

表3c-1 確率モデルによる短期暴露量の推定

				Pyraclostrobin		ARfD: 0.05 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
(ぶどう)												
全員(1歳以上)	1709	2.42	1.43	3.00	10.65	14.81	28.45	37.99	50.53	5.86	12	2b
小児(1~6歳)	92	6.34	4.12	6.99	25.19	33.99	59.51	92.22	121.89	13.48	27	2b
春	69	1.86	1.15	2.22	7.75	10.86	20.00	30.79	37.70	4.04	8	2b
夏	1019	2.59	1.69	2.88	10.32	13.94	25.38	34.76	45.19	5.93	12	2b
秋	204	1.98	0.89	3.31	10.83	16.58	34.73	49.52	79.72	5.70	11	2b
冬	29	1.45	0.57	2.87	8.61	13.63	30.90	55.89	123.62	4.39	9	2b
東日本	713	2.58	1.41	3.53	12.23	17.71	32.97	45.84	58.50	6.08	12	2b
西日本	996	2.32	1.45	2.72	9.71	13.43	24.51	34.22	43.00	5.68	11	2b
(りんご)												
全員(1歳以上)	8957	0.63	0.40	0.68	2.54	3.48	5.23	6.86	7.58	2.37	5	2b
小児(1~6歳)	402	1.38	0.76	1.87	6.60	9.20	16.50	23.05	42.23	5.32	11	2b
春	1265	0.55	0.35	0.62	2.30	3.08	4.85	6.77	8.42	2.23	4	2b
夏	759	0.55	0.32	0.68	2.42	3.42	5.55	7.64	10.56	2.10	4	2b
秋	2821	0.66	0.42	0.71	2.64	3.65	5.30	7.29	9.02	2.39	5	2a
冬	2593	0.67	0.46	0.67	2.51	3.36	4.87	6.32	7.70	2.42	5	2a
東日本	4581	0.69	0.44	0.73	2.71	3.82	5.54	7.57	8.76	2.46	5	2a
西日本	4376	0.57	0.37	0.62	2.32	3.12	4.90	5.96	7.27	2.09	4	2b
(トマト)												
全員(1歳以上)	17245	0.40	0.27	0.39	1.47	1.83	2.67	4.36	6.37	1.74	3	2a
小児(1~6歳)	647	0.79	0.53	0.85	3.21	4.23	6.72	8.80	9.84	4.60	9	2b
春	4166	0.41	0.29	0.39	1.52	1.85	2.70	3.78	5.38	1.73	3	2a
夏	4701	0.50	0.34	0.47	1.78	2.13	3.33	5.05	9.17	1.88	4	2a
秋	2375	0.30	0.21	0.29	1.13	1.44	2.12	3.08	4.78	1.41	3	2b
冬	2636	0.31	0.22	0.29	1.13	1.43	2.10	2.80	3.55	1.35	3	2b
東日本	9132	0.42	0.29	0.41	1.56	1.90	2.83	4.22	5.67	1.77	4	2a
西日本	8113	0.36	0.25	0.36	1.37	1.72	2.47	3.34	4.01	1.68	3	2a
(キャベツ)												
全員(1歳以上)	17465	0.10	0.06	0.15	0.49	0.73	1.59	2.85	4.48	0.87	2	2b
小児(1~6歳)	660	0.16	0.09	0.23	0.76	1.12	2.34	4.36	6.97	1.37	3	2b
春	3670	0.11	0.06	0.15	0.51	0.75	1.59	2.86	4.05	0.92	2	2b
夏	3399	0.10	0.05	0.15	0.47	0.71	1.67	3.29	5.06	0.82	2	2b
秋	3598	0.10	0.06	0.16	0.50	0.76	1.67	3.00	5.83	0.84	2	2b
冬	3571	0.10	0.05	0.16	0.50	0.76	1.66	3.22	5.01	0.86	2	2b
東日本	9360	0.11	0.06	0.16	0.51	0.76	1.64	3.01	4.53	0.87	2	2b
西日本	8105	0.10	0.05	0.16	0.49	0.73	1.67	3.44	5.60	0.87	2	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3c-2 確率モデルによる短期暴露量の推定

