

2012J4005A

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

# 食品中残留農薬等の急性暴露評価 及び汚染実態把握に関する研究

平成24年度 総括・分担研究報告書

研究代表者 静岡県立大学食品栄養科学部 米谷 民雄

平成25(2013)年3月

# 目 次

## I. 総括研究報告書

- 食品中残留農薬等の急性暴露評価及び汚染実態把握に関する研究 …………… 1  
米谷 民雄

## II. 分担研究報告書

1. 食品中残留農薬の短期暴露評価とデータベースの整備に関する研究 …………… 11  
吉池 信男
2. 食品中残留農薬の汚染実態把握に関する研究 …………… 25  
米谷 民雄

- III. 研究成果の刊行に関する一覧表 …………… 63

## I. 総括研究報告書

食品中残留農薬等の急性暴露評価及び汚染実態把握に関する研究

研究代表者 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24年度総括研究報告書

食品中残留農薬等の急性暴露評価及び汚染実態把握に関する研究

研究代表者 米谷民雄 静岡県立大学食品栄養科学部 特任教授

研究要旨

I. 食品中残留農薬の急性(短期)暴露評価とデータベースの整備に関する研究

JMPRでは、多くの農薬に急性参照用量(ARfD)が設定(設定の原則も確立)されているが、わが国での設定は2農薬のみである。また、適切な作物残留試験データに乏しく、暴露評価が困難となっている。そこで本研究では、以下のことを目的とした。①JMPRでARfDが設定され、わが国で登録のある農薬を対象に、短期経口暴露量の試算を行う。②暴露量試算の際に用いる確率モデルについて基礎的な検討を行う。

平成24年度は、特に以下の点について検討した。

1)平成23年度の検討を進め、確率モデルの適用方法、特に作物残留試験に必要な例数について検討した。その結果、例数としては8例以上が望ましいが、最低6例が必要と考えられた。

2)確率モデルによる暴露量推定を容易に行うために、自動計算可能なツール(MS-Excelシート)を作成した。また、必要な摂取量のパラメータ等を整備した。その際、小児及び季節変動並びに地域差が確認出来るようなデータ構造とした。これを用いて、ARfDに対して短期経口暴露量が高いと予想されたBifenthrin、Difenoconazole、Pyraclostrobinについて試算を行った。

II. 食品中残留農薬の汚染実態把握に関する研究

残留農薬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24年度は、1)検出濃度の季節変動を調査するために通年野菜の分析(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)茶の加工工程におけ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、71試料中43試料から67農薬が検出され、検出量の範囲は0.005~0.84ppmであった。検出された農薬はすべて殺虫剤および殺菌剤であり、葉菜類と果菜類で検出割合が異なった。基準値を超えた試料はなく、農薬のADIと農産物の摂取量から見ると、問題のないレベルであった。1検体あたりの検出農薬数が約1農薬であるため、検出濃度の季節変動を見るだけのデータ数は得られなかった。

2)直売所品の調査は関西地区で実施した。8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「小松菜」中のイミダクロプリドでも0.03ppmであった。

3)食品加工による農薬の消長試験では、原料である生茶葉から製品に加工する段階で、各農薬の減衰が認められた。また、浸出液への農薬の移行は水溶性の違いにより有意差が認められ、水溶性の高い農薬ほど移行率が高かった。しかし、粒度の違いによる有意差は認められなかった。また、保存による農薬の消長は、保存期間が長くなるほど、農薬の減衰量が多くなった。

分担研究者

吉池信男（青森県立保健大学健康科学部）

研究協力者

山田友紀子（農林水産省大臣官房技術総括審議官）

近藤貴英（さいたま市健康科学研究センター）

柴田雅久（同上）

黒川千恵子（同上）

中村順行（静岡県農林技術研究所茶業研究センター）

小泉 豊（同上）

外側正之（同上）

小澤朗人（同上）

内山 徹（同上）

増田修一（静岡県立大学大学院生活健康科学研究科）

## A. 研究目的

### I. 食品中残留農薬の急性(短期)暴露評価とデータベースの整備に関する研究

食品中の残留農薬の急性健康影響に関してリスク評価を行うことは、食品安全行政上、近年重要な課題となってきた。Joint FAO/WHO Meeting on Pesticide Residues (JMPR)や欧米、豪州で急性参照用量(ARfD)が設定(設定の原則も確立)されている。わが国でも登録されている農薬のうち、海外で基準値が多くの食品に設定されている農薬については、急性参照用量からみたそれらの値の妥当性を検討し、さらに当該農薬の短期経口暴露量の試算を行うことが必要である。そこで平成24年度は、短期経口暴露量試算として、従来の1点推定法による試算に加えて、確率モデルを用いて試算を行うためのデータの整備と諸条件の検討、並びに試算のためのツールを作成することを目的とした。

### II. 食品中残留農薬の汚染実態把握に関する研究

農薬等のポジティブリスト制の導入により、基準値が設定された農薬等の数が大幅に増加し、820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0.01ppm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24年度は、1)検出濃度の季節変動を調査するために通年野菜の分析(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。

## B. 研究方法

### I. 食品中残留農薬の急性(短期)暴露評価とデータベースの整備に関する研究

#### 1) 確率モデルによる短期経口暴露量の推定方法の検討

昨年度に引き続き、Acetamipridを例として、検討を行った。JMPRの資料から、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、試算に用いた。利用可能な作物残留試験データのn数がもっとも多い「トマト」を対象とした。n=18の標本から、無作為にn=8, 6, 4, 2のサブセットを抽出した(各100標本ずつ)。シミュレーションには、Crystal Ball(Oracle社)を用い、モンテカルロ法を適用した。n=8, 6, 4, 2の各シナリオに関して、100標本のシミュレーション結果として、99.9パーセンタイル値(平成23年度の検討から、1点推定法による値と比較的近くなることが確かめられた)を求め、その値の平均値、中央値並びに変動係数を比較した。

#### 2) 確率モデルによる短期経口暴露量の試算ツールの作成

JMPR によって提示されている短期経口暴露量推定法の考え方を、確率モデルに当てはめることにした。シミュレーションの条件は、以下の通りとした。摂取量データについては、摂取者における1日当たりの摂取量(g/day)の分布を対数正規分布と見なした。作物残留データについては、測定データをそのままモデルに加えた。試算に用いる基礎データとしては、n=40,394(1歳以上)、n=1,609(1~6歳)の別に、シミュレーションに必要な摂取量のパラメータをデータシートに格納し、さらに、春夏秋冬の4つの季節の12日間の摂取量データが全てそろっている2,712名のデータ(延べ32,544人・日)及び、「東日本」(n=20,513)及び「西日本」(n=19,876)の別にパラメータを追加した。汎用性及び操作性を考え、基本的な作業(データの整理・登録)はMS-Excel 2010(Windows版)で行うこととした。モンテカルロシミュレーションに関しては、アドインマクロであるCrystal Ball(Oracle社)を用いた。

## II. 食品中残留農薬の汚染実態把握に関する研究

### 1) 検出濃度の季節変動を調査するための通年野菜の分析(卸売市場品)

平成24年度は、通年流通される通年野菜を対象とした。さいたま市内の卸売市場を流通するハウレンソウ、コマツナおよびキュウリを対象とし、試料は1生産者1試料の個別試料とし、71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。調査は5月(春季)、6月(雨季)、8月(夏季)、10月(秋季)、12月(冬季)に1回ずつ実施し、1回の調査につき各作物5試料(購入不能な回を除く)を分析した。試験法は、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)<sup>1)</sup>により186成分の残留農薬分析を実施した。定量限界は0.005 ppm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。

### 2) 「道の駅」等で購入した野菜・果実の分析(直売所品)

8種の野菜・果実につき、それぞれ3箇所の直売所(関西地区)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。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一斉試験法<sup>1)</sup>に準じたGC/MS法により193成分、LC/MS法により185成分、合計378成分の分析を実施している。なお、定量限界を0.01 ppmと設定しているが、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値を求めた(定量限界の1/10以上検出されるものに限る)。当然、農薬検出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。

