dimethoate (170%; パイナップル), Ethylthiometon (550%; スイカ, 他), Fenproximate (180%; ブドウ, 他) において、%ARfD を超える短期暴露量が試算された (表 3)。その際、残留濃度として HR ではなく、より大きな値である MRL を使用したことから、過大な推計となっている可能性がある。さらに、ユニット重量については L または 2L を基本としていることや、可食部以外を含んでいる農作物もあり、これらのことは過大な推計につながるものである。一方、登録時に残留試験を 2 例しか要求していないわが国の現状からは、残留基準そのものが過小評価になっていることも否めない。

さらに、わが国で設定されている残留基準値が ARfD からみて適切であるかどうかを予測するために、JMPR における短期暴露評価において、暴露推定値が ARfD を越えた農薬/食品の組み合わせを附表にまとめた。残留濃度の基礎となる GAP や残留試験実施地の気候や栽培

条件等がわが国におけるものと異なる場合が多いため、わが国における実態を反映するものではない。

適切な作物残留データが十分ではない現状では、残留量の分布と摂取量の分布とを確率的に組み合わせ、短期経口暴露量の分布を理論的に求めることは出来ない。しかし、摂取量データについては、個々の農作物に関して十分な例数による分布等が明らかとなっていることから、JMPR において GAP に基づき適切なデータと認められているもののみを抽出して試算を行った。対象農薬は、Acetamiprid とした。

検討対象とした 21 農作物において、利用可能な作物残留データは n=3~18 であった。データ数が多い「りんご」「トマト」「ブドウ」については、観察された作物残留データを基にブートストラップ法で理論分布を仮定して、モンテカルロ法によるシミュレーションに用いた。その他の場合については、測定データ (分布) そのものをシミュレーションに用いた。このように、作物残留量に関わる基本的なデータに乏しいことから、モンテカルロ法を用いるメリットは限定されるが、摂取量については十分なデータが有り、短期経口暴露評価における重要な仮定である 1 日 (本来は 1 回) 摂取量とユニット重量 (1 個の果実や野菜の可食部重量) との関係性 (すなわち、ケース 2a か 2b ; 図 2) の確率を考慮に入れてシミュレーションを行うことは、暴露量試算の精密化につながると考えられる。

1 点推定法による値は、確率モデルによる暴露量分布のおおよそ 99~99.9 パーセントイルに分布していたが、農作物によって、それより小さいもの、大きいものもあった。それらの差異の最も大きな要因は、1 点推定法で用いる HR が分布全体のどの位置にあるかによるものと考えられる。また、各農作物の摂取者における摂取量分布について各分布型を確

認した上で、対数正規分布を理論分布として用いた。そのため、実際に観察された最大の摂取量よりもさらに大きな値が、シミュレーション上、出現する可能性もある。すなわち、分布の右側で過大な推計となる可能性がある。そこで、理論分布の上限値にリミットを設定して、リミットがある場合と無い場合とで、最終的な短期経口暴露量の分布がどの程度異なるのかを比較してみた。今回設定したリミット値は、観察された最大の摂取量よりも大きい値であるが、ヒト（日本人）が一つの農作物を1日にこれ以上は摂取しないであろうと予測した値として、仮に設定した（表2）。極めてまれなケースでは、それを上回る摂取があるかもしれない。結果的には、このリミットの有無によって、最終的な試算結果にはほとんど影響がなかった。すなわち、単純に対数正規分布による理論分布を用いても、推計が過大となることはなさそうである。

一方、「りんご」(n=17)、「トマト」(n=18)、「ブドウ」(n=18)については、観察された作物残留データを基に、ブートストラップ法で理論分布を仮定しての試算も併せて行った。比較的データ数の多いこれらの場合でも、観察された値の分布パターンにより理論分布のパラメータが大きく変わり、その結果、最終的な短期経口暴露量の分布にも大きな影響を与えることが確認された。

また、LOQ未満の測定値について、LOQ値ではなく、 $LOQ \times 1/2$ を適用することは、理論分布上の最大値をむしろ高めることになった。逆に言えば、最終的な暴露量の過小評価を回避するためには、LOQに等しい測定値と、LOQ未満の測定値とを区別（すなわち、LOQ未満の測定値には $LOQ \times 1/2$ を適用）することが望ましいと考えられる。

