

201234005B

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22～24年度 総合研究報告書

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. 総合研究報告書	
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	7
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	17
米谷 民雄	
その1) 卸売市場品の調査	17
その2) 直売所（道の駅）品等の調査	41
その3) 茶の加工工程による農薬の消長の研究	53
III. 研究成果の刊行に関する一覧表	65
IV. 研究成果の刊行物・別刷	69

I. 総合研究報告書

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22－24年度総合研究報告書

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モデルについて基礎的な検討を行う。

平成22～24年度における主な検討内容と成果は以下の通りである。

1) 一般住民を対象として行われた摂取量調査データ(①40,394人・日のデータセット(うち、1～6歳16,194人・日)、② $n=2,712$ 人 \times 12日 $=32,544$ 人・日)を解析し、個々の農作物に関して、摂取者のデータから算出した多食者摂取量(97.5パーセントイル;1歳以上及び1～6歳)についてのデータベースを整備した。さらに、短期経口暴露評価に重要な農作物について、季節や地域などによる変動要因を検討した。

2) 確率モデルによる短期経口暴露量の推定方法や諸条件を検討するために、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、試算に必要な作物残留試験のデータ数を検討した。作物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。また、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。

3) JMPR がARfDを勧告しており、国内で登録のある15農薬について、1点推定法による試算を行った。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)等において、%ARfDを超える短期経口暴露量が試算された。

4) 確率モデルによる経口暴露量推定を容易に行うために、自動計算可能なツール(スプレッドシート)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。それをを用いて、Bifenthrin等について試算を行った結果、ARfDに対して暴露量が高い場合には、確率モデルによる追加的な情報が有用であること、農作物によって季節変動による影響も考慮することが望ましいことがわかった。

まとめ：わが国において、今後急性参照用量（ARfD）の設定が進み、それにととも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諸条件の検討、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

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を目的とし、以下の3つの研究を実施した。

1) 卸売市場品の調査、2) 直売所品等の調査、3) 茶の加工工程における農薬の消長の研究。

1) では、平成22年度は皮ごと摂取可能あるいは生で摂取する野菜・果実の分析、平成23年度は、複数の農薬暴露による相互作用の観点から重要と考えられる柑橘類の分析、平成24年度は、検出農薬の季節変動の観点から重要と考えられる通年野菜の分析を実施した。総検査数あたりの農薬検出率は農産物に発生する病害虫の数や発生時期により異なったが、農産物の中でも発生する病害虫の数が多い柑橘類での検出率が他よりも高かった。検出された農薬について食品分類からの基準値を適用させると、一律基準を超えたものが1試料あったが、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。その他には基準値を超えた試料はなく、GAPに従って適正に農薬が使用されていることが示唆された。

2) では、本研究では汚染実態把握のため、できるだけ多くの農薬を検出する目的で、同一品目で異なる地域・生産者の3製品を等量混合して分析する方法を採用した。平成22年度の果皮も混入する加工食品の分析では基準値を超えた農薬はなく、原材料の基準値/定量値の比は100~500で、いずれも大変低いレベルであった。みかんの分析においては、果肉では3県のうち2県からジノテフランのみが定量されたが低濃度であり、基準値/定量値の比は67~100であった。外果皮からは多くの農薬が検出されたが、いずれも食品分類による基準値以下であった。平成23、24年度は直売所（道の駅）購入品（野菜・果実）を対象としたが、検出された農薬はいずれも基準値以下で、23年度の最高値は「かぼす」の「メチダチオン」0.54 ppmで、24年度は「小松菜」の「イミダクロプリド」0.03 ppmであった。分析法として約400農薬の一斉分析法を採用したが、平成23年度は総分析項目数2646（検体数×項目数=7×378）のうち61が測定不能であり、柑橘類外果皮中の物質によるイオン抑制効果が考えられた。平成24年度も総分析項目数3024（8×378）のうち104が測定不能であり、ねぎの21農薬が最多であった。

3) では、原料である生茶葉から製品となる加工茶、さらに茶浸出液に至るまでの過程での、農薬の減少を調べた。加熱、発酵等の加工工程が入ることにより、農薬の減少が見られた。また、加工条件による農薬の消長は、加熱時間や発酵時間が長いほど、茶葉への熱伝導率が高いほど、農薬の減少が大きかった。さらに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。一方、粒度の違いによ

る減少には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、農薬の減少量が多くなった。

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）

分析委託

（株）住化分析センター

A. 研究目的

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。

そこで本分担研究課題において、種々の検討を行った。

II. 食品中残留農薬の汚染実態把握に関する研究

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。

B. 研究内容

本研究課題は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

関する研究と、Ⅱ．食品中残留農薬の汚染実態把握に関する研究に分かれ、Ⅱはさらに1) 卸売市場品の調査、2) 直売所品等の調査、3) 食品加工で農薬の消長が考えられる食品の研究に分かれる。そのため、それぞれの4つの課題について、個別に総合研究報告書を作成した。