Pyraclostrobin ARfD: 0.05 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
(メロン類(果実))												
全員(1歳以上)	1352	0.36	0.23	0.43	1.55	2.05	4.17	5.60	7.06	2.36	5	2b
小児(1~6歳)	87	0.63	0.26	1.17	3.78	5.66	13.22	20.53	31.66	4.09	8	2b
春	502	0.35	0.23	0.38	1.40	1.84	3.69	5.28	7.23	2.03	4	2b
夏	510	0.37	0.26	0.38	1.41	1.88	3.67	4.57	5.99	2.65	5	2b
秋	66	0.31	0.14	0.54	1.75	2.39	5.28	9.45	18.43	2.66	5	2b
冬	35	0.33	0.15	0.53	1.77	2.39	4.96	8.89	13.70	4.32	9	2a
東日本	821	0.36	0.24	0.39	1.42	1.88	3.78	4.97	6.18	2.36	5	2b
西日本	531	0.37	0.20	0.49	1.71	2.25	4.52	7.51	11.50	2.47	5	2b
(きゅうり(含ガーキン))												
全員(1歳以上)	19284	0.21	0.11	0.33	1.06	1.80	3.02	4.74	5.94	2.62	5	2a
小児(1~6歳)	689	0.36	0.18	0.59	1.85	2.87	6.70	8.93	9.96	5.95	12	2b
春	4631	0.22	0.11	0.33	1.10	1.85	2.92	4.15	5.26	2.58	5	2a
夏	5212	0.26	0.14	0.39	1.36	2.25	3.57	5.39	7.24	2.92	6	2a
秋	3025	0.16	0.08	0.25	0.80	1.27	2.49	3.55	4.23	2.24	4	2a
冬	2726	0.15	0.08	0.23	0.76	1.20	2.37	3.34	4.69	2.03	4	2b
東日本	10321	0.22	0.11	0.34	1.12	1.93	3.10	4.40	6.64	2.69	5	2a
西日本	8963	0.20	0.10	0.31	0.98	1.69	2.95	4.32	5.81	2.52	5	2a
(玉ねぎ)												
全員(1歳以上)	25622	0.55	0.12	1.01	3.46	5.02	8.89	12.66	14.99	5.02	10	2b
小児(1~6歳)	1156	1.15	0.26	2.13	6.96	10.17	19.75	31.12	35.12	10.81	22	2b
春	5504	0.61	0.14	1.13	3.88	5.75	9.41	13.34	16.54	5.69	11	2b
夏	5276	0.55	0.12	1.03	3.52	5.14	9.09	11.66	15.51	5.02	10	2b
秋	4854	0.52	0.11	0.98	3.27	4.85	8.80	11.51	13.83	4.86	10	2b
冬	4878	0.50	0.11	0.94	3.15	4.56	8.51	11.36	16.28	4.47	9	2b
東日本	12796	0.54	0.12	1.01	3.42	5.04	8.84	11.40	16.09	5.03	10	2b
西日本	12826	0.56	0.12	1.05	3.56	5.36	8.97	11.77	13.79	5.19	10	2b
(いちご)												
全員(1歳以上)	2459	0.39	0.21	0.53	1.79	2.52	5.19	8.81	14.05	2.80	6	case1
小児(1~6歳)	177	1.10	0.58	1.58	5.20	7.61	14.97	28.86	52.74	8.35	17	case1
春	726	0.42	0.23	0.59	1.99	2.81	5.66	10.98	16.53	3.53	7	case1
夏	14	0.28	0.10	0.66	1.69	2.86	7.77	18.38	25.97	1.11	2	case1
秋	139	0.33	0.18	0.47	1.56	2.26	4.66	8.29	11.59	1.74	3	case1
冬	1173	0.37	0.21	0.47	1.66	2.29	4.28	6.31	9.63	2.50	5	case1
東日本	1350	0.39	0.22	0.53	1.79	2.53	5.03	8.98	14.82	3.05	6	case1
西日本	1109	0.38	0.21	0.52	1.77	2.53	5.03	8.68	16.06	2.84	6	case1
(もも)												
全員(1歳以上)	1356	0.43	0.27	0.46	1.78	2.12	3.32	4.76	10.33	1.95	4	2a
小児(1~6歳)	93	0.93	0.51	1.20	4.43	6.15	9.36	14.90	19.38	6.43	13	2a
春	119	0.29	0.16	0.37	1.36	1.90	2.88	4.10	6.76	1.74	3	2b
夏	877	0.49	0.36	0.43	1.70	1.97	2.63	3.84	5.44	1.94	4	2a
秋	49	0.17	0.10	0.23	0.81	1.17	2.19	2.94	3.52	1.55	3	2b
冬	69	0.11	0.07	0.12	0.43	0.58	1.09	1.69	1.93	1.07	2	2b
東日本	852	0.46	0.30	0.47	1.80	2.13	3.15	5.22	10.59	1.97	4	2a
西日本	504	0.37	0.22	0.42	1.65	2.04	3.07	4.56	6.26	1.94	4	2a