残留農薬を含めて、食品中の化学物質の暴露評価には、これまで国民栄養調査や、それに類する調査から得られた個々の食品摂取量

データが用いられてきた。そこでの最大の問題点の一つは、1歳未満の乳児の摂取量データが得られないことである。そこで、今回、1歳未満児を含めて、乳幼児における定量的な摂取量データがどの程度論文として刊行され、そこからどのような情報が利用可能かを調べた。その結果、乳児を対象としたものは3件のみであった。今後、より広く利用可能なデータを蓄積する必要があり、そのためには研究報告の推進、統合可能なデータ記述、基礎データを収集・統合して活用可能なシステムの構築が必要と考えられた。

E. 結論

JMPRが急性参照用量を勧告しており、国内で登録のある8農薬について、1点推定法による試算を行い、Bifenthrin (260%;ブドウ、他), Cadusafos (260%;ゴボウ), Dimethoate (170%;パイナップル), Ethylthiometon (550%;スイカ、他), Fenproximate (180%;ブドウ、他)において、%ARfDを超える短期暴露量が試算された。

確率モデルによる暴露量推定方法を検討するために、Acetamipridを例として、1点推定法との比較、理論分布の設定方法、LOQ未満の残留データの取り扱いを検討し、残留データを理論分布に適合させると、暴露量推定結果がかなり異なる場合があり、利用可能な作物残留データが暴露量試算に大きな影響を与えていた。

暴露評価の際に特に配慮が必要となる乳幼児における食品群別摂取量データについて、過去からの論文報告を系統的にレビューし、データの利用可能性を検討した。

以上の検討を踏まえ、平成24年度には、作物残留試験で必要となる例数の解析、残留基準値（案）についての妥当性の検討、確率モデルの適用方法の考察を進めていく予定である。

引用文献

1. 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) 食品中残留農薬等の汚染実態把握と急性暴露評価に関する研究(研究代表者 米谷民雄) 平成 22 年度総括・分担研究報告書 pp.23-43, 2011
2. 佐藤ななえ, 岩部万衣子, 吉池信男: 乳幼児の食事摂取量を報告した論文における記述状況と活用可能性の検討. 栄養学雑誌 70; 38-48, 2012
3. 桜井幸子, 金沢治子, 中山徳子, 他: 1 歳 6 カ月児の食生活調査, 小児保健研究, 41, 169-175(1982)
4. 西村輝子, 遠藤幸子: 松江市における生後 3 ヶ月から 17 ヶ月までの乳幼児の食事について(第 1 報)—栄養素摂取量および食品摂取量—, 小児保健研究, 43, 57-65(1984)
5. 寺島友明, 平岩幹男: 戸田市における 12 か月児の栄養素等摂取状況, 小児保健研究, 55, 395-402(1996)
6. 武藤静子, 星野幸一郎, 荒井 基, 他: 保育所幼児栄養調査(第 2 報)—栄養及び食餌摂取量—, 栄養と食糧, 9, 131-139(1956)
7. 棚橋昌子, 熊沢昭子: 幼児の食生活に関する社会栄養学的考察, 小児保健研究, 34, 17-25(1975)
8. 石松成子: 幼児の食形態に関する研究(第 3 報)—適正な三食配分—, 栄養学雑誌, 32, 39-45(1974)
9. 棚橋昌子, 牧野久子: 幼児の食生活に関する社会栄養学的考察—第 2 報 保育園児の生活状況からみた食物摂取—, 小児保健研究, 36, 31-36(1977)
10. 木村登茂: 名寄市における幼児の栄養素摂取について, 小児保健研究, 42, 509-515(1983)
11. 熊谷 修, 杉田信世, 飯島昌夫: 戸田市の就学前小児の栄養状況—脂肪摂取パターンについて—, 小児保健研究, 48, 615-619(1989)
12. 岡田玲子, 田辺直仁, 若井静子, 他: 幼児における日常食からの亜鉛摂取量と食品群別摂取状況

およびそれらの身体発育への影響, 日本公衆衛生雑誌, 51, 735-763(2004)

13. 五代儀貴: 青森県における乳幼児の食品摂取の実態, 保健物理, 39, 220-230(2004)
14. 佐藤祐子, 山内巖雄, 安達修一: 3 歳児における食物由来ダイオキシン類暴露に影響する食物摂取の特徴と摂取量の推計—島嶼地域の食事調査から—, 小児保健研究, 69, 14-22(2010)
15. 溝井美穂, 篠原暁子, 安達修一: 乳幼児の食事からのダイオキシン類摂取量の推計, 相模女子大学紀要, 69B, 17-23(2006)