### 3) 茶の加工工程による農薬の消長の研究

試料の栽培および加工(製茶)は静岡県農林技術研究所茶業研究センターで、試料の分析はさいたま市健康科学研究センターで行った。

試料は、栽培した茶(品種:やぶきた43年生)を用いた。農薬はクロルフェナピル、ピリミホスメチルおよびクロチアニジンを用いた。散布方法は、各農薬を水道水で希釈し、すべて10a当たり200L相当になるように電池式噴霧器(IR-3000、IRIS社製)を用いて散布した。日光による農薬の分解を避けるため、被覆資材(クレモナ寒冷紗610番)を用いて摘採日まで被覆した。摘採は、摘採適期(生育状況:開葉数2.3枚、出開き度94%)であった平成24年5月7日に行い、これを生茶葉とした。この生茶葉を用い加工茶を製造した。また、加工茶を各10g採り、それぞれ100℃の水500mLを入れて5分間放置した後、ろ過したものを茶浸出液とした。

農薬の濃度は、各茶葉の水分含量を測定し、乾燥重量として換算した値を小数点第1位まで求めた。農薬消長の比較では、生茶葉の農薬残留量を100としたときの加工茶および茶浸出液の残存率を求めた。

粒度の違いによる比較では、クロチアニジン散布茶を用いて作製した加工茶を篩に通し、

粒度を区分した。No. 5 の篩を通過し、No. 8 の篩に残ったもの、No. 8 の篩を通過し、No. 11 の篩に残ったもの、No. 11 の篩を通過し、No. 40 の篩に残ったものをそれぞれ大・中・小とし、加工茶および茶浸出液の残存率を求めた。

保存期間による比較では、クロルフェナピル散布茶を用いて作製した加工茶をアルミ製袋に入れ、真空窒素充填により密封したものを4℃で、0ヶ月（製茶時）、3ヶ月、6ヶ月および9ヶ月保存し、加工茶の残存率を求めた。

## C. 研究結果

### I. 食品中残留農薬の急性(短期)暴露評価とデータベースの整備に関する研究

#### 1) 確率モデルによる短期経口暴露量の推定方法の検討

トマトにおける Acetamiprid の作物残留データを対象とした結果は、以下の通りであった。1点推定法  $1.12 \mu / \text{day}/\text{kg}$  に対して、全データ ( $n=18$ ) を用いた場合の試算結果は  $1.19 \mu / \text{day}/\text{kg}$  と近い値であった。各シナリオでの100例ずつの試算では、8例と6例では、平均値及び変動係数は大きく変わらないが、4例となると変動係数が大きくなり、偶然（標本誤差として）に推定結果が大きく外れるリスクが高くなることがわかった。

#### 2) 確率モデルによる短期経口暴露量の試算ツールの作成

MS-Excel のシート画面において、摂取量データに関わる各パラメータ及びユニット重量についてはすでに格納され、各対象農薬に対して作物残留データを登録する。アドインマクロ (Crystal Ball) を用いることにより、シミュレーション結果や、試算途中の分布等の仮定を含めて、グラフ等による視覚的な確認が容易となった。試算結果としては、全員（1歳以上）、小児（1～6歳）、季節変動（春・夏・秋・冬）、地域差（東日本・西日本）について、それぞれ確率モデルによる暴露量の分布（主にパーセントイルとして表示）が示され、1点推定法の値との関係を容易に確認することができるようになった。

### II. 食品中残留農薬の汚染実態把握に関する

## 研究

### 1) 検出濃度の季節変動を調査するための通年野菜の分析（卸売市場品）

分析した試料について、生産地を関東地方と東北地方に区分したときの季節による通年野菜の流通状況を調べた。夏季を除き、9割以上が関東地方産であり、その中でも7割以上が埼玉県産および群馬県産であった。夏季のみ東北地方産が4割を占め、その中でも8割以上が秋田県産および山形県産であった。分析した71試料中43試料から67農薬が検出された。1試料あたりの検出数は0.9農薬であり、最多で4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27試料あった。検出量の範囲は  $0.005 \sim 0.84 \text{ppm}$  で、検出量が  $0.01 \text{ppm}$  未満は18農薬、 $0.01 \sim 0.1 \text{ppm}$  は37農薬、 $0.1 \sim 1.0 \text{ppm}$  は12農薬であった。検出農薬の9割以上が基準値比10%未満であり、基準値を超える量の農薬は検出されなかった。

検出農薬を成分別で見ると、検出された農薬の種類は18種で、最も検出された農薬は、シペルメトリンで10試料から検出された。次いで、9試料から検出されたイミダクロプリド、8試料から検出されたクロルフェナピルおよびプロシミドン、7試料から検出されたクロチアニジン、5試料から検出されたアゾキシストロビンであった。

検出農薬を系統別で見ると、検出された農薬の系統は7種であり、最も検出された農薬はネオニコチノイド系で20試料から検出され、検出された全農薬の約3割（29.9%）を占めていた。次いで、16試料から検出されたピレスロイド系（23.9%）、8試料から検出されたジカルボキシイミド系およびフェニルピロール系（11.9%）、7試料から検出されたストロビルリン系（10.4%）、5試料から検出された有機リン系（7.5%）、3試料から検出されたその他の系統であった。

### 2) 「道の駅」等で購入した野菜・果実の分析（直売所品）

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。定量された残留農薬は、いずれも基準値以下であった。最高値の「小松菜」中のイミダクロプリド（ネオニコチノイド系農薬）でも 0.03 ppm であった。

なお今年度の分析でも、LC-MS/MS による分析で測定不能（低回収率）となる農薬が多かった。総分析項目数は 3024（検体数×項目数＝8×378）で、そのうち 104 が測定不能であった。内訳は、ねぎ 21、小松菜 15、はくさい 15 などであった。

### 3) 茶の加工工程による農薬の消長の研究

クロルフェナピルを散布した生茶葉が 25.5 ppm であるのに対し、加工茶は 19.0 ppm (74.5%)、茶浸出液は 0.7 ppm (2.7%) であった。また、ピリミホスメチルを散布した生茶葉が 34.5 ppm であるのに対し、加工茶は 27.7 ppm (80.3%)、茶浸出液は 1.3 ppm (3.8%)、クロチアニジン散布した生茶葉が 34.1 ppm であるのに対し、加工茶は 27.5 ppm (80.6%)、茶浸出液は 17.6 ppm (51.6%) であった。

粒度の違いによるクロチアニジンの残存率は、加工茶が生茶葉に対して 58.1～63.0%、茶浸出液が 46.9～51.3% であった。

また、保存期間によるクロルフェナピルの残存率は、0 ヶ月に対して 3 ヶ月が 59.6%、6 ヶ月が 45.0%、9 ヶ月が 39.9% であった。

## D. 考察

### I. 食品中残留農薬の急性(短期)暴露評価とデータベースの整備に関する研究

本研究課題では、国外の作物残留試験データを含めて、JMPR の資料から GAP に基づき適切なデータと認められているものを抽出した。食物摂取量データとしては、4 季節・全国各ブロックをカバーした摂取量データ (n=40,394 人・日) を用い、摂取者における 97.5 パーセントイル摂取量とともに、確率モデルに必要なパラメータを求めた。モンテカルロシミュレーションを用いた推定のための諸条件として、ヒトの 1 日摂取量として想定されない上限値の考慮、LOQ 未満の作物残留試験データの取り扱い、必要な作物残留試験データの例数、年齢・季節変動・地域差についての考慮に関して検討し、確率モデルを適

用するには、6 例以上の例数が必要と考えられた。これらの検討結果を踏まえて、確率モデルにより短期経口暴露量を推定するためのツールを作成した。それにより、試算を容易に行うことができるようになった。基本的な判断 (%ARfD の計算等) は、従来通りに 1 点推定法によって行うとしても、確率モデルによる試算を併せて行うことにより、どの程度のリスクとしてとらえるかの判断がしやすくなった。また、季節変動の考慮も農作物によっては必要であることが確認された。

### II. 食品中残留農薬の汚染実態把握に関する研究

#### 1) 検出濃度の季節変動を調査するための通年野菜の分析（卸売市場品）

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 試料の単一試料を用いた。混合試料は単一試料と比較して、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、検出量も平均化されるため、定量限界を下回り、検出されない農薬が出てくる可能性がある。今回は検出農薬の季節変動を調査することが目的であるため、単一試料による調査を選択した。

調査対象となる通年野菜の季節による流通状況は、夏季を除き、9 割以上が関東地方の生産品であり、その 7 割以上を埼玉県産と群馬県産が占めていた。これは、平成 22 年産野菜生産出荷統計<sup>2)</sup>によると、キュウリ、ホウレンソウおよびコマツナにおける全国生産量の 3～4 割を関東地方産が占めており、中でも埼玉県産と群馬県産がすべての作物で上位を占めているためであると思われる。また、夏季のみ東北地方産が流通の 4 割を占めていたのは、キュウリの場合、冬春季と夏秋季で産地の生産量が増加するためであると考えられた。