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3c-3 確率モデルによる短期暴露量の推定

		Pyraclostrobin		ARfD: 0.05 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
(オレンジ(含ネーブルオレンジ))												
全員(1歳以上)	805	0.18	0.13	0.17	0.69	0.82	1.12	1.62	2.22	0.90	2	2a
小児(1~6歳)	80	0.40	0.28	0.39	1.52	2.02	2.83	3.53	4.13	2.54	5	2a
春	312	0.20	0.14	0.17	0.72	0.82	1.14	1.44	1.65	0.94	2	2a
夏	129	0.14	0.09	0.13	0.51	0.65	0.90	1.13	1.43	0.75	1	2b
秋	54	0.12	0.09	0.09	0.37	0.45	0.67	0.88	0.94	0.49	1	2b
冬	123	0.18	0.12	0.17	0.67	0.81	1.11	1.50	1.99	0.77	2	2a
東日本	402	0.18	0.12	0.17	0.67	0.81	1.11	1.55	2.00	0.86	2	2a
西日本	403	0.19	0.13	0.17	0.69	0.83	1.09	1.43	1.77	0.92	2	2a
(人参)												
全員(1歳以上)	27080	0.15	0.09	0.20	0.68	0.95	1.89	3.14	4.29	1.07	2	2b
小児(1~6歳)	1129	0.36	0.21	0.44	1.55	2.11	3.77	5.85	6.97	2.44	5	2b
春	5358	0.15	0.09	0.20	0.68	0.94	1.89	3.18	4.20	1.14	2	2b
夏	4943	0.14	0.08	0.18	0.61	0.86	1.68	2.59	3.76	1.00	2	2b
秋	5690	0.16	0.09	0.21	0.69	0.99	2.07	3.21	4.51	1.07	2	2b
冬	5789	0.16	0.09	0.20	0.68	0.94	1.87	3.29	4.94	1.00	2	2b
東日本	13805	0.15	0.09	0.20	0.68	0.96	1.88	3.16	3.96	1.00	2	2b
西日本	13275	0.16	0.09	0.20	0.69	0.99	1.92	3.02	4.37	1.14	2	2b
(にんにく)												
全員(1歳以上)	2056	0.02	0.01	0.02	0.06	0.08	0.14	0.23	0.26	0.19	0	2b
小児(1~6歳)	29	0.04	0.03	0.03	0.12	0.15	0.20	0.26	0.35	0.24	0	2b
春	413	0.01	0.01	0.01	0.06	0.07	0.13	0.17	0.21	0.14	0	2b
夏	438	0.01	0.01	0.01	0.06	0.07	0.13	0.19	0.26	0.14	0	2b
秋	419	0.02	0.01	0.02	0.07	0.09	0.16	0.28	0.33	0.24	0	2b
冬	403	0.02	0.01	0.02	0.06	0.08	0.15	0.21	0.28	0.22	0	2b
東日本	1093	0.01	0.01	0.02	0.06	0.08	0.13	0.18	0.28	0.19	0	2b
西日本	963	0.02	0.01	0.02	0.06	0.08	0.14	0.21	0.25	0.19	0	2b
(グレープフルーツ)												
全員(1歳以上)	1000	1.10	0.59	1.26	4.81	5.55	7.89	10.52	13.50	6.11	12	2a
小児(1~6歳)	29	2.70	1.43	3.47	14.43	16.70	23.83	34.50	44.16	17.95	36	2a
春	452	1.09	0.58	1.26	4.84	5.64	7.97	10.05	11.83	6.11	12	2a
夏	204	1.16	0.62	1.31	4.99	5.74	7.87	10.79	15.19	6.32	13	2a
秋	86	1.13	0.61	1.25	4.73	5.40	7.32	9.59	11.98	5.67	11	2a
冬	107	1.09	0.58	1.19	4.51	5.05	6.43	7.92	8.97	5.71	11	2a
東日本	733	1.09	0.58	1.25	4.78	5.55	7.70	10.78	15.47	6.05	12	2a
西日本	267	1.14	0.61	1.30	4.97	5.75	8.08	10.57	14.60	6.28	13	2a

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。

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。

このようなことから本研究課題では、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。また、試算に必要な農作物のユニット重量についてもデータを蓄積した。1 点推定法による試算はこれまでも行われていたが、モンテカルロシミュレーションを用いた確率モデルによる推定のための条件設定について、検討を進めた。ヒトの 1 日摂取量として想定されない上限値の考慮、LOQ 未満の作物残留データの取り扱い、必要な作物残留データ試験の例数、年齢・季節変動・地域差についての考慮に関して検討し、6 例以上の例数があれば、確率モデルを適用する意味はあるのではないかと考えられた。

これらの検討結果を踏まえて、MS-Excel 2010 (Windows 版) にアドインマクロ (Crystal Ball (Oracle 社) を加えた環境下で、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、Bifenthrin についての小児におけるいちご摂取に関するシミュレーション結果のように、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。

E. 結論

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ことを期待される。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。

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 なし

H. 知的所有権の取得状況 なし

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24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、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汚染実態把握を目的とした。平成24年度は、1)卸売市場で通年流通される野菜の分析、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、前年度に引き続き「道の駅」等で購入した野菜・果実の分析、3)前年度に引き続き茶の加工工程における農薬の消長の研究を実施した。

1)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。また、病害虫の発生時期により、農薬検出率に季節変動が見られた。1検体あたりの検出農薬数が約1農薬であったため、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（関西地区）では、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)農薬の消長試験では、原料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で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では、保存期間が長くなるほど、農薬の減衰量が多くなった。

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、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)茶の加工工程におけ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) 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）

1)-B. 研究方法

平成24年度は、検出農薬の季節変動が考えられる作物として、通年流通される野菜（以下通年野菜）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、表1のとおり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）¹⁾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。

分析項目186成分のリストを表2に、分析法の分析フローを図1に、機器の分析条件を表3に示した。

1)-C. 研究結果

ハウレンソウは赤色根部を含み、ひげ根および変質葉を除去したもの、コマツナは根および変質葉を除去したもの、キュウリはつるを除去したものを検査部位とした。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4～9に分析結果を示す。

分析した試料について、生産地を関東地方（埼玉県、群馬県、茨城県、栃木県および千

葉県）と東北地方（秋田県、山形県および福島県）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（表4）。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（表5）。また、年間の総検査数（検体数×項目数）あたりの農薬検出率は0.51%であったが、雨季のみ検出率が0.88%に上昇した（表6）。

検出量の範囲は0.005～0.84 ppmで、検出量が0.01 ppm未満は18農薬、0.01～0.1 ppmは37農薬、0.1～1.0 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（表5）。