F. 健康危険情報

この研究において健康危険情報に該当するものはなかった。

G. 研究発表

学会発表

なし

論文発表

- 1) 佐藤ななえ, 岩部万衣子, 吉池信男: 乳幼児の食事摂取量を報告した論文における記述状況と活用可能性の検討. 栄養学雑誌 70; 38-48, 2012

H. 知的所有権の取得状況

なし

附表 JMPRによる短期暴露評価において、推定摂取量がARfDを超えた農薬/農作物(2010 JMPRまで)
食品ごとに、ARfD比が高い順に記載

農薬名	ARfD (mg/kg bw)	食品名 (アルファベット順)	ARfD比 (%)	評価 年	備考(超過が 「Children up to 6 years」以外の場合ま たは特記事項)
phosmet	0.02	Apple	3506	2002	
oxamyl	0.009	Apple	830	2003	
methomyl	0.02	Apple	770	2001	
phosalone	0.02	Apple	592	1999	
folpet	0.1	Apple	493	1999	
acephate	0.1	Apple	390	2005	
tebufenozide	0.05	Apple	210	2001	
methamidophos	0.01	Apple	140	2003	
fenpyroximate	0.01	Apple	130	2004	
oxydemeton-methyl	0.002	Apple	130	2004	
fenamiphos	0.0008	Apple	127	1999	
phosalone	0.02	Apricot	154	1999	
carbaryl	0.2	Apricot	127	2002	
carbofuran	0.001	Banana	150	2009	(80% for general population)
fenamiphos	0.0008	Banana	251	1999	
aldicarb	0.003	Banana	108	2002	
parathion	0.01	Barley	400	2000	General Population
acephate	0.05	Beans except broad bean & soya bean (green pods & immature seeds)	130	2003	
phosmet	0.02	Blueberries	385	2002	
methomyl	0.02	Broccoli	1500	2001	
endosulfan	0.02	Broccoli	390	2006	
acephate	0.1	Broccoli	150	2005	
disulfoton	0.003	Broccoli	120	2006	
methamidophos	0.01	Broccoli	110	2003	
methomyl	0.02	Brussels sprouts	450	2001	
fenamiphos	0.0008	Cabbages, head	1625	1999	
methomyl	0.02	Cabbages, head	1200	2001	
dimethoate	0.020	Cabbages, head	760	2003	

農薬名	ARfD (mg/kg bw)	食品名 (アルファベット順)	ARfD 比 (%)	評価 年	備考(超過が 「Children up to 6 years」以外の場合ま たは特記事項)
tebufenozide	0.05	Cabbage	410	2001	
methamidophos	0.01	Cabbages, head	290	2003	
cyromazine	0.100	Cabbages, head	280	2007	
disulfoton	0.003	Cabbages, head	260	2006	
cyfluthrin	0.040	Cabbages, head	240	2007	
Cyhalothrin	0.02	Cabbages, head	160	2008	
indoxacarb	0.1	Cabbages, head	130	2005	
oxydemeton-methyl	0.002	Cabbages, head	120	2004	
ethephon	0.05	Cantaloupe	113	2002	
fenamiphos	0.003	Carrot	111	2002	
methomyl	0.02	Cauliflower	1700	2001	
disulfoton	0.003	Cauliflower (head)	380	2006	
acephate	0.1	Cauliflower	170	2005	
methamidophos	0.01	Cauliflower	120	2003	
endosulfan	0.02	Celery (stalk)	270	2006	
carbaryl	0.2	Cherries	133	2002	
phosalone	0.02	Cherries	133	1999	
endosulfan	0.02	Cherries	120	2006	
deltamethrin	0.05	Chinese cabbage	115	2002	
carbofuran	0.001	Cucumber	830	2008	
oxamyl	0.009	Cucumber	170	2003	
flusilazole	0.020	Edible offal (mammalian)	100	2007	
triadimefon/triadimenol	0.080	Grape (excl wine)	220	2007	
oxamyl	0.009	Grapefruit	790	2003	
phosmet	0.02	Grapefruit	149	2002	
methomyl	0.02	Grapes	1600	2001	
carbaryl	0.2	Grapes	1136	2002	
fenpyroximate	0.01	Grapes	324	1999	
folpet	0.1	Grapes	285	1999	
fenamiphos	0.003	Grapes	207	2002	
tebufenozide	0.05	Grapes	190	2001	
dinocap	0.008	Grapes	150	2000	Women of Child-bearing Age
fenpyroximate	0.01	Grapes (fresh, dried,	310	2004	