今回の分析結果では、1 試料あたり 0.9 種の農薬が検出され、総検査項目あたりの検出率 0.52% となった。これは、平成 22 年度に実施したホウレンソウおよびキュウリの分析結果 (1.4 種、0.77%)<sup>3)</sup> と比較すると低い値



であった。しかしながら、平成 22 年度は 3 試料の混合試料であったため、単一試料として計算(混合試料のため検出量が平均化され、不検出となる割合を今回の検出結果から 40% ととして換算)すると、0.8 種、0.42% となり、同程度の検出状況であったと推察された。また、雨季に検出率が高くなった原因として、病害虫の発生が雨季から夏季にかけて多くなるため、農薬が多く使用されたものと思われた。

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、検出農薬の 9 割以上が基準値比 10% 未満であり、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、問題ないレベルであった。

検出農薬を成分および系統別で見ると、イミダクロプリドやクロチアニジンなどのネオニコチノイド系農薬とアズキシストロビンやクレソキシムメチルなどのストロビルリン系農薬が 27 試料から検出された。これは検出された全農薬の 4 割以上を占めているが、これらの農薬は、生産量の増加している新世代の農薬であり、平成 22 年度に実施した調査と同様の結果となった。

## 2) 「道の駅」等で購入した野菜・果実の分析(直売所品)

3 製品混合試料について分析する方法では、個別製品と比べ濃度が 1/3 になるため元の濃度が低いと検出できなくなる場合があるが、ある程度の濃度で残留する農薬の種類と数をできるだけ多く検出するという目的にはかなっていると考え選択した。

今回の分析結果で、基準値を超える農薬は検出されず、検出されたレベルはいずれも大変低いレベルであった。

なお、trace 検出農薬については昨年度までと同様の判定基準に基づいて今年度も拾い上げたが、すだち中のアニロホスについては、すだちから検出される可能性が極めて低いことから、LC-MS/MS と GC-MS/MS により追加確認分析を実施したところ、アニロホスに該当するピークは認められず、アニロホスではな

いことが判明した。

## 3) 茶の加工工程による農薬の消長の研究

平成24年度は水溶性農薬を含む3農薬(クロルフェナピル、ピリミホスメチル、クロチアニジン)について検証した。

生茶葉に対する加工茶の農薬残存率は74.5~80.6%であり、成分の違いによる有意差は認められなかった。一方、茶浸出液においては、クロルフェナピルおよびピリミホスメチルの農薬残存率が5%以下であるのに対し、クロチアニジンは50%以上であり、有意差が認められた ( $p < 0.05$ )。これは、加工茶から浸出液への移行率として換算すると、64.0%となる。水への農薬の移行に関する報告<sup>4)</sup>では、移行率と水溶解度およびオクタノール/水分分配係数

( $\log Pow$ ) には高い相関があると述べられている。クロチアニジンの  $\log Pow$  は 0.7 と小さく、水溶性が高いため、茶葉から浸出液への農薬の移行が他の農薬よりも大きかったものと推察された。

粒度の違いによる比較では、茶浸出液への移行率が高かったクロチアニジン散布茶を用いたが、加工茶、茶浸出液ともに有意差は認められなかった。

保存期間による比較では、クロルフェナピルの残存率と保存期間との間の  $R^2$  値から判断して、クロルフェナピルの減衰は保存期間の長さにより累乗的に減衰する傾向が見られた。試料は、保存期間ごとに窒素充填による密封保存したものをを用いているため、農薬消長の原因は、揮散によるものではなく、加水分解が進んだものと思われた。

## E. 結論

### I. 食品中残留農薬の急性(短期)暴露評価とデータベースの整備に関する研究

わが国において、今後急性参照用量 (ARfD) の設定が進み、それにとまなう短期経口暴露評価の作業の中で、1点推定法に加えて、確率モデルによる試算も併せて行われ、暴露評価の精密化につながる事が期待される。本研究課題は、そのための基礎的なデータの整備と検討、並びに試算のためのツール作成を行った。

## II. 食品中残留農薬の汚染実態把握に関する研究

### 1) 検出濃度の季節変動を調査するための通年野菜の分析（卸売市場品）

今回の農産物の個別分析では、通年野菜を対象とし、71 試料中 43 試料から 67 農薬が検出され、検出量の範囲は 0.005~0.84ppm であった。検出農薬の 9 割以上が基準値比 10%未満であり、基準値を超えたものはなく、農薬の ADI と農産物の摂取量から、問題ないレベルであった。1 試料あたりの検出数は 0.9 農薬で、年間の総検査数あたりの農薬検出率は 0.51%であったが、単一試料と混合試料の差を加味すると、過去の調査結果と同程度であった。農薬検出率の季節変動を見ると、雨季のみ検出率が高くなったが、原因として、病害虫の発生が雨季から夏季にかけて多くなるため、農薬が多く使用されたものと思われた。

検出農薬を成分および系統別で見ると、ネオニコチノイド系、ストロビルリン系およびピレスロイド系農薬の検出頻度が高かった。ネオニコチノイド系およびストロビルリン系農薬は、生産量の増加している新世代の農薬で、ピレスロイド系農薬は、病害虫に幅広く有効な防除効果を示す農薬であり、使用実態と一致していた。

また、検出農薬を用途別で見ると、発生する病害の多い果菜類が、葉菜類と比較して殺菌剤の検出率が高い傾向にあった。

今回は検出農薬の季節変動を調査することが目的であったが、分析した試料数が少なかつたため、作物別や農薬別による季節変動を解析できるだけの検出農薬データを得ることができなかつた。今後も継続して残留農薬の実態把握を行い、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）

直売所品では平成 22 年度末に基準値違反が報道されたが、平成 23 年度の関東地区、平成 24 年度の関西地区の購入品では違反はみつからず、いずれの品目でも農薬の残留レベルは低かつた。

### 3) 茶の加工工程による農薬の消長の研究

今回、農薬を散布して農薬残留茶を栽培し、原料の生茶葉から製品となる加工茶、さらに茶浸出液を用いて飲用に至るまでの過程で、農薬の消長を調査した。

3 農薬を用いた成分の違いによる比較では、加工茶への残留に有意差は認められなかつた。一方で茶浸出液においては、水溶性の高い農薬ほど移行率が高くなる傾向があり、特に log Pow が最も低いネオニコチノイド系農薬のクロチアニジンでは他の 2 農薬との間に有意な差が認められた。しかしながら、粒度の違いによる比較では、加工茶、茶浸出液ともに有意差は認められなかつた。また、保存期間による農薬の消長は、保存期間が長くなるほど、農薬の減衰量が多くなつた。

今回の調査では、茶の加工条件や農薬の物性の違いにより、農薬残存率に影響を及ぼすことが示唆された。残留農薬の「暴露評価の精密化に関する意見具申」<sup>5)</sup>では、加工調理による残留レベルへの影響も考慮することとされているが、本研究は茶中残留農薬の暴露評価に資するものと考えられる。

## F. 引用文献

1) 厚生労働省「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」平成17年1月24日、食安発第0124001号(2005)

<http://www.mhlw.go.jp/topics/bukyoku/iya/ku/syoku-anzen/zanryu3/siken.html>

2) 総務省統計局統計センター「平成 22 年産野菜生産出荷統計」平成 25 年 2 月 20 日確認 <http://www.e-stat.go.jp/SG1/estat/List.do?lid=000001085177>

3) 厚生労働科学研究費補助金（食の安心・安全確保推進事業）食品中残留農薬の急性暴露評価及び汚染実態把握に関する研究（研究代表者 米谷民雄）平成22年度総括・分担報告書 p.47-73(2011)

4) 森田ら：農薬の物性 水質汚濁研究, 14(2), 75-78(1991)

5) 「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」平成10年8月7日、食調第57号（1998）

<http://www1.mhlw.go.jp/houdou/1005/h0501-2.html>

#### G. 健康危険情報

本研究において健康危険情報に該当するものはなかった。

#### H. 研究発表

論文発表

なし

学会発表

1) 近藤貴英、柴田雅久、黒川千恵子、井上 豊、外側正之、増田修一、米谷民雄：茶の製造過程および飲用時における農薬の消長 日本食品衛生学会第104回学術講演会(2012年9月、岡山)

2) 柴田雅久、近藤貴英、黒川千恵子、井上 豊、米谷民雄：食品中残留農薬の汚染実態把握について 第2報 日本食品衛生学会第104回学術講演会(2012年9月、岡山)