Iでは、①食品摂取量データの検討とデータベース化、②確率モデルによる短期経口暴露量の推定方法の検討、③1点推定法による短期経口暴露量の試算、④確率モデルによる短期暴露量の試算ツールの作成、を行った。

Ⅱの1)では、平成22年度は、農薬を多く摂取することが考えられる皮ごと摂取可能あるいは生で摂取する野菜・果実の分析、平成23年度は複数の農薬暴露による相互作用の観点から重要と考えられる柑橘類の分析、平成24年度は検出農薬の季節変動の観点から重要と考えられる通年野菜の分析を実施した。

Ⅱの2)では、平成22年度は果皮も混入する加工食品の分析、平成23、24年度は直売所(道の駅)購入品を対象とし、平成23年度は関東地区直売所品の分析、平成24年度は関西地区直売所品の分析を実施した。

Ⅱの3)では対象として茶を選び、茶の加工工程における農薬の消長について研究した。

C. 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。

D. 研究発表

1. 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

2)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)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調査について」日本食品衛生学会第102回学術講演会(2011年9月、秋田)

2)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)

3)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)

E. 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

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 22～24 年度総合研究報告書

分担課題：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 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モデルについて基礎的な検討を行う。

平成 22～24 年度における主な検討内容と成果は以下の通りである。

- 1) 一般住民を対象として行われた摂取量調査データ (①40,394 人・日のデータセット(うち、1～6歳 16,194 人・日)、②n=2,712 人×12 日=32,544 人・日)を解析し、個々の農作物に関して、摂取者のデータから算出した多食者摂取量(97.5 パーセンタイル;1歳以上及び1～6歳)についてのデータベースを整備した。さらに、短期経口暴露評価に重要な農作物について、季節や地域などによる変動要因を検討した。
- 2) 確率モデルによる短期経口暴露量の推定方法や諸条件を検討するために、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、試算に必要な作物残留試験のデータ数を検討した。作物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。また、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。
- 3) JMPR が ARfD 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った。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)等において、%ARfD を超える短期経口暴露量が試算された。
- 4) 確率モデルによる経口暴露量推定を容易に行うために、自動計算可能なツール(スプレッドシート)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。それを用いて、Bifenthrin 等について試算を行った結果、ARfD に対して暴露量が高い場合には、確率モデルによる追加的な情報が有用であること、農作物によって季節変動による影響も考慮することが望ましいことがわかった。

まとめ: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諸条件の検討、並びに試算のためのツール作成を行った。

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、本分担研究課題では、図1のプロセスに従って種々の検討を行った。

B. 方法

1) 食品摂取量データの検討とデータベース化

全国25市町村の一般住民(1歳以上)を対象に、厚生労働省医薬食品安全局食品安全部から国立健康・栄養研究所への委託事業として、平成17～19年度に実施された摂取量調

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:

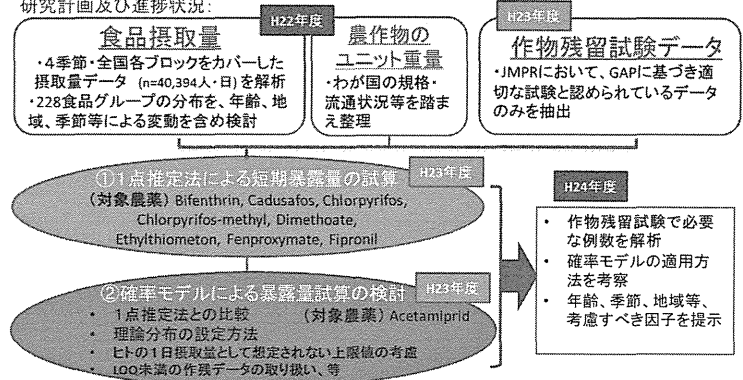


図1 本分担研究課題の計画及び実施状況の概要

査である。調査内容は、国民健康・栄養調査に準じた食物摂取状況調査(世帯に対する秤量記録、比例案分法)で、学校給食についてはより詳細な情報を得るために、調査当日の献立表等を収集し、調査員が摂取した内容を把握した。各年度、5～6月「春」、8～9月「夏」、11～12月「秋」、2～3月「冬」に調査が行われた。原則として、調査対象者にすべての季節に、連続しない3日間(平日の2日及び休日の1日)の調査協力を依頼したが、対象者によ

表1 調査対象者の性・年齢階級別内訳

性別	1-6歳	7-14歳	15-19歳	20-59歳	60歳以上	総計
男性	117	188	181	1213	760	2459
女性	110	193	107	969	672	2051
合計	227	381	288	2182	1432	4510