農薬名	ARfD (mg/kg bw)	食品名 (アルファベット順)	ARfD 比 (%)	評価 年	備考(超過が 「Children up to 6 years」以外の場合ま たは特記事項)
		excluding wine)			
oxydemeton-methyl	0.002	Grapes (fresh, wine, dried)	220	2004	
methomyl	0.02	Kale	1100	2001	
tebufenozide	0.05	Kale	140	2001	
oxamyl	0.009	Lemon	330	2003	
methomyl	0.02	Lettuce, head	3000	2001	
disulfoton	0.003	Lettuce, head	570	2006	
tebufenozide	0.05	Lettuce, head	400	2001	
dimethoate	0.020	Lettuce, head	200	2003	
folpet	0.1	Lettuce, Head	192	1999	
methomyl	0.02	Lettuce, leaf	3800	2001	
tebufenozide	0.05	Lettuce, leaf	180	2001	
indoxacarb	0.1	Lettuce, leaf	150	2009	(60% for general population)
fenitrothion	0.04	Maize (fresh, flour, oil)	160	2004	
oxamyl	0.009	Mandarin	840	2003	
carbofuran	0.001	Mandarin	190	2008	(90% for general population)
acephate	0.1	Mandarin	160	2005	
carbofuran	0.001	Melons, except Water melon	700	2008	
fenamiphos	0.0008	Melons	460	1999	
oxamyl	0.009	Melons, except watermelones	320	2003	
folpet	0.1	Melons, except Water melon	163	1999	
carbofuran	0.001	Milks	430	2008	
prochloraz	0.1	Mushroom	150	2004	
phosmet	0.02	Nectarine	2160	2002	
phosalone	0.02	Nectarine	390	1999	
acephate	0.1	Nectarine	130	2005	
phosmett	0.2	Nectarine	100	2007	
methomyl	0.02	Orange	100	2001	

農薬名	ARfD (mg/kg bw)	食品名 (アルファベット順)	ARfD 比 (%)	評価 年	備考(超過が 「Children up to 6 years」以外の場合ま たは特記事項)
oxamyl	0.009	Oranges, sweet, sour (incl. Orange-like hybrids)	1050	2003	
carbofuran	0.001	Orange, sweet, sour (including orange-like hybrids)	290	2008	(290% for general population)
phosmet	0.02	Oranges, sweet	165	2002	
oxydemeton-methyl	0.002	Orange, sweet, sour (including orange-like hybrids)	120	2004	
carbaryl	0.2	Peach	169	2002	
acephate	0.1	Peach	130	2005	
phosalone	0.02	Peaches	317	1999	
phosmet	0.02	Pear	3013	2002	
chlormequat	0.05	Pear	400	2003	
acephate	0.1	Pear	210	2005	
phosalone	0.02	Pears	582	1999	
tebufenozide	0.05	Pears	180	2001	
oxamyl	0.009	Peppers	1056	2002	
fenamiphos	0.003	Peppers	258	2002	
ethephon	0.05	Peppers	106	2002	
acephate	0.05	Peppers, chili	110	2003	
oxamyl	0.009	Peppers, sweet (incl. pim(i)ento)	450	2003	
acephate	0.1	Peppers, sweet (incl. pim(i)ento)	190	2005	
methamidophos	0.01	Peppers, sweet (incl. pim(i)ento)	150	2003	
dimethoate	0.020	Peppers, sweet (incl. pim(i)ento)	140	2003	
propineb	0.1	Peppers, sweet (including pim(i)ento)	120	2004	
fenamiphos	0.003	Pineapple	318	2002	
ethephon	0.05	Pineapple	132	2002	