#### I. 知的財産権の出願・登録状況

なし

## Ⅱ. 分担研究報告書

### 1. 食品中残留農薬の短期暴露評価とデータベースの整備に関する研究

分担研究者 吉池 信男

## 食品中残留農薬の短期暴露評価とデータベースの整備に関する研究

研究分担者 吉池 信男 青森県立保健大学健康科学部栄養学科 教授  
研究協力者 山田 友紀子 農林水産省大臣官房技術総括審議官

### 研究要旨

JMPR では、多くの農薬に急性参照用量 (ARfD) が設定(設定の原則も確立)されているが、わが国での設定は2農薬のみである。また、適切な作物残留試験データに乏しく、暴露評価が困難となっている。そこで本研究では、以下のことを目的とした。①JMPR で ARfD が設定され、わが国で登録のある農薬を対象に、短期経口暴露量の試算を行う。②暴露量試算の際に用いる確率モデルについて基礎的な検討を行う。

平成24年度は、特に以下の点について検討した。

1) 平成 23 年度の検討を進め、確率モデルの適用方法、特に作物残留試験で必要な例数について検討した。その結果、例数としては 8 例以上が望ましいが、最低 6 例が必要と考えられた。

2) 確率モデルによる暴露量推定を容易に行うために、自動計算可能なツール(MS-Excel シート)を作成した。また、必要な摂取量のパラメータ等を整備した。その際、小児及び季節変動並びに地域差が確認出来るようなデータ構造とした。これを用い、ARfD に対して短期経口暴露量が高いと予想された Bifenthrin、並びに Difenconazole、Pyraclostrobin について試算を行った。

### A. 目的

食品中の残留農薬の急性健康影響に関してリスク評価を行うことは、食品安全行政上、近年重要な課題となってきている。Joint

FAO/WHO Meeting on Pesticide Residues (JMPR)や欧米、豪州で急性参照用量(ARfD)が設定(設定の原則も確立)されている。わが国でも登録されている農薬のうち、海外で基準値が多くの食品に設定されている農薬については、急性参照用値からみた妥当性を検討し、さらに当該農薬の短期経口暴露量の試算を行うことが必要である。そこで、本分担研究課題では、平成22年度から図1のプロセスに従って種々の検討を行った。

背景: JMPRでは、多くの農薬に設定(設定の原則も確立)されているが、我が国では、急性参照用量(ARfD)の設定は2農薬のみ。適切な作物残留データに乏しく、暴露評価が困難。

目的: ①JMPRでARfDが設定され、我が国で登録のある農薬を対象に、短期経口暴露量の試算を行う。②暴露量試算の際に用いるモデルについて、基礎的な検討を行う。

研究計画及び進捗状況:

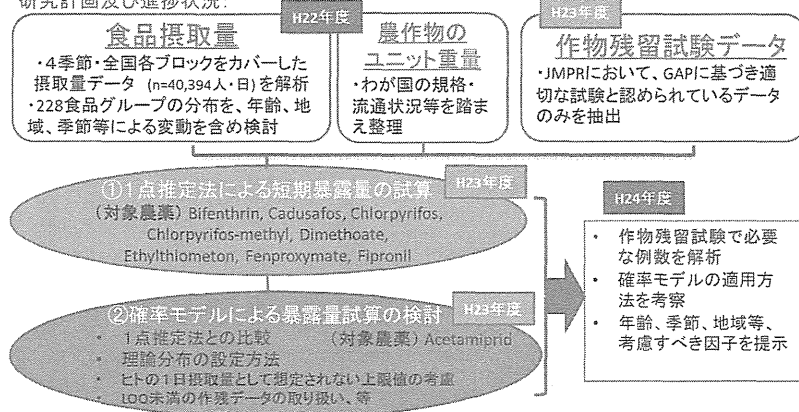


図1 本分担研究課題の計画及び実施状況の概要

## B. 方法

### 1) 確率モデルによる短期経口暴露量の推定方法の検討

わが国の作物残留試験データを用いる限り、例数が不足していることから、短期経口暴露量の試算に確率モデルを導入することが出来ない。そこで、JMPRの資料から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、試算に用いた。昨年度に引き続き、Acetamiprid(表1)を例として、検討を行った。

利用可能な作物残留試験データのn数をもっとも多い「トマト」を対象とした。n=18の標本から、無作為にn=8, 6, 4, 2のサブセットを抽出した(各100標本ずつ)。なお、

標本抽出によるランダムな変動(標本誤差)を事後的に分析することを目地的としていることから、LOQ未満の場合(<0.01; n=3)については、0.01と区別するために、LOQ×1/2として取り扱った。これらのサブセットを用いて、100,000回のシミュレーションをそれぞれ行った。シミュレーションには、Crystal Ball, Fusion Edition Release

11.1.2.1.000 (Oracle社)

を用い、モンテカルロ法を適用した。なお、限られた作物残留データから確率分布を事後的に推計するブートストラップ法は用いずに、抽出された測定データをそのままモデルに加えた。摂取量データについては、1歳以上の全摂取者における1日摂取量(g/day)を用いて、対数正規分布を仮定してモデルに加えた。

n=8, 6, 4, 2の各シナリオに関して、100標本のシミュレーション結果として、99.9パーセンタイル値(平成23年度の検討から、1点推定法による値と比較的近くなる事が確かめられた)を求め、その値の平均値、中央値並びに変動係数を比較した。

**ケース1** コンポジットサンプル中の残留濃度が、実際の摂食される部分の濃度を反映している場合(ユニットの重さが25g未満)

$$\frac{LP \times (HR \text{ or } HR-P)}{bw}$$

**ケース2** 実際に摂食される部分(例えば1個の果実や野菜)の残留濃度が、コンポジットサンプル中の残留濃度より高い可能性がある場合(1個の果実や野菜の重量が25g以上)

ケース2a: 1個の果実や野菜の可食部重量が、食品消費の97.5パーセンタイル値より小さい

$$\frac{U \times (HR \text{ or } HR-P) \times 3 + (LP - U) \times (HR \text{ or } HR-P)}{bw}$$

仮定: 1個目の残留濃度がHR×3(3は変動係数)で、2個目の濃度は1個目と同じロットのコンポジットサンプル中の濃度であるHRである。

ケース2b: 1個の果実や野菜の可食部重量が、食品消費の97.5パーセンタイル値より大きい

$$\frac{LP \times (HR \text{ or } HR-P) \times 3}{bw}$$

仮定: 1個だけを摂食するが、その残留濃度はHR×3(3は変動係数)である。

**ケース3** 大規模で加工したり、大量に混合したり、ブレンドしたりしてから、食品として販売するもの(穀類\*、特に製粉したもの、牛乳、市販のジュースや植物油など)。STMRまたはSTMR-Pが、最も高濃度と思われる濃度に相当する。

$$\frac{LP \times (STMR \text{ or } STMR-P)}{bw}$$

\*サイロでポストハーベスト処理した場合は、ケース1となる。

LP: 摂取者の食品消費量の97.5パーセンタイル値、kg/food/day  
 HR: GAPの最大条件に従って実施した作物残留試験における、可食部のコンポジットサンプルの分析結果のうち最大濃度、mg/kg  
 HR-P: 加工食品中の最大濃度、mg/kg; 生鮮食品中の最大濃度に加工係数を乗じたもの  
 STMR: GAPの最大条件に従って実施した作物残留試験の結果の中央値、mg/kg  
 STMR-P: 加工食品におけるSTMR、mg/kg; 生鮮食品中のSTMRIに加工係数を乗じたもの  
 bw: 平均体重、kg  
 U: 1個の食品の可食部重量、kg

図2 短期暴露量推定に用いたケース別の計算方法

表1 Acetamiprid における作物残留試験データ(GAPに基づき適切な試験と認められているもののみを抽出)