※年齢は調査初日の年齢を用いた

表2 調査季節および調査日ごとのデータ件数

性別	調査日												延べ人日
	春			夏			秋			冬			
	1	2	3	4	5	6	7	8	9	10	11	12	総計
男性	1,547	1,547	1,549	1,579	1,574	1,577	1,501	1,498	1,495	1,507	1,508	1,510	18,392
女性	1,877	1,875	1,881	1,888	1,882	1,884	1,784	1,783	1,782	1,787	1,789	1,790	22,002
合計	3,424	3,422	3,430	3,467	3,456	3,461	3,285	3,281	3,277	3,294	3,297	3,300	40,394

表3 各対象者における調査実施日数の分布

性別	調査実施日数 (人)												総計
	1	2	3	4	5	6	7	8	9	10	11	12	
男性	6	6	577	3	4	83	4	2	95	13	39	1,219	2,051
女性	9	1	717	2	4	86	3	5	100	10	29	1,493	2,459
合計	15	7	1,294	5	8	169	7	7	195	23	68	2,712	4,510

っては、1つの季節(3日間)のみの協力となった場合もある。データの基本情報を表1-3に示す。

短期経口暴露評価のために構築された食品リストに基づく228食品グループについて、全員(1歳以上; n=40,394人・日)と小児(1-6歳; n=1,609人・日)における、非摂取者を含めた全員の平均摂取量(g/日)、摂取者人数、摂取者における平均摂取量(g/日)と97.5パーセンタイル値(g/日)を求めた。

また、4つの季節でどの程度データの変動があるかを確認するために、摂取者における97.5パーセンタイル値と非摂取者を含む全員の平均値の2つを用い、4季節の平均値を100(%)として、各季節の変動を解析した。なお、この検討においては、すべての季節で計12回調査が実施された2712人×12日=32,544人・日を解析対象とした。さらに、地域によりデータ傾向に差があるかどうかを確認するために、調査地区を東西に分け(「東」:14地区; n=20,5184人・日、「西」:11地区; n=19,8764人・日)比較を行った。

2) 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、今回の試算に用いることとした。対象農薬は、Acetamipridとした。対象農作物は、ハーブ、スパイスなど摂取量の少ないもの、テンサイ・油糧種子のように大規模で加工した

後摂取するものやわが国での食品摂取が無い(あるいは把握されていない)ものを除き、さらに摂取者人数が120例以上であった21種類とした。

- ①1点推定法による試算: 図2に従い算出した。変動係数には3を用いた。
- ②確率モデルを用いた試算: 摂取者における1日摂取量について、対数正規分布を仮定した。また、そのように決定した理論分布に対して、ヒトが1日に摂取できる上限量を仮定し、そのリミットをかけたときと、かけないときとで比較を行った。作物残留データについては、得られたデータ(n=3~18)をそのまま用いた場合と、n>10の場合には観察された分布からブートストラップ法により理論分布を仮定した場合とで、比較を行った。なお、作物残留データがLOQ未満の場合では、LOQの数値を用いた。

確率モデルを適用するために必要な作物残留データ数を検討するために、Acetamipridとトマトの組合せ(n=18)を解析対象として、無作為にn=8, 6, 4, 2のサブセットを抽出(各100標本ずつ)、短期経口暴露量の指標として99.9パーセンタイル値を求め、その平均値、中央値並びに

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。 <small>*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。</small>
	$\frac{LP \times (STMR \text{ or } STMR-P)}{bw}$
	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

変動係数を比較した。

確率モデルには、Crystal Ball (Oracle 社) を用い、モンテカルロ法によるシミュレーションを行った (試行回数 100,000 回)。変動係数については、1 点推定法と同様に 3 を用いた。

3) 1 点推定法による短期経口暴露量の試算

JMPR で急性参照用量を設定されており、わが国でも登録のある 8 農薬 (Bifenthrin, Cadusafos, Chlorpyrifos, Chlorpyrifos-methyl, Dimethoate, Ethylthiometon, Fenproximate, Fipronil 等) 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試算した。なお、ハーブ、スパイスなど摂取量の少ないもの、テンサイ・油糧種子のように大規模で加工した後摂取するもの及び「その他の…類」は、試算から除外した。この際、これまでにわが国で設定された急性参照用量は、いずれも JMPR の設定した値に比べると有意に小さいため、残留濃度として HR ではなく、より大きい値である MRL を使用した。これらの試算結果について、急性参照用量と比較を行った。

4) 確率モデルによる短期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暴露量推定法の考え方 (図2) 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、2) で検討した事項を基に設定した。試算に用いる基礎データとしては、1) で検討した食品摂取量データについて、全員 (1 歳以上)、小児 (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、季節変動や地域差の影響を把握するために、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データから算出したパラメータを加えた。また、「東日本」及び「西日本」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、Bifenthrin 等について検討を行った。基本的にケース 2a ないし 2b 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 例以上の農作物について試算を行った。