農薬名	ARfD (mg/kg bw)	食品名 (アルファベット順)	ARfD 比 (%)	評価 年	備考(超過が 「Children up to 6 years」以外の場合ま たは特記事項)
carbaryl	0.2	Plums	137	2002	
chlorpropham	0.03	Potato	2680	2003	
aldicarb	0.003	Potato	560	2001	
carbofuran	0.001	Potato	390	2008	
carbofuran	0.003	Potato	180	2009	French fries (70% for general population)
phorate	0.003	Potato	120	2005	皮付きのまま、電子 レンジで加工
chlorpropham	0.03	Potato, cooked	890	2003	
aldicarb	0.003	Potatoes, microwaved	400	2001	
fenitrothion	0.04	Rice bran, unprocessed	100	2004	
triazophos	0.001	Rice, husked	280	2010	
fenitrothion	0.04	Rice, husked	240	2003	
triazophos	0.001	Soya bean (immature)	230	2007	
methomyl	0.02	Spinach	7200	2001	
tebufenozide	0.05	Spinach	1220	2001	
deltamethrin	0.05	Spinach	130	2002	
cyromazine	0.100	Spinach (bunch)	390	2007	
methoxyfenozide	0.90	Spinach (bunch)	310	2003	
carbofuran	0.001	Squash, summer	810	2008	
bifenthrin	0.001	Strawberry	430	2010	
methomyl	0.02	Sweet corn	420	2001	
carbofuran	0.001	Sweet corn (corn-on-the cob)	280	2008	
fenamiphos	0.0008	Tomato	1861	1999	
oxamyl	0.009	Tomato	658	2002	
fenamiphos	0.003	Tomato	598	2002	
ethephon	0.05	Tomato	203	2002	
methomyl	0.02	Tomato	190	2001	
folpet	0.1	Tomato	140	1999	
endosulfan	0.02	Tomato	110	2006	
methamidophos	0.01	Tomato (fresh, juice, paste, peeled)	410	2003	
oxamyl	0.009	Tomato (fresh, juice,	300	2003	

農薬名	ARfD (mg/kg bw)	食品名 (アルファベット順)	ARfD 比 (%)	評価 年	備考(超過が 「Children up to 6 years」以外の場合ま たは特記事項)
		paste, peeled)			
fenamiphos	0.003	Watermelon	258	2002	
methomyl	0.02	Watermelon	140	2001	
fenitrothion	0.040	Wheat bran, unprocessed	110	2007	
fenitrothion	0.04	Wholemeal bread	120	2004	

II. 分担研究報告書

2. 食品中残留農薬の汚染実態把握に関する研究

分担研究者 米谷 民雄

厚生労働科学研究費補助金（食品の安全確保推進研究事業）
平成23年度分担研究報告書

食品中残留農薬の汚染実態把握に関する研究

分担研究者 米谷民雄 静岡県立大学食品栄養科学部 特任教授

研究協力者 近藤貴英、蕪木康郎、柴田雅久、黒川千恵子

（さいたま市健康科学研究センター）

中村順行、小泉 豊、外側正之、小澤朗人、内山 徹

（静岡県農林技術研究所茶業研究センター）

増田修一

（静岡県立大学大学院生活健康科学研究科）

研究要旨

残留農薬の摂取の観点から重要と考えられる食品や、加工による農薬の消長が考えられる食品を対象として、個別食品での残留農薬の把握を目的とした。平成23年度は、①国内産および輸入柑橘類の分析（卸売市場品）、②平成22年末に農産物直売所品で残留農薬問題が浮上したため、「道の駅」等で購入した野菜・果実の分析（直売所品）、③茶の加工工程による農薬の消長の研究を実施した。

①卸売市場品の残留農薬実態調査では、43試料中35試料から68農薬が検出され、基準値を超えた試料はなく、ADIと摂取量に基づく問題のないレベルであった。1試料あたりの検出農薬数において、国内産と国外産で地域による差が認められた。また、柑橘類の病害虫の防除に有効なメチダチオンを中心とする有機リン系殺虫剤が、検出された農薬の中で約4割を占めていた。

②直売所品の調査では、7品目について異なる3産地の製品を等量混合した試料について分析したが、いずれの品目も農薬の残留レベルは低く、最高値の「かぼす」中のメチダチオンでも基準値の約1/9であった。柑橘類でメチダチオンが複数作物から検出され、果樹によく使用されていることが推測された。すでに厚生労働省から指摘されているように、柑橘類のLC-MS/MSによる分析で回収率が低い農薬が比較的多く、イオン化阻害が考えられた。