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（表7）。

検出農薬を用途別で見ると、検出された67農薬のうち、約7割（73.1%、49農薬）が殺虫剤で、他はすべて殺菌剤であった（26.9%、18農薬、表8）しかしながら、殺菌剤の検出率を作物分類別で見ると、葉菜類（ハウレンソウおよびコマツナ）が1割未満であるのに対し、果菜類（キュウリ）は6割以上であった（表8）。

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、最も多く検出されたの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 (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²⁾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変動し、夏秋季になると東北地方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%)³⁾ 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、問題の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ゾ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。一方、16 試料から検出されたシペルメトリンなどのピレスロイド系農薬は、平成 22 年度の調査と比較すると、約 3 倍の検出率であった。ピレスロイド系農薬は、アブラムシ等の害虫に幅広い防除効果を示す殺虫剤であり、これがネオニコチノイド系農薬とともに多用されたものと思われた。

また、検出農薬を用途別で見ると、葉菜類では検出された農薬の 9 割以上が殺虫剤であるのに対し、果菜類では 6 割が殺菌剤であった。これは、べと病やうどんこ病、灰色かび病など果菜類に発生する病害が葉菜類より多いため⁴⁾、ジカルボキシイミド系殺菌剤やストロビルリン系殺菌剤が多用されたものと思われた。

今回の汚染実態調査においてはネオニコチノイド系農薬が多く検出され、ネオニコチノイド系農薬が多用されている現状がうかがえた。ネオニコチノイド系殺虫剤は浸透性が高い農薬であり、昆虫には毒性を示すが、人など哺乳類には比較的安全とされている。ミツバチの蜂群崩壊症候群 (Colony Collapse Disorder、CCD) の原因である可能性もあり⁵⁾、海外ではネオニコチノイド系農薬での種子処理が懸念されている⁶⁾。厚生労働省はイミダクロプリドとジノテフランの基準値をそれぞれ 2011 年 12 月と 2012 年 4 月に変更して

おり、その際の TMDI 試算による暴露評価では、幼児で対 ADI 比が 77.5%と 34.0%になっている。摂取量調査を行い、安全性を再確認しておくことが望ましいと考えられる。

1)-E. 結論

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 0.005~0.84 ppm であった。検出農薬の 9 割以上が基準値比 10%未未満であり、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の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る。

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った。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)

2)-B. 研究方法

8 種の野菜・果実につき、それぞれ 3 箇所

の直売所 (大阪府および兵庫県) 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と府県、産地を表 10 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)¹⁾ 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 11 に 378 成分のリストを示す。また、分析フローを図 2 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12に、traceとして検出された農薬を表13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「小松菜」における「イミダクロプリド」の0.03 ppmであり、非常に低い値であった。

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。測定不能項目を、平成23年度の結果とともに表14に示す。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。

農薬検出率を計算すると、
総項目数=検体数×項目数=8×378=3024、
検出農薬数=2、trace農薬数=7、測定不能成分数=104から、
農薬検出率(trace含まず)= $2 / (3024-104) \times 100 = 0.07$ (%)
農薬検出率(trace含む)= $(7+2) / (3024-104) \times 100 = 0.31$ (%)
となった。

ただし、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、アニロホスが水稲用除草剤ですだちへの適用がないこと、剤型は粒剤あるいはジャンボ剤でドリフトの可能性は殆どないこと、アニロホスを含む農薬は2010年8月を最後に全て失効しており使用される可能性は極めて低いことから追加確認分析を実施した。すなわち、冷凍保存(-20℃)しておいたtrace農薬を検出したすだち抽出試料をLC-MS/MS、

GC-MS/MSおよびGC-MS(試験と同一測定条件)にて分析したところ、LC-MS/MSとGC-MS/MSではアニロホスに該当するピークは認められなかった。また、試験と同じ測定条件によるGC-MSでは、再度下限値(0.01 ppm)以下で該当するピークが認められた。このことから、GC-MS法ですだち中からアニロホス部位に検出されたtraceピークは、アニロホスではないことが判明した。

2)-D. 考察

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か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低いレベルであった。

2)-E. 結論

昨年度の直売所品は、平成22年度末に基準値違反が見つかった千葉県を中心に購入したが、今年度は関西地区で購入した。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大変低かった。

3) 茶の加工工程による農薬の消長の研究

3)-B. 研究方法

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(商品名:コテツフロアブル、日本曹達(株)製)、ピリミホスメチル(商品名:アクテリック乳剤、日本農薬(株)製)およびクロチアニジン(商品名:ダントツ水溶剤、住友化学(株)製)を用いた。散布方法は、表15のとおり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。この生茶葉を用いて図 3 の製造工程に従って普通煎茶を作製し、これらを加工茶とした。また、加工茶を各 10 g 採り、それぞれ 100℃の水 500 mL 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。

試験溶液を調製は、岩屋らの方法等⁷⁾を参考に厚生労働省から通知されている一斉試験法（通知法〔農産物〕）¹⁾を一部変更して行った（図 4-1、2）。生茶葉、加工茶および茶浸出液（n=3）について調製した試験溶液を表 16 の機器条件で分析し、農薬の残留を調べた。農薬の濃度は、図 5 の方法に従って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。

3)-C. 研究結果

各農薬を散布した生茶葉に対する加工茶、茶浸出液の農薬残存量および残存率を表 17 に示す。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%)、