食品グループ	HR	n	(mg/kg)																								
1 ねぎ(倉りゃき)	spring onions	2	3	0.05	0.38	2																					
2 玉ねぎ	onions	0.01	6	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	0.01																		
3 メロン類(果実)	melons	0.1	6	0.02	0.02	0.04	0.06	0.08	0.1																		
4 はなやさい(ブロッコリー)	broccoli	0.22	9	0.01	0.01	0.02	0.02	0.03	0.05	0.09	0.22																
5 セロリー	celery	0.78	8	0.08	0.17	0.27	0.27	0.32	0.41	0.51	0.78																
6 レタス	protected lettuce	1.9	8	0.33	0.33	0.41	0.5	0.78	0.88	0.88	1.9																
7 ほうれんそう	spinach	2.5	8	0.03	0.04	0.21	0.46	0.55	1.1	2.1	2.5																
8 オレンジ(含ネーブルオレンジ)	oranges	0.4	7	0.09	0.1	0.12	0.28	0.28	0.39	0.4																	
9 レモン	lemons	0.45	3	0.09	0.15	0.45																					
10 りんご	apples	0.59	17	0.12	0.12	0.14	0.14	0.16	0.18	0.19	0.22	0.23	0.25	0.25	0.26	0.27	0.28	0.31	0.55	0.59							
11 アーモンド	almonds	0.02	6	<0.01	<0.01	<0.01	0.01	0.01	0.02																		
12 きゅうり(含ガーケン)	cucumbers	0.09	6	0.02	0.02	0.03	0.03	0.04	0.09																		
13 トマト	tomatoes	0.1	18	<0.01	<0.01	<0.01	0.01	0.01	0.02	0.03	0.03	0.03	0.03	0.04	0.04	0.04	0.06	0.06	0.08	0.09	0.1						
14 ししとうがらし	chili peppers	0.14	3	0.06	0.08	0.14																					
15 ピーマン	sweet peppers	0.09	8	0.01	0.02	0.03	0.03	0.04	0.06	0.07	0.09																
16 いちご	strawberries	0.24	10	0.03	0.04	0.05	0.06	0.09	0.11	0.12	0.23	0.23	0.24														
17 さくらんぼ	cherries in fruit without stones	0.88	8	0.1	0.29	0.36	0.42	0.48	0.54	0.68	0.88																
18 もも	peaches	0.44	10	0.11	0.16	0.18	0.19	0.2	0.22	0.23	0.36	0.44															
19 西洋なし	pears whole fruit	0.32	9	0.09	0.09	0.15	0.17	0.2	0.25	0.27	0.31	0.32															
20 ぶどう	grapes	0.25	18	0.01	0.03	0.04	0.04	0.05	0.06	0.07	0.08	0.08	0.09	0.11	0.13	0.15	0.16	0.21	0.22	0.23	0.25						
21 ブルーベリー	blueberries	0.62	6	0.09	0.2	0.25	0.48	0.49	0.62																		

## 2) 確率モデルによる短期経口暴露量の試算ツールの作成

JMPR によって提示されている短期経口暴露量推定法の考え方を、確率モデルに当てはめることにした(図2)。

利用可能な作物残留試験データを出来るだけ多く用いるとは言え、その数は限られており(例として、表1を参照のこと)、作物の固体間の変動を予測するには不十分である。そのため、特にユニット重量(U)が大きな農作に対して、1点推定法で用いられる変動係数「3」を確率モデルに適用することとした。1点推定法では、摂取量分布の97.5パーセンタイル(図2中のLP)とユニット重量(U)との関係は固定的であるが、確率モデルでは、摂取量はその分布の範囲で変動することから、“動的に”選択された摂取量データがユニット重量(U)を上回るかどうかで、ケース2aないし2bの式に基づいて、各試行における暴露量を計算した。また、ユニット重量が25g未満の場合には、ケース1を適用した。

シミュレーションの条件は、平成23年度に検討した事項を基に設定した。すなわち、摂取量データについては、摂取者における1日当たりの摂取量(g/day)の分布を対数正規分布と見なした。平成23年の検討で、ヒトが1日に摂取できる上限量を仮定し、摂取量の確率分布に対してリミットをかけた場合でも最終的な結果への影響は小さなものであった。ただし、食品の分布型によっては考慮した方が良い場合も可能性として考えられることから、データベースの設定上、上限値によるリミット(default=9,999,999g)をかけられるようにした。加えて、各農作物の摂取量分布(97.5パーセンタイル値を含めて)を試算に用いるかどうかの目安として、 $n \geq 120$ を確認した。

作物残留データについては、平成23年の検討では、ブートストラップ法を用いて理論分布を仮定することも検討したが、データの分布型によって適合度が悪いことがわかったので、測定データをそのままモデルに加えた。なお、LOQ未満に

については原則としてそのままの値をモデルに加えた(高暴露量の試算には影響がないため)。

試算に用いる基礎データとしては、平成22年度に検討した  $n=40,394$ (1歳以上)、 $n=1,609$ (1~6歳)の別に、シミュレーションに必要な摂取量のパラメータをデータシートに格納した。また、平成22年度の検討から、季節変動や地域差が見られたことから、その影響を把握するために以下のデータを格納した。春夏秋冬の4つの季節の12日間の摂取量データが全てそろっている2,712名のデータ(延べ32,544人・日)から算出したパラメータを加えた。また、「東日本」( $n=20,513$ )及び「西日本」( $n=19,876$ )の別にパラメータを追加した。

汎用性及び操作性を考え、基本的な作業(データの整理・登録)はMS-Excel 2010(Windows版)で行うこととした。モンテカルロシミュレーションに関しては、ユーザーのニーズや、今後の専門的な検討の進捗等に応じて、諸条件や出力形式等、比較的簡単に設定することができる様に、MS-ExcelのアドインマクロであるCrystal Ball、(Oracle社)を用いた。

このツールを活用し、ARfDに対して短期経口暴露量が高いと予想されたBifenthrinについて検討を行った。基本的にケース2aないし2b(ただし、いちごを除く)で、JMPRの資料からGAPに基づき適切なデータと認められているものが6例以上(但し全てがLOQ未満といったケースは除外)について検討した。なす(ケース2a)、いちご(ケース1)、だいこん葉(ケース2b)、トマト(ケース2a)、オレンジ(ケース2a)がその条件に合致し、表2aに示す作物残留データ及びユニット重量を用いて、試算を行った。

同様にDifenoconazole(表2b)、Pyraclostrobin(表2c)についても試算を行った。

表2a Bifenthrin における作物残留試験データ (GAPに基づき適切な試験と認められているもののみを抽出)

食品グループ		U (g)	HR	n	(mg/kg)																		
オレンジ	Citrus fruits	132	0.1	36	<0.005	0.008	<0.05	(34)															
いちご	Strawberry	15	2.3	19	0.27	0.3	0.31	0.33	0.33	0.34	0.34	0.36	0.41	0.46	0.46	0.48	0.51	0.59	0.86	0.86	0.88	2.1	2.3
なす	Egg plant	72	0.10	9	<0.05	<0.05	<0.05	<0.05	<0.05	<0.05	<0.05	0.07	0.10										
トマト	Tomato	175	0.2	7	0.03	0.04	0.06	0.06	0.09	0.15	0.15												
だいこん葉	Radish leaves and tops	360	2.3	6	0.69	1.2	1.7	1.8	2	2.3													

表2b Difenconazole における作物残留試験データ (GAPに基づき適切な試験と認められているもののみを抽出)

食品グループ		U (g)	HR	n	(mg/kg)																	
キャベツ	Cabbages	1190	0.2	20	<0.01	<0.01	<0.01	0.01	<0.02	(10)	<0.05	<0.05	0.06	0.1	0.13	0.19						
にら	Leeks	49	0.2	12	0.02	0.02	0.03	0.04	0.05	0.07	0.09	0.12	0.13	0.14	0.17	0.21						
トマト	Tomato	175	0.4	11	0.03	0.04	0.05	0.09	0.1	0.1	0.12	0.13	0.18	0.28	0.36							
人参	Carrot	300	0.1	11	0.02	0.02	0.03	0.03	0.04	0.05	0.07	0.07	0.11	0.12	0.13							
りんご	Pome fruits	255	0.3	11	0.05	0.06	0.07	0.08	0.1	0.11	0.13	0.14	0.15	0.16	0.28							
はなやさい(ブロッコリー)	Broccoli	150	0.4	8	0.02	0.02	0.03	0.05	0.08	0.1	0.15	0.41										
もも	Stone fruits	255	0.3	8	0.07	0.11	0.14	0.14	0.16	0.18	0.19	0.26										
ぶどう	Grapes	425	0.1	8	0.01	0.02	0.02	0.03	0.03	0.04	0.04	0.07										

表2c Pyraclostrobin における作物残留試験データ (GAPに基づき適切な試験と認められているもののみを抽出)