③農薬の消長試験では、原料の生茶葉から製品となる加工茶葉、さらに茶浸出液を用いて飲用に至るまでの過程で、加熱、発酵等の加工工程が入ることで農薬は減少していき、飲用の状態ではほとんど農薬の移行が認められなかった。また、加工条件による農薬の消長は、発酵時間や加熱時間が長いほど、茶葉への熱伝導率が高いほど、農薬の減少率が高かった。

A. 研究目的

農薬等のポジティブリスト制度の導入により、基準値が設定された農薬等の数が大幅に増加し、800品目以上に達している。また、基準が設定されていないものには、一律基準

0.01 ppmが適用される。

農薬の安全性を確保するために厚生労働省はマーケットバスケット法を用いて摂取量調査を行なっている。この方法では各食品群内で多くの食品を混合した試料を調製するため、

分析数が少なく効率的ではあるが、ほとんどの農薬ではいずれの食品群からも農薬は検出されない。そのため、便宜的に検出限界の20%を摂取量として加算しており、摂取量の実態は不明である。また、特定の食品を多食する人などの調査には適さず、この目的では個別分析の方が有効である。

そこで本研究では、残留農薬への急性暴露の観点から重要と考えられる食品や、食品加工による農薬の消長が考えられる加工食品を対象として、個別食品での残留実態を調査することにした。平成23年度は、①国内産および輸入柑橘類の分析（卸売市場品）、②平成22年末に農産物直売所品で残留農薬問題が浮上したため、「道の駅」等で購入した野菜・果実の分析（直売所品）、③茶の加工工程による農薬の消長の研究を実施した。

以上の分析により、一部分の食品の分析ではあるが、具体的な数値をもとに安全性を議論することができると考えられる。

①国内産および輸入柑橘類の分析（卸売市場品）

①-B. 研究方法

平成22年度の調査では、1試料のみのデータであるが、レモンから7農薬検出された。これは分析した農産物1試料あたりの平均農薬検出数（1.6農薬）の4倍以上であったが、柑橘類に発生する病害虫が非常に多いため¹⁾、他の農産物より使用農薬数が多かったものと考えられた。

よって、平成23年度は、複数の農薬暴露による相互作用が考えられる作物として、柑橘類43作物を対象とした。さいたま市内の市場を流通する国内産および輸入柑橘類を購入した。試料は、1生産者1試料の個別試料とし、表1のとおり43試料を分析した。

調査試料の購入と分析は、さいたま市健康科学研究センターで実施した。チアベンダゾール、オルトフェニルフェノール、イマザリル、ジフェニルおよびフルジオキソニルについては、近藤らの試験法²⁾、それ以外の農薬については、厚生労働省通知の一斉試験法に準じた方法（食品に残留する農薬、飼料添加

物又は動物用医薬品の成分である物質の試験法）³⁾により191成分の分析を実施した。定量限界は0.01ppmとし、分析値は基準値とは関係なく、有効数字2桁まで求めた。

分析項目191成分のリストを表2に、分析法の分析フローを図1-1、2に、機器の分析条件を表3-1~3に示した。

①-C. 研究結果

みかんは外果皮を除去したもの、それ以外は果実全体を検査部位とした。調製した試料をGC/MS (MS) およびLC/MS/MSにより分析し、検出される農薬の種類と数、検出量を調べた。表6~9に分析結果を示す。

分析した43試料中35試料から68農薬が検出された。1試料あたりの検出数は1.6農薬であり、最多で5農薬検出された試料が1試料あった。一方で、1つも農薬の検出されなかった試料が8試料あった（表6）。

生産地を国内産と国外産（輸入）で区分すると、1試料あたりの検出数は、国内産で1.5農薬、国外産で2.8農薬であった（表6）。

柑橘類を分類で区分すると、1試料あたりの検出数は、最多がグレープフルーツ類の3.3農薬で、次いで香酸柑橘類、オレンジ類の2.3農薬、タンゴール類、きんかん類の1.5農薬と続き、最少がみかん類の0.1農薬であった（表7）。

検出量の範囲は0.01~2.8ppmで、検出量が0.01~0.1ppmの農薬は38農薬、0.1~1.0ppmの農薬は25農薬、1.0ppm以上検出された農薬は5農薬であったが、基準値を超える量の農薬は検出されなかった（表6）。