クロチアニジンを散布した生茶葉が 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（表 18）。

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（図 6）。

3)-D. 考察

成分の違いによる農薬消長の比較では、平成 23 年度にクロルフェナピル、ビフェントリンおよびフルフェノクスロンを用いて実施したが、加工茶、茶浸出液とも成分による有意差は認められなかった。また、加工茶に対する茶浸出液の農薬移行率は 0.3~2.7%であったが、これは、水溶性の高い農薬が含まれていなかったため、農薬が浸出液にほとんど移行しなかったものと思われた。そこで、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⁸⁾では、移行率と水溶解度およびオクタノール/水分係数

($\log P_{ow}$) 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 $\log P_{ow}$ 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。

3)-E. 結論

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った。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った。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った。

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」⁹⁾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. 参考文献

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) 佐藤ら:温室密閉による高温処理が夏キュウリの生育ならびに病害虫発生におよぼす影響 園学雑, 72(1), 56-63(2003)

5) Ratnieks FLW and Carreck NL.: Ecology. Clarity on honey bee collapse? Science. 327(5962), 152-3 (2010)

6) Maxim L and van der Sluijs J.: Seed-dressing systemic insecticides and honeybees. In *Late lessons from early warnings: science, precaution, innovation Part B*. European Environment Agency, pp. 401-438 (2013)

7) 岩屋ら:茶の残留農薬一斉分析における精製法の検討 鹿児島県環境保健センター所報, 11, 102-108(2010)

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

9) 「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. 研究発表

1. 論文発表

近藤貴英、渡邊綾香、設楽紘史、蕪木康郎、柴田雅久、神田典子、黒川千恵子、井上 豊、宮崎元伸、外側正之、小澤朗人、内山 徹、小泉 豊、中村順行、増田修一、米谷民雄:茶の加工工程および熱湯浸出時における農薬の消長 食衛誌 投稿中

2. 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)

H. 知的財産権の出願・登録状況
なし

表1 分析試料

No.	品名	生産地	No.	品名	生産地
1	キュウリ(春季)-1	茨城県	41	コマツナ(夏季)-3	埼玉県
2	キュウリ(春季)-2	群馬県	42	コマツナ(夏季)-4	埼玉県
3	キュウリ(春季)-3	埼玉県	43	コマツナ(夏季)-5	埼玉県
4	キュウリ(春季)-4	埼玉県	44	キュウリ(秋季)-1	埼玉県
5	キュウリ(春季)-5	埼玉県	45	キュウリ(秋季)-2	茨城県
6	ハウレンソウ(春季)-1	埼玉県	46	キュウリ(秋季)-3	群馬県
7	ハウレンソウ(春季)-2	埼玉県	47	キュウリ(秋季)-4	群馬県
8	ハウレンソウ(春季)-3	埼玉県	48	キュウリ(秋季)-5	群馬県
9	ハウレンソウ(春季)-4	群馬県	49	ハウレンソウ(秋季)-1	群馬県
10	ハウレンソウ(春季)-5	茨城県	50	ハウレンソウ(秋季)-2	群馬県
11	コマツナ(春季)-1	茨城県	51	ハウレンソウ(秋季)-3	秋田県
12	コマツナ(春季)-2	埼玉県	52	ハウレンソウ(秋季)-4	栃木県
13	コマツナ(春季)-3	埼玉県	53	ハウレンソウ(秋季)-5	埼玉県
14	コマツナ(春季)-4	埼玉県	54	コマツナ(秋季)-1	埼玉県
15	キュウリ(雨季)-1	埼玉県	55	コマツナ(秋季)-2	埼玉県
16	キュウリ(雨季)-2	埼玉県	56	コマツナ(秋季)-3	埼玉県
17	キュウリ(雨季)-3	埼玉県	57	コマツナ(秋季)-4	群馬県
18	キュウリ(雨季)-4	千葉県	58	コマツナ(秋季)-5	群馬県
19	キュウリ(雨季)-5	茨城県	59	キュウリ(冬季)-1	群馬県
20	ハウレンソウ(雨季)-1	埼玉県	60	キュウリ(冬季)-2	群馬県
21	ハウレンソウ(雨季)-2	埼玉県	61	キュウリ(冬季)-3	群馬県
22	ハウレンソウ(雨季)-3	栃木県	62	キュウリ(冬季)-4	群馬県
23	ハウレンソウ(雨季)-4	群馬県	63	キュウリ(冬季)-5	埼玉県
24	コマツナ(雨季)-1	埼玉県	64	ハウレンソウ(冬季)-1	山形県
25	コマツナ(雨季)-2	埼玉県	65	ハウレンソウ(冬季)-2	群馬県
26	コマツナ(雨季)-3	埼玉県	66	ハウレンソウ(冬季)-3	群馬県
27	コマツナ(雨季)-4	埼玉県	67	ハウレンソウ(冬季)-4	群馬県
28	コマツナ(雨季)-5	群馬県	68	ハウレンソウ(冬季)-5	群馬県
29	キュウリ(夏季)-1	秋田県	69	コマツナ(冬季)-1	埼玉県
30	キュウリ(夏季)-2	秋田県	70	コマツナ(冬季)-2	埼玉県
31	キュウリ(夏季)-3	福島県	71	コマツナ(冬季)-3	埼玉県
32	キュウリ(夏季)-4	山形県			
33	キュウリ(夏季)-5	山形県			
34	ハウレンソウ(夏季)-1	群馬県			
35	ハウレンソウ(夏季)-2	群馬県			
36	ハウレンソウ(夏季)-3	茨城県			
37	ハウレンソウ(夏季)-4	栃木県			
38	ハウレンソウ(夏季)-5	秋田県			
39	コマツナ(夏季)-1	群馬県			
40	コマツナ(夏季)-2	群馬県			