食品グループ		U (g)	HR	n	(mg/kg)																	
ぶどう	Grape	425	0.44	43	0.09	0.1	0.1	0.12	0.12	0.13	0.16	0.17	0.17	0.2	0.22	0.23	0.24	0.25	0.26	0.35		
					0.36	0.36	0.4	0.43	0.44	0.44	0.47	0.49	0.55	0.56	0.59	0.59	0.64	0.67	0.67			
りんご	Apple	255	0.17	25	0.03	0.034	0.041	0.051	0.057	0.058	0.064	0.07	0.07	0.081	0.095	0.101	0.104	0.118	0.12	0.131		
					0.139	0.142	0.143	0.163	0.167	0.184	0.276	0.289	0.29									
トマト	Tomato	175	0.17	24	0.02	0.03	0.06	0.07	0.07	0.08	0.1	0.11	0.11	0.11	0.11	0.12	0.12	0.12	0.12	0.13		
					0.13	0.15	0.16	0.17	0.17	0.17	0.19	0.21										
キャベツ	Cabbage	1190	0.09	15	<0.02	<0.02	<0.02	<0.02	<0.02	<0.02	<0.02	<0.02	<0.02	<0.02	<0.02	0.04	0.05	0.09	0.09			
メロン類(果実)	Melons, except watermelon	500	0.14	14	0.025	0.025	0.04	0.045	0.045	0.05	0.05	0.055	0.06	0.06	0.06	0.065	0.07	0.14				
きゅうり(含ガーキン)	Cucumber	98	0.41	13	0.02	0.02	0.03	0.05	0.05	0.06	0.06	0.07	0.09	0.1	0.12	0.14	0.41					
玉ねぎ	Onion	244	0.62	12	<0.02	0.02	0.02	0.02	0.02	0.02	0.03	0.09	0.11	0.42	0.43	0.61	0.62					
いちご	Strawberry	15	0.75	11	0.06	0.12	0.13	0.15	0.16	0.2	0.24	0.31	0.43	0.73	0.75							
もも	Peach	255	0.13	10	<0.02	0.03	0.04	0.05	0.07	0.07	0.08	0.11	0.12	0.13								
オレンジ(含ネーブルオレンジ)	Orange	132	0.1	8	0.02	0.02	0.03	0.03	0.04	0.05	0.08	0.1										
人参	Carrot	300	0.24	7	0.03	0.03	0.04	0.12	0.12	0.15	0.24											
にんにく	Garlic	60	0.09	7	<0.02	<0.02	<0.02	<0.02	0.03	0.05	0.09											
グレープフルーツ	Grape fruit	132	0.59	6	0.06	0.07	0.09	0.11	0.24	0.59												



### C. 結果

#### 1) 確率モデルによる短期経口暴露量の推定方法の検討

トマトにおける Acetamiprid の作物残留データを対象としたシミュレーション結果を、表3に示す。各シナリオにおける試算結果の分布を図3に示す。1点推定法の値  $1.12 \mu / \text{day}/\text{kg}$  に対して、全データ (n=18)を用いた場合の試算結果は  $1.19 \mu / \text{day}/\text{kg}$  と近い値であった。各シナリオでの 100 例ずつの試算では、8 例と 6 例では、平均値及び変動係数は大きく変わらないが、4 例となると変動係数が大きくなり、偶然 (標本誤差として) に推定結果が大きく外れるリスクが高くなることがわかった。

表3 トマトにおけるAcetamipridの作物残留データ(n=18)を対象としたシミュレーション結果

1点推定法	99.9%タイル				
	全データ (n=18)	8例 (n=100)	6例 (n=100)	4例 (n=100)	2例 (n=100)
1.12 ( $\mu \text{g} / \text{day}/\text{kg}$ )	1.19	1.25	1.18	1.09	0.95
平均	1.30	1.28	1.21	0.75	
中央値	0.20	0.28	0.37	0.49	
標準偏差	16.0	23.7	33.5	51.3	
変動係数(%)					

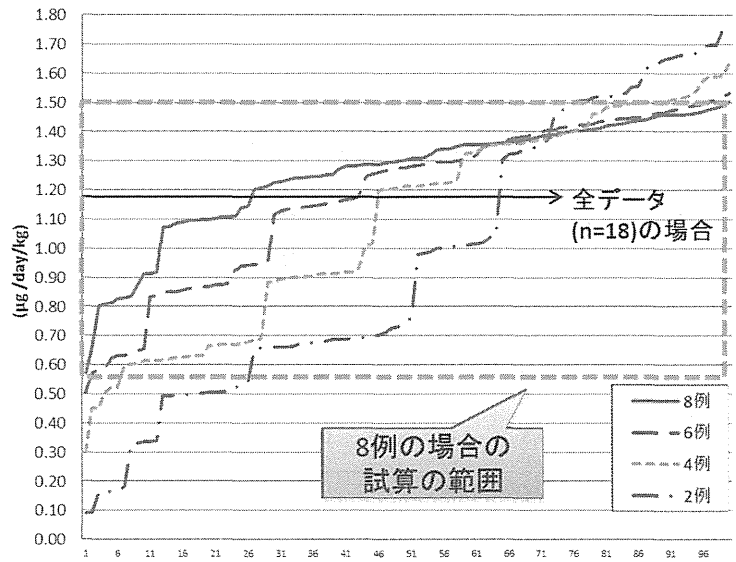


図3 トマトにおけるAcetamipridの作物残留データを対象としたシミュレーション ~ 4つのシナリオ (例数)における試算結果の分布 ~

#### 2) 確率モデルによる短期経口暴露量の試算ツールの作成

MS-Excelシート画面 (図4) において、

##### 短期暴露量試算のためのパラメータの登録

対象グループ	トマト	登録番号	126	登録年度	2013.3.3
--------	-----	------	-----	------	----------

摂取量データ										
全員の平均	摂取者数	摂取者平均	摂取者SD	対数変換後平均	対数変換後SD	97.5%ile	95%ile	90%ile	85%ile	
全員(1歳以上)	27.46	17245	64.3	58.0	3.82	0.85	219.3	55.5	2a	○
小児(1~6歳)	15.07	647	37.7	38.0	3.28	0.85	147.9	15.4	2b	○
春	33.97	4166	66.4	56.8	3.88	0.83	214.2	55.6	2a	○
夏	47.47	4701	82.3	70.3	4.07	0.87	265.2	55.6	2a	○
秋	13.61	2375	46.7	37.7	3.55	0.79	153.0	55.4	2b	○
冬	15.71	2636	48.6	40.1	3.61	0.76	147.9	55.8	2b	○
東日本	30.82	9132	69.3	60.3	3.90	0.85	229.5	55.8	2a	○
西日本	23.99	8113	58.8	54.8	3.74	0.83	198.9	55.4	2a	○

注: 175 備考

全員(1歳以上;n=40,394人・日)と小児(1~6歳;n=1,609人・日)の摂取量データに基づいて、パラメータを格納

対象農薬	Bifenthrin	ARLD	0.01 mg/kg bw
------	------------	------	---------------

作物残留データ	HR (mg/kg)	n
	0.15	7
	0.03	0.04
	0.06	0.06
	0.09	0.15
	0.15	0.15

わが国の試験では、十分な例数が得られないので、JMPRの資料から、GAPに基づく適切な値のみを抽出

#### 確率モデルによる短期暴露量の推定

対象農薬	Bifenthrin	ARLD	0.01 mg/kg bw
対象グループ	トマト	登録番号	126
方法	モンテカルロ法	シミュレーション回数	100,000回

摂取者	平均値	中央値	標準偏差	99.9%ile					1点推定法	%ARLD	
				99.9%	99.9%	99.9%	99.9%	99.9%			
全員(1歳以上)	17245	0.25	0.17	0.31	1.20	1.54	2.22	3.22	4.59	1.54	15
小児(1~6歳)	647	0.56	0.34	0.67	2.42	3.36	5.59	7.25	9.33	4.06	41
春	4166	0.29	0.18	0.31	1.23	1.54	2.16	3.13	4.37	1.52	15
夏	4701	0.35	0.22	0.37	1.47	1.73	2.66	3.94	5.42	1.66	17
秋	2375	0.21	0.13	0.23	0.88	1.18	1.74	2.36	2.79	1.24	12
冬	2636	0.22	0.13	0.23	0.88	1.19	1.75	2.14	2.57	1.19	12
東日本	9132	0.30	0.19	0.26	1.47	1.58	2.28	3.14	4.27	1.56	16
西日本	8113	0.28	0.16	0.28	1.09	1.43	2.03	2.81	3.56	1.49	15