農薬の成分別で見ると、検出された農薬の種類は17種であり、最も検出された農薬は、メチダチオンで21試料から検出された。次いで、9試料から検出されたチアベンダゾールおよびイマザリル、6試料から検出されたクレソキシムメチル、3試料から検出されたクロルピリホス、ピリダベン、オルトフェニルフェノールおよびイミダクロプリド、2試料から検出されたクロチアニジンおよびフェンプロパトリン、他の7種は、1試料からの検出であった（表8）。

農薬の用途別で見ると、検出された 68 農薬のうち、約 6 割 (57.4%、39 農薬) が殺虫剤で、約 3 割 (32.4%、22 農薬) が防かび剤で、他はすべて殺菌剤であった (10.3%、7 農薬、表 8)。

農薬の系統別で見ると、検出された農薬の種類は 11 種であり、最も検出された農薬は、有機リン系で 26 試料から検出され、検出された全農薬の約 4 割 (38.2%) を占めていた。次いで、9 試料から検出されたベンズイミダゾール系およびイミダゾール系 (13.2%)、6 試料から検出されたネオニコチノイド系およびストロビルリン系 (8.8%)、5 試料から検出されたその他の系統 (7.4%)、3 試料から検出されたジチオカーバメート系 (4.4%)、2 試料から検出されたフェニルピロール系およびピレスロイド系であった (表 9)。

①-D. 考察

今回、試料の調製において、複数生産者の等量混合試料とせず、1 生産者 1 試料の個別試料を用いた。混合試料は個別試料と比較して、各生産者の検出農薬を平均化させ、1 地域 (都道府県単位) としての農薬残留実態を把握することができる。しかし、検出量も 1/3 に平均化されるため、定量限界を一律基準 (0.01ppm) に設定してしまうと、検出されない農薬が出てくる可能性がある。平成 22 年度の調査では、地域間による農薬検出数の差は認められなかったこと、柑橘類は生産地が限定されることから、個別試料による調査を選択した。

今回の分析結果では、1 試料あたり 1.6 種の農薬が検出された。総検査項目あたりの検出率を計算すると、検出農薬数/総検査数(検体数×項目数)×100 の計算式から 0.8% となった。

生産地別で見ると、国内産では 1 試料あたり 1.5 種、国外産では 2.8 種の農薬が検出され、地域間による有意差 ($p < 0.05$) が認められた。これは、輸送時の防かびを目的として、チアベンダゾール、イマザリル等がよく使用されているためと考えられた。

分類別で見ると、1 試料あたりの農薬検出

数がみかん類のみ 0.1 農薬と少なかった。これは、他の柑橘類が果皮を含んだものを試料としたのに対し、みかん類は果肉のみを試料としたものがほとんどであったためと思われる。

今回検出された農薬に、食品分類からの基準値を適用させると、基準値を超えたものはなく、GAP (Good Agricultural Practice、農業生産工程管理) に従って適正に使用されていると考えられた。また、農薬の ADI と農産物の摂取量から、問題のないレベルであった。

農薬別で見ると、メチダチオンなどの有機リン系殺虫剤が 26 試料から検出された。これは検出された全農薬の約 4 割 (38.4%) を占めているが、メチダチオンは、柑橘類の栽培で問題となっているカイガラムシ等の病害虫に幅広い防除効果を示す農薬であり、これが多用されたものと思われる。次いで全体の約 3 割 (26.4%) を占めたベンズイミダゾール系およびイミダゾール系殺菌剤は、輸入柑橘類に防かび剤としてチアベンダゾールおよびイマザリルが使用されたものであり、全体の約 2 割 (17.6%) を占めたネオニコチノイド系殺虫剤とストロビルリン系殺菌剤は、イミダクロプリドやクレソキシムメチル等、生産量が増加している新世代の農薬が使用されたものであった。

①-E. 結論

今回の農産物の個別分析では、国内産および輸入柑橘類を対象としたが、43 試料中 35 試料から 68 農薬が検出され、検出量の範囲は 0.01~2.8ppm であった。1.0ppm 以上検出されたものが 5 農薬あったが、基準値を超えたものはなく、ADI と摂取量に基づく問題のないレベルであった。