表2 分析項目リスト-1

No.	項目	No.	項目
1	メビンホス	51	EPN
2	エトプロホス	52	ホスメット
3	サリチオン	53	ホサロン
4	カズサホス	54	ピラゾホス
5	ホレート	55	ピラクロホス
6	テルブホス	56	ベンフルラリン
7	ダイアジノン	57	シマジン
8	シアノホス	58	クロマゾン
9	フォノホス	59	トリアレート
10	エチルチオメトン(ジスルホトン)	60	アセトクロール
11	イサゾホス	61	アラクロール
12	エトリムホス	62	ジエトフェンカルブ
13	イプロベンホス	63	エトフセメート
14	ホルモチオン	64	クロルタールジメチル
15	ジクロフェンチオン	65	テトラコナゾール
16	クロルピリホスメチル	66	トリアジメホン
17	トルクロホスメチル	67	ペンコナゾール
18	パラチオンメチル	68	メカルバム
19	フェンクロルホス	69	プロシミドン
20	ピリミホスメチル	70	ブタクロル
21	フェニトロチオン	71	オキサジアゾン
22	ジメチルビンホス(E体+Z体)	72	ジクロブトラゾール
23	マラチオン	73	フルアクリピリム
24	クロルピリホス	74	レナシル
25	フェンチオン	75	キノキシフェン
26	パラチオン	76	イプロジオン(イプロジオン代謝物を含む)
27	イソフェンホス(イソフェンホスオキソンを含む)	77	メトキシクロール
28	イソカルボホス	78	ピリプロキシフェン
29	プロモホスメチル	79	メフェナセツト
30	ホスチアゼート	80	フルキンコナゾール
31	クロルフェンビンホス(E体+Z体)	81	プロパクロール
32	フェントエート	82	クロロプロファム
33	キナルホス	83	アトラジン
34	プロモホスエチル	84	ベノキサコール
35	プロパホス	85	ジチオピル
36	メチダチオン	86	チオベンカルブ
37	テトラクロルビンホス	87	フェンプロピモルフ
38	ブタミホス	88	ニトロタールイソプロピル
39	フェナミホス	89	ジメタメトリン
40	プロチオホス	90	ピリフェノックス(E体+Z体)
41	イソキサチオン	91	ジメピペレート
42	エチオン	92	パクロブトラゾール
43	フェンスルホチオン	93	フェノチオカルブ
44	スルプロホス	94	チフルザミド
45	トリアゾホス	95	アザコナゾール
46	カルボフェノチオン	96	プロピコナゾール
47	シアノフェンホス	97	ジクロホップメチル
48	エディフェンホス	98	プロパルギット
49	ピリダフェンチオン	99	ピリブチカルブ
50	ピペロホス	100	シハロポップブチル

表2 分析項目リスト-2

No.	項目	No.	項目
101	ペルメトリン	151	メトキシフェノジド
102	エトフェンプロックス	152	ブタフェナシル
103	ピリミジフェン	153	クロマフェノジド
104	ジフェノコナゾール	154	イプロバリカルブ
105	エタルフルラリン	155	シメコナゾール
106	BHC (α 体+ β 体+ γ 体+ δ 体)	156	フェノキシカルブ
107	テフルトリン	157	アニロホス
108	ビンクロゾリン	158	シフルフェナミド
109	ヘプタクロル(ヘプタクロルエポキシドを含む)	159	ピラゾレート
110	ペンディメタリン	160	インドキサカルブ
111	キャプタン	161	ベンゾフェナップ
112	エンドスルファン($\alpha + \beta$)	162	クロキントセットメキシル
113	DDT(p,p' -DDE+ p,p' -DDD+ o,p' -DDT+ p,p' -DDT)	163	ラクトフェン
114	マイクロブタニル	164	オキサミル
115	フェンプロパトリン	165	チオジカルブ・メソミル(メソミルオキシムを含む)
116	テトラジホン	166	ジメトエート
117	フェナリモル	167	ジオキサカルブ
118	シフルトリン	168	フトキシカルボキシム(フトキシカルボキシムスルホキシドを含む)
119	フルシトリネート	169	アルジカルブ
120	フルバリネート	170	ホスファミドン(1+2)
121	デルタメトリン・トラロメトリン	171	プロボクスル
122	トリフルラリン	172	ベンダイオカルブ
123	ジクロラン	173	カルボスルファン(カルボフラン、3-ヒドロキシカルボフランを含む)
124	ジメチピン	174	アミノカルブ
125	キントゼン	175	カルバリル
126	プロピザミド	176	キシリカルブ
127	プロモブチド	177	XMC
128	イソプロチオラン	178	ピリミカルブ
129	オキシフルオルフェン	179	トリメタカルブ
130	クレソキシムメチル	180	フェノブカルブ
131	クロルフェナピル	181	プロメカルブ
132	ノルフルラジン	182	アジンホスエチル
133	プロモプロピレート	183	テルブカルブ
134	シハロトリン(λ -シハロトリンを含む)	184	フラチオカルブ
135	ピリダベン	185	カルボフラン(3-ヒドロキシカルボフランを含む)
136	シベルメトリン	186	オリザリン
137	フェンバレレート(エスフェンバレレートを含む)		
138	アゾキシストロビン		
139	チアメトキサム		
140	イミダクロプリド		
141	クロチアニジン		
142	クロリダゾン		
143	オキシカルボキシム		
144	チアクロプリド		
145	アザメチホス		
146	ジメチリモール		
147	イソキサフルトール		
148	アジンホスメチル		
149	ピリフタリド		
150	フェリムゾン(E+Z)		