小児(1-6歳)についての試算

地域性の影響の考慮

季節変動の影響の考慮

図4 確率モデルによる短期暴露量の推定ツール ~ データ登録及び結果出力のイメージ ~

摂取量データに関わる各パラメータ及びユニット重量については格納されている。各対象農薬に対して、JMPRの資料等からGAPに基づき適切なデータと認められているものを選択し、作物残留データを登録する(図4の上)。

その上で、アドインマクロ(Crystal Ball (Oracle社)を用いることにより、シミュレーション結果や、試算途中の分布等の仮定を含めて、グラフ等による視覚的な確認が容易となった。結果としては、図4の下に表されるように、全員(1歳以上)、小児(1~6歳)、季節変動(春・夏・秋・冬)、地域

差(東日本・西日本)について、それぞれ確率モデルによる暴露量の分布(主にパーセンタイルとして表示)が示され、1点推定法の値との関係を容易に確認することができる。

Bifenthrin、Difenoconazole、Pyraclostrobin についての試算結果を表3a~cに示す。

Bifenthrin に関しては、1点推定法の値は、いちごが小児(1~6歳)において、だいこん葉が全員(1歳以上)において、%ARfDが100%を超えた。例えば、いちごの小児における%ARfDは256%である。この値の解釈にあたり、確率モデルにお

ける暴露量の分布を見ると、97.5パーセンタイル値が11.97  $\mu\text{g/day/kg}$  とARfDを超えていることがわかる。すなわち、表2aに示したように、作物残留値として2.1あるいは2.3  $\text{mg/kg}$  といった高濃度データが存在する場合には、1~6歳における1日の摂取で、ARfDを超えるケースはまれではない(数%程度ある)ことが確認できた。また、いちごは季節変動が大きい農作物であるが、四季別のデータからそのことが確認され、全季節を合わせたデータ(%ARfD=86%)は、過小推計をしていることがわかった。

表3a 確率モデルによる短期経口暴露量の推定

		Bifenthrin										ARfD: 0.01 mg/kg bw	
		$(\mu\text{g/day/kg})$											
摂取者人数	平均値	中央値	標準偏差	97.5 %tile	99 %tile	99.9 %tile	99.99 %tile	99.999 %tile	1点推定法	%ARfD	試算ケース		
<b>(オレンジ)</b>													
全員(1歳以上)	805	0.19	0.16	0.13	0.47	0.53	0.73	0.96	1.43	0.45	4	2b	
小児(1~6歳)	80	0.41	0.34	0.29	1.24	1.36	1.74	2.16	2.44	1.27	13	2b	
春	312	0.20	0.18	0.12	0.47	0.53	0.71	0.95	1.20	0.47	5	2b	
夏	129	0.14	0.12	0.09	0.40	0.43	0.54	0.64	0.79	0.37	4	2b	
秋	54	0.12	0.11	0.06	0.26	0.31	0.41	0.45	0.48	0.25	2	2b	
冬	123	0.18	0.15	0.12	0.46	0.52	0.70	0.98	1.18	0.38	4	2b	
東日本	402	0.18	0.15	0.12	0.46	0.53	0.71	0.92	1.23	0.43	4	2b	
西日本	403	0.19	0.16	0.13	0.47	0.53	0.71	0.96	1.18	0.46	5	2b	
<b>(いちご)</b>													
全員(1歳以上)	2459	0.86	0.48	1.25	4.09	6.10	13.17	22.48	42.58	8.59	86	case1	
小児(1~6歳)	177	2.44	1.32	3.76	11.97	18.04	38.87	84.32	115.16	25.61	256	case1	
春	726	0.95	0.52	1.39	4.62	6.90	14.33	24.02	40.36	10.84	108	case1	
夏	14	0.62	0.23	1.58	3.67	6.35	19.33	42.23	78.97	3.42	34	case1	
秋	139	0.74	0.41	1.11	3.54	5.43	11.78	20.89	30.18	5.33	53	case1	
冬	1173	0.83	0.48	1.14	3.89	5.67	11.50	19.80	28.42	7.67	77	case1	
東日本	1350	0.86	0.49	1.23	4.10	6.07	13.10	22.71	29.90	9.36	94	case1	
西日本	1109	0.84	0.47	1.22	3.96	5.92	13.34	23.15	32.69	8.72	87	case1	
<b>(なす)</b>													
全員(1歳以上)	7465	0.16	0.13	0.12	0.46	0.57	0.96	1.53	2.58	0.62	6	2b	
小児(1~6歳)	133	0.28	0.21	0.24	0.90	1.15	1.71	2.36	2.80	1.46	15	2b	
春	1478	0.14	0.11	0.11	0.41	0.50	0.82	1.24	2.04	0.56	6	2b	
夏	3286	0.19	0.17	0.13	0.51	0.64	1.13	1.78	2.92	0.68	7	2b	
秋	856	0.13	0.10	0.11	0.40	0.49	0.80	1.22	1.85	0.56	6	2b	
冬	530	0.11	0.08	0.09	0.35	0.42	0.64	0.96	1.31	0.47	5	2b	
東日本	4139	0.16	0.13	0.12	0.46	0.58	1.00	1.63	2.10	0.62	6	2b	
西日本	3326	0.16	0.13	0.12	0.45	0.56	0.96	1.57	2.76	0.60	6	2b	
<b>(トマト)</b>													
全員(1歳以上)	17245	0.28	0.17	0.31	1.20	1.54	2.22	3.22	4.59	1.54	15	2a	
小児(1~6歳)	647	0.56	0.34	0.67	2.42	3.36	5.59	7.25	9.33	4.06	41	2b	
春	4166	0.29	0.18	0.31	1.23	1.54	2.16	3.13	4.37	1.52	15	2a	
夏	4701	0.35	0.22	0.37	1.47	1.73	2.66	3.94	5.42	1.66	17	2a	
秋	2375	0.21	0.13	0.23	0.86	1.18	1.74	2.36	2.79	1.24	12	2b	
冬	2636	0.22	0.14	0.23	0.88	1.19	1.75	2.14	2.57	1.19	12	2b	
東日本	9132	0.30	0.19	0.33	1.31	1.58	2.28	3.14	4.27	1.56	16	2a	
西日本	8113	0.26	0.16	0.28	1.09	1.47	2.03	2.81	3.56	1.49	15	2a	
<b>(だいこん葉)</b>													
全員(1歳以上)	1403	3.56	2.10	4.54	15.92	22.90	42.97	59.65	69.77	19.14	191	2b	
小児(1~6歳)	35	6.97	4.99	6.75	24.85	32.84	60.53	94.06	117.02	28.43	284	2b	
春	197	3.34	1.94	4.42	15.20	22.13	43.58	59.52	74.29	19.92	199	2b	
夏	167	4.64	2.62	6.05	22.01	31.68	50.02	70.89	95.69	21.87	219	2b	
秋	545	3.81	2.18	5.04	17.76	25.68	45.71	62.40	80.94	22.26	223	2b	
冬	205	2.61	1.64	3.16	10.86	15.43	31.92	45.80	62.29	12.76	128	2b	
東日本	805	3.49	1.98	4.67	16.28	23.61	43.50	56.30	100.90	18.37	184	2b	
西日本	598	3.67	2.31	4.31	15.24	21.25	40.53	53.67	63.14	19.98	200	2b	