1 試料あたりの検出された農薬数は 1.6 農薬であった。生産地別では国内産が 1.5 農薬、国外産が 2.8 農薬であり、地域間による有意差が認められた。

また、農薬別で見ると、有機リン系殺虫剤のメチダチオンとベンズイミダゾール系殺菌剤のチアベンダゾールおよびイミダゾール系殺菌剤イマザリルの検出頻度が高かった。メ

チダチオンは柑橘類の病害虫に有効な防除効果を示す農薬であり、一方、チアベンダゾールおよびイマザリルは輸入柑橘類に防かび剤として使用される農薬であり、使用実態と一致していた。

近年、複数の摂取ルートや複数の農薬暴露による相互作用を考慮した考え方も議論されている。今回の分析では、1 試料あたりの検出された農薬数は 1.6 農薬であったが、農薬の使用実態も年々変化してきており、今後も継続して残留農薬の汚染実態把握を行い、農産物別の検出農薬データを蓄積していく必要があると考えられた。

②「道の駅」等で購入した野菜・果実の分析 (直売所品)

②-B. 研究方法

7 種の野菜・果実につき、それぞれ 3 箇所の直売所で購入し、それぞれ 3 製品を等量混合して分析試料とした。購入した製品と直売所記号、産地を表 14 に示す。

各分析試料につき、GC/MS および LC/MS により、残留農薬の一斉分析を行った。製品の購入と分析は、(株)住化分析センターに委託して実施した。同センターでは、厚生労働省が通知したポジティブリスト制度のための 3 つの一斉試験法（食品に残留する農薬、飼料添加物又は動物用医薬品の成分である物質の試験法）³⁾ に準じた方法で分析を実施している。具体的には、GC/MS による農薬等の一斉試験法（農産物）をもとに 193 成分、LC/MS による農薬等の一斉試験法 I（農産物）をもとに 185 成分、合計 378 成分の分析を実施している。表 15 に 378 成分のリストを示す。また、分析フローを図 5 に示す。

GC/MS と LC/MS(/MS) の測定条件を以下に記す。

GC/MS 測定条件：カラム；DB-5MS 0.25 mm φ × 30 m 0.25 mm 膜圧 (J&W 社製)、キャリアガス；He、注入量；2.0 μL。

LC/MS/MS 測定条件：カラム；AQUITY UPLC™ BEH C₁₈ (1.7 μM) 2.1 x 10 mm (Waters 社製)、移動層；Solvent A: 5 mM ammonium acetate Solvent B: MeOH、注入量；10 μL。

検出された農薬の確認は、以下の方法で行った。

<GC/MS 測定の場合>

検出されたピークのスペクトルを確認し、ライブラリもしくは標準品測定のスぺクトルと比較、または GC-MS/MS を測定して、確認した。

<LC-MS/MS の場合>

測定イオン数を増やして（2 イオン→5 イオン）再測定し、標準品測定結果と比較して確認した。

なお、分析委託先では定量限界を 0.01 ppm と設定していたが、それ未満で検出された農薬も参考とするため、試料と標準品につき定量イオンと確認イオンのピーク面積比を算出し、それぞれの比の相対値が 0.7~1.3 の範囲にあれば trace 量検出されたとして、小数点以下 4 桁目で四捨五入して値を求めた（定量限界の 1/10 以上検出されるものに限った）。ただし、農薬を検出したことを確実にするためには、別途、個別試験により確認することが必要である。

②-C. 研究結果

各食品につき異なる 3 産地の製品を直売所で購入し、それらを等量混合した試料について、GC-MS および LC-MS/MS により残留農薬の一斉分析を実施した。定量された農薬を表 16 に、trace として検出された農薬を表 17 に示す。

定量された残留農薬は、いずれも基準値以下であった。最高値は「かぼす」における「メチダチオン」の 0.54 ppm であり、残留基準値の約 1/9 であった。検出された他の農薬は、いずれも残留基準値の約 1/30~1/100 のレベルであった。

なお、今回の分析では、特に柑橘類の LC-MS/MS による分析で、測定不能（低回収率）の農薬が多かった。総分析項目数は 2646（検体数×項目数=7×378）で、そのうち 61 が測定不能であった。内訳は、ほうれんそう 7、トマト 7、きゅうり 4、ゆず 11、かぼす 10、みかん（果肉）3、レモン 19 であった。柑橘類で相対的に多いことから、外果皮中に存在