表3-1 機器条件-1

GC-MS (EI) 条件	
機器	Agilent 5975 inert MSD
カラム	Agilent DB-5MS(0.25 μm、0.25mm × 30m)
注入口温度	250°C
AUX温度	290°C
カラム温度	50°C(1min)-25°C/min-125°C-10°C/min-300°C(15min)
カラム流量	1.0mL/min
試料注入量	2 μL
注入方法	スプリットレス
イオン化	EI
イオン源温度	230°C
四重極温度	150°C

GC-MS (CI) 条件	
機器	Agilent 5975 inert MSD
カラム	Agilent HP-5MS(0.25 μm、0.25mm × 30m)
注入口温度	250°C
AUX温度	250°C
カラム温度	50°C(1min)-25°C/min-150°C-4°C/min-200°C-10°C/min-280°C(5min)-20°C/min-300°C(8.5min)
カラム流量	1.0mL/min
試料注入量	1 μL
注入方法	スプリットレス
イオン化	NCI
イオン源温度	150°C
四重極温度	150°C

表3 機器条件-2

GC-MS/MS条件	
機器	Bruker GCMSMS SCION TQ
カラム	VARIAN VF-5ms(0.25 μm、0.25mm × 30m+EZGuard 10m)
注入口温度	250°C
トランスファーライン温度	270°C
カラム温度	50°C(1min)-25°C/min-150°C-5°C/min-200°C-15°C/min-280°C(5min)-20°C/min-300°C(4.67min)
カラム流量	1.0mL/min
試料注入量	2 μL
注入方法	スプリットレス
イオン化	EI
イオン源温度	230°C

LC-MS/MS条件	
機器	Waters ACQUITY UPLC/Quattro Premier EX
カラム	Waters ACQUITY UPLC BEH C18 1.7 μm 2.1 × 100mm
移動相	A液: 5mM酢酸アンモニウム水溶液 B液: 5mM酢酸アンモニウムメタノール溶液 グラジエント条件 B液: 0min(5%)-11min(95%)-12min(95%)
カラム温度	40°C
流速	0.3mL/min
注入量	5 μL
イオン化	ESI, ホジティブモード, ネガティブモード(オキサリン, イブロン代謝物)
キャピラリー電圧	+3.0kV
脱溶媒ガス	850L/hr
コーンガス	50L/hr
脱溶媒温度	450°C
イオン源温度	120°C

表4 季節による通年野菜の流通状況

産地	春季	雨季	夏季	秋季	冬季	合計
関東地方*1	14	14	9	14	12	63
東北地方*2	0	0	6	1	1	8
合計	14	14	15	15	13	71

*1 埼玉県, 群馬県, 茨城県, 栃木県, 千葉県

*2 秋田県, 山形県, 福島県

表5 試料別農薬検出状況-1

No.	品名	農薬名	測定値 (ppm)	基準値 (ppm)	基準値比(%)
1	キュウリ(春季)-1	プロシミドン	0.047	5	0.9
		マイクロブタニル	0.018	1	1.8
2	キュウリ(春季)-2	クロルフェナピル	0.046	0.5	9.2
		アゾキシストロビン	0.15	1	15.0
3	キュウリ(春季)-3	プロシミドン	0.006	5	0.1
4	キュウリ(春季)-4	検出なし	—	—	—
5	キュウリ(春季)-5	プロシミドン	0.047	5	0.9
6	ホウレンソウ(春季)-1	検出なし	—	—	—
7	ホウレンソウ(春季)-2	イミダクロプリド	0.42	15	2.8
8	ホウレンソウ(春季)-3	検出なし	—	—	—
		チアトキサム	0.034	10	0.3
9	ホウレンソウ(春季)-4	クロチアニジン	0.17	3	5.8
		シペルメトリン	0.007	2.0	0.4
10	ホウレンソウ(春季)-5	ホスチアゼート	0.017	0.1	17.0
11	コマツナ(春季)-1	検出なし	—	—	—
12	コマツナ(春季)-2	検出なし	—	—	—
13	コマツナ(春季)-3	検出なし	—	—	—
14	コマツナ(春季)-4	検出なし	—	—	—
15	キュウリ(雨季)-1	プロシミドン	0.011	5	0.2
		プロシミドン	0.053	5	1.1
16	キュウリ(雨季)-2	クロルフェナピル	0.031	0.5	6.2
		クロチアニジン	0.007	2	0.4
17	キュウリ(雨季)-3	クロチアニジン	0.017	2	0.9
		プロシミドン	0.012	5	0.2
18	キュウリ(雨季)-4	クレソキシムメチル	0.008	0.5	1.6
		クロルフェナピル	0.009	0.5	1.8
		シペルメトリン	0.008	0.5	1.6
19	キュウリ(雨季)-5	イミダクロプリド	0.070	1	7.0
		シフルフェナミド	0.012	0.3	4.0
20	ホウレンソウ(雨季)-1	ペルメトリン	0.017	2.0	0.9
		イミダクロプリド	0.007	15	0.05