注)斜体の数値は、例数(摂取者人数)が120未満であり、参考データとして示した。

表3b-1 確率モデルによる短期暴露量の推定

Difenoconazole ARfD: 0.3 mg/kg bw

		(μg/day/kg)										試算 ケース
摂取者 人数	平均値	中央値	標準 偏差	97.5 %tile	99 %tile	99.9 %tile	99.99 %tile	99.999 %tile	1点 推定 法	%ARfD		
<b>(キャベツ)</b>												
全員(1歳以上)	17465	0.13	0.05	0.25	0.77	1.21	2.74	5.25	6.91	1.84	1	2b
小児(1~6歳)	660	0.21	0.09	0.38	1.18	1.82	4.21	7.78	8.52	2.89	1	2b
春	3670	0.13	0.05	0.25	0.77	1.20	2.76	5.36	6.84	1.95	1	2b
夏	3399	0.12	0.05	0.24	0.71	1.10	2.46	5.21	9.85	1.73	1	2b
秋	3598	0.13	0.05	0.26	0.75	1.17	2.88	6.14	9.51	1.78	1	2b
冬	3571	0.13	0.05	0.26	0.77	1.22	3.05	6.10	8.44	1.82	1	2b
東日本	9360	0.13	0.06	0.26	0.77	1.22	2.90	6.45	7.73	1.84	1	2b
西日本	8105	0.12	0.05	0.25	0.73	1.13	2.77	6.41	9.08	1.84	1	2b
<b>(にら)</b>												
全員(1歳以上)	4214	0.09	0.05	0.10	0.39	0.49	0.73	1.03	1.38	0.66	0	2a
小児(1~6歳)	145	0.15	0.10	0.16	0.57	0.74	1.24	1.80	2.05	1.30	0	2b
春	995	0.10	0.06	0.12	0.44	0.56	0.83	1.11	1.92	0.74	0	2a
夏	744	0.09	0.05	0.10	0.39	0.50	0.73	1.07	1.52	0.66	0	2a
秋	844	0.09	0.05	0.10	0.38	0.49	0.71	0.96	1.12	0.63	0	2a
冬	839	0.09	0.05	0.10	0.36	0.46	0.66	0.85	1.27	0.59	0	2a
東日本	2268	0.09	0.06	0.11	0.41	0.51	0.74	1.00	1.20	0.66	0	2a
西日本	1946	0.08	0.05	0.10	0.37	0.48	0.71	0.95	1.24	0.63	0	2a
<b>(トマト)</b>												
全員(1歳以上)	17245	0.45	0.26	0.57	2.08	2.88	4.56	6.55	8.03	3.69	1	2b
小児(1~6歳)	647	0.91	0.50	1.24	4.23	6.06	12.12	16.01	19.18	9.73	3	2b
春	4166	0.46	0.27	0.57	2.10	2.94	4.42	6.24	8.48	3.65	1	2b
夏	4701	0.56	0.33	0.69	2.67	3.49	5.38	8.82	12.05	3.99	1	2b
秋	2375	0.34	0.20	0.42	1.51	2.13	3.66	4.85	6.35	2.98	1	2b
冬	2636	0.35	0.21	0.43	1.54	2.17	3.73	4.91	6.31	2.86	1	2b
東日本	9132	0.49	0.28	0.60	2.22	3.14	4.69	6.45	10.65	3.75	1	2b
西日本	8113	0.42	0.24	0.53	1.91	2.75	4.21	5.84	7.64	3.57	1	2b
<b>(人参)</b>												
全員(1歳以上)	27080	0.09	0.06	0.11	0.40	0.55	1.03	1.71	2.35	0.58	0	2b
小児(1~6歳)	1129	0.22	0.13	0.25	0.89	1.21	2.30	3.98	8.01	1.32	0	2b
春	5358	0.09	0.06	0.11	0.40	0.55	1.05	1.87	2.50	0.62	0	2b
夏	4943	0.08	0.05	0.10	0.35	0.49	0.97	1.61	2.08	0.54	0	2b
秋	5690	0.09	0.06	0.12	0.40	0.56	1.09	1.86	2.30	0.58	0	2b
冬	5789	0.09	0.06	0.11	0.40	0.56	1.10	1.77	2.16	0.54	0	2b
東日本	13805	0.09	0.05	0.11	0.39	0.54	1.04	1.69	2.25	0.54	0	2b
西日本	13275	0.09	0.06	0.12	0.41	0.57	1.11	1.82	2.63	0.62	0	2b

注)斜体の数値は、例数(摂取者人数)が120未満であり、参考データとして示した。

表3b-2 確率モデルによる短期暴露量の推定

Difenoconazole ARfD: 0.3 mg/kg bw

(μg/day/kg)												
	摂取者 人数	平均値	中央値	標準 偏差	97.5 %tile	99 %tile	99.9 %tile	99.99 %tile	99.999 %tile	1点 推定 法	%ARfD	試算 ケース
<b>(りんご)</b>												
全員(1歳以上)	8957	0.63	0.43	0.62	2.32	3.06	4.89	6.74	7.55	3.97	1	2b
小児(1~6歳)	402	1.39	0.81	1.74	6.27	8.30	15.07	21.98	32.64	8.91	3	2b
春	1265	0.56	0.37	0.58	2.16	2.83	4.68	6.45	7.86	3.73	1	2b
夏	759	0.55	0.34	0.63	2.28	3.07	5.26	7.73	12.43	3.52	1	2b
秋	2821	0.65	0.45	0.65	2.38	3.21	5.06	7.17	9.25	4.01	1	2a
冬	2593	0.68	0.49	0.61	2.31	3.03	4.66	6.09	6.70	4.06	1	2a
東日本	4581	0.69	0.47	0.68	2.51	3.45	5.22	7.44	12.29	4.13	1	2a
西日本	4376	0.57	0.39	0.57	2.16	2.79	4.67	6.42	7.82	3.50	1	2b
<b>(はなやさい(ブロッコリー))</b>												
全員(1歳以上)	5540	0.23	0.10	0.36	1.27	1.85	3.44	4.22	4.80	2.40	1	2b
小児(1~6歳)	232	0.44	0.20	0.70	2.38	3.46	6.91	10.89	12.73	6.97	2	2b
春	987	0.22	0.10	0.35	1.22	1.78	3.42	4.14	5.24	2.62	1	2b
夏	601	0.22	0.10	0.34	1.20	1.67	3.20	3.97	4.42	2.28	1	2b
秋	1385	0.23	0.10	0.37	1.29	1.90	3.43	4.32	5.50	2.84	1	2b
冬	1415	0.23	0.10	0.36	1.26	1.81	3.42	4.38	4.78	2.27	1	2b
東日本	2846	0.23	0.10	0.36	1.27	1.82	3.46	4.37	4.84	2.50	1	2b
西日本	2694	0.22	0.10	0.35	1.24	1.77	3.46	4.37	5.04	2.31	1	2b
<b>(もも)</b>												
全員(1歳以上)	1356	0.92	0.63	0.89	3.32	4.15	6.37	9.90	14.50	3.90	1	2a
小児(1~6歳)	93	<i>2.00</i>	<i>1.18</i>	<i>2.37</i>	<i>8.85</i>	<i>11.40</i>	<i>17.83</i>	<i>31.39</i>	<i>46.10</i>	<i>12.86</i>	4	2a
春	119	0.63	0.38	0.71	2.69	3.43	5.47	8.81	11.72	3.48	1	2b
夏	877	1.06	0.85	0.79	3.09	3.79	5.10	6.80	8.01	3.87	1	2a
秋	49	<i>0.37</i>	<i>0.22</i>	<i>0.46</i>	<i>1.64</i>	<i>2.35</i>	<i>4.15</i>	<i>5.78</i>	<i>6.90</i>	<i>3.11</i>	1	2b
冬	69	<i>0.24</i>	<i>0.17</i>	<i>0.23</i>	<i>0.86</i>	<i>1.14</i>	<i>2.10</i>	<i>3.32</i>	<i>4.49</i>	<i>2.14</i>	1	2b
東日本	852	0.99	0.71	0.89	3.34	4.12	6.24	11.15	16.95	3.94	1	2a
西日本	504	0.80	0.51	0.84	3.11	4.01	6.10	9.58	12.48	3.88	1	2a
<b>(ぶどう)</b>												
全員(1歳以上)	1709	0.16	0.10	0.17	0.63	0.86	1.59	1.99	2.73	0.93	0	2b
小児(1~6歳)	92	<i>0.41</i>	<i>0.29</i>	<i>0.40</i>	<i>1.47</i>	<i>1.96</i>	<i>3.51</i>	<i>5.59</i>	<i>6.55</i>	<i>2.14</i>	1	2b
春	69	<i>0.12</i>	<i>0.08</i>	<i>0.13</i>	<i>0.45</i>	<i>0.61</i>	<i>1.12</i>	<i>1.82</i>	<i>2.33</i>	<i>0.64</i>	0	2b
夏	1019	0.16	0.12	0.16	0.60	0.80	1.36	1.87	2.10	0.94	0	2b
秋	204	0.13	0.06	0.20	0.67	1.00	1.92	2.85	3.52	0.91	0	2b
冬	29	<i>0.09</i>	<i>0.04</i>	<i>0.16</i>	<i>0.52</i>	<i>0.81</i>	<i>1.82</i>	<i>2.59</i>	<i>2.88</i>	<i>0.70</i>	0	2b
東日本	713	0.17	0.10	0.20	0.73	1.00	1.86	2.45	3.28	0.97	0	2b
西日本	996	0.15	0.10	0.15	0.55	0.75	1.40	1.89	2.13	0.90	0	2b

注) 斜体の数値は、例数(摂取者人数)が120未満であり、参考データとして示した。