表5 試料別農薬検出状況-2

No.	品名	農薬名	測定値 (ppm)	基準値 (ppm)	基準値比 (%)
21	ホウレンソウ(雨季)-2	クロチアニジン	0.049	3	1.6
22	ホウレンソウ(雨季)-3	シペルメリン	0.048	3	1.6
		フェンバレレート	0.009	0.50	1.8
23	ホウレンソウ(雨季)-4	イミダクロプリド	0.29	15	2.0
		トルクロホスメチル	0.009	2.0	0.5
24	コマツナ(雨季)-1	検出なし	—	—	—
25	コマツナ(雨季)-2	クロルフェナピル	0.013	5	0.3
26	コマツナ(雨季)-3	クロルフェナピル	0.018	5	0.4
27	コマツナ(雨季)-4	検出なし	—	—	—
		プロシミドン	0.005	5	0.1
28	コマツナ(雨季)-5	シペルメリン	0.37	5.0	7.4
		チアメトキサム	0.010	5	0.2
		クロルフェナピル	0.006	0.5	1.2
29	キュウリ(夏季)-1	アゾキシストロビン	0.052	1	5.2
30	キュウリ(夏季)-2	アゾキシストロビン	0.025	1	2.5
31	キュウリ(夏季)-3	検出なし	—	—	—
32	キュウリ(夏季)-4	検出なし	—	—	—
33	キュウリ(夏季)-5	クレソキシムメチル	0.013	0.5	2.6
34	ホウレンソウ(夏季)-1	イミダクロプリド	0.043	15	0.3
35	ホウレンソウ(夏季)-2	検出なし	—	—	—
36	ホウレンソウ(夏季)-3	検出なし	—	—	—
37	ホウレンソウ(夏季)-4	シペルメリン	0.008	3	0.3
38	ホウレンソウ(夏季)-5	クロルフェナピル	0.006	2	0.3
		シペルメリン	0.021	5.0	0.4
39	コマツナ(夏季)-1	クロチアニジン	0.006	1	0.6
		チアメトキサム	0.059	5	1.2
40	コマツナ(夏季)-2	フェントエート	0.005	0.1	5.0
41	コマツナ(夏季)-3	クロルフェナピル	0.018	5	0.4
42	コマツナ(夏季)-4	検出なし	—	—	—
		テフルトリン	0.016	0.5	3.2
43	コマツナ(夏季)-5	イミダクロプリド	0.26	5	5.2

表5 試料別農薬検出状況-3

No.	品名	農薬名	測定値 (ppm)	基準値 (ppm)	基準値比 (%)
44	キュウリ(秋季)-1	検出なし	—	—	—
45	キュウリ(秋季)-2	検出なし	—	—	—
46	キュウリ(秋季)-3	検出なし	—	—	—
47	キュウリ(秋季)-4	チアメトキサム	0.020	0.5	4.0
48	キュウリ(秋季)-5	シフルフェナミド	0.072	0.3	24.0
49	ホウレンソウ(秋季)-1	イミダクロプリド	0.33	15	2.2
		クロチアニジン	0.022	3	0.7
50	ホウレンソウ(秋季)-2	ペルメリン	0.014	2.0	0.7
		シペルメリン	0.12	2.0	5.8
51	ホウレンソウ(秋季)-3	検出なし	—	—	—
52	ホウレンソウ(秋季)-4	検出なし	—	—	—
53	ホウレンソウ(秋季)-5	検出なし	—	—	—
54	コマツナ(秋季)-1	アゾキシストロビン	0.84	15	5.6
55	コマツナ(秋季)-2	エトフェンプロックス	0.47	2	23.4
56	コマツナ(秋季)-3	シペルメリン	0.20	5.0	4.0
57	コマツナ(秋季)-4	フェニトロチオン	0.007	0.5	1.4
		イミダクロプリド	0.050	5	1.0
58	コマツナ(秋季)-5	検出なし	—	—	—
59	キュウリ(冬季)-1	検出なし	—	—	—
60	キュウリ(冬季)-2	検出なし	—	—	—
61	キュウリ(冬季)-3	検出なし	—	—	—
62	キュウリ(冬季)-4	プロシミドン	0.053	5	1.1
63	キュウリ(冬季)-5	ホスチアゼート	0.005	0.2	2.5
64	ホウレンソウ(冬季)-1	シペルメリン	0.010	2.0	0.5
		クロチアニジン	0.012	3	0.4
65	ホウレンソウ(冬季)-2	検出なし	—	—	—
66	ホウレンソウ(冬季)-3	ペルメリン	0.049	2.0	2.5
67	ホウレンソウ(冬季)-4	検出なし	—	—	—
68	ホウレンソウ(冬季)-5	シペルメリン	0.24	2.0	11.8
		イミダクロプリド	0.005	15	0.03
69	コマツナ(冬季)-1	アゾキシストロビン	0.034	15	0.2
70	コマツナ(冬季)-2	検出なし	—	—	—
71	コマツナ(冬季)-3	検出なし	—	—	—