C. 結果

1) 食品摂取量データの検討とデータベース化

農作物 228 食品グループについて、全員 (1 歳以上) と幼小児 (1~6 歳) における摂取量についてデータベース化し、その主なパラメータを提示した (平成 22 年度の研究報告書を参照のこと)。

季節変動については、97.5 パーセンタイル値については、特に「とうもろこし」「たけのこ」の変動が大きく、年平均の 150% を超える季節があった。また、地域差については、全般的に「東」において摂取量が高いものの方が、低いものよりも多く、特に「とうもろこし」「やまいも (長いも)」については、非摂取者を含めた平均値、摂取者における平均、並びに 97.5 パーセンタイル値においても、「東」では「西」と比べて高かった。

2) 確率モデルによる短期経口暴露量の推定方法の検討

Acetamiprid に関して、作物残留データ (n=3~18) の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は以下の通りであった。1 日摂取量の分布として、99.999 パーセンタイルまで示したが、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、Acetamiprid の

ARfD(100 μ g/kg bw)を超えることはなかった。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パーセンタイル 4農作物、99~<99.9パーセンタイル 12農作物、99.9~<99.99パーセンタイル 4農作物、 \geq 99.99パーセンタイル 1農作物(ぶどう)であった。おおよそ、99~<99.9パーセンタイルに分布していた。

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た結果、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。さらに、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。

確率モデルのために必要な作物残留データ数を検討するために行った、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を表4に示す。1点推定法1.12 μ /day/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 μ /day/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、偶然に推定結果が大きくなるリスクが高くなることがわかった。

3) 1点推定法による短期経口暴露量の試算
試算結果については平成23年度、24年度研究報告書を参照のこと。

4) 確率モデルによる短期暴露量の試算ツールの作成

MS-Excelシート画面(図3)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3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3の下の表に表されるように、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点推定法との関係を容易に確認することができるようになった。

このツールを用いて試算したBifenthrinについての結果を表5に示す。例えば、いちごの小児における%ARfDは256%である。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 μ g/day/kgとARfDを超えている、すなわちARfDを超えるケースはまれではないことが

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4 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

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

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	登録日	2013.3.3																																																																																																												
<p>摂取量データ</p> <table border="1"> <tr> <th>対象年齢</th> <th>平均値</th> <th>中央値</th> <th>標準偏差</th> <th>95%ile</th> <th>99%ile</th> <th>99.9%ile</th> <th>99.99%ile</th> <th>99.999%ile</th> <th>1点推定法</th> <th>%ARFD</th> <th>試算ケース</th> </tr> <tr> <td>全員(1歳以上)</td> <td>27.46</td> <td>17245</td> <td>84.3</td> <td>59.0</td> <td>382</td> <td>085</td> <td>219.3</td> <td>55.5</td> <td>2a</td> <td>○</td> <td></td> </tr> <tr> <td>小児(1~6歳)</td> <td>15.07</td> <td>847</td> <td>37.7</td> <td>38.0</td> <td>378</td> <td>085</td> <td>147.9</td> <td>18.4</td> <td>2b</td> <td>○</td> <td></td> </tr> <tr> <td>春</td> <td>33.97</td> <td>4166</td> <td>86.4</td> <td>56.8</td> <td>388</td> <td>083</td> <td>214.2</td> <td>56.6</td> <td>2a</td> <td>○</td> <td></td> </tr> <tr> <td>夏</td> <td>47.47</td> <td>4701</td> <td>82.3</td> <td>70.3</td> <td>407</td> <td>087</td> <td>265.2</td> <td>55.6</td> <td>2a</td> <td>○</td> <td></td> </tr> <tr> <td>秋</td> <td>13.81</td> <td>2375</td> <td>46.7</td> <td>37.7</td> <td>355</td> <td>079</td> <td>153.0</td> <td>55.4</td> <td>2b</td> <td>○</td> <td></td> </tr> <tr> <td>冬</td> <td>15.71</td> <td>2636</td> <td>48.6</td> <td>40.1</td> <td>361</td> <td>076</td> <td>147.9</td> <td>55.6</td> <td>2b</td> <td>○</td> <td></td> </tr> <tr> <td>東日本</td> <td>30.82</td> <td>9132</td> <td>69.3</td> <td>60.9</td> <td>390</td> <td>085</td> <td>228.5</td> <td>55.6</td> <td>2a</td> <td>○</td> <td></td> </tr> <tr> <td>西日本</td> <td>23.99</td> <td>8113</td> <td>58.8</td> <td>54.8</td> <td>374</td> <td>083</td> <td>198.9</td> <td>55.4</td> <td>2a</td> <td>○</td> <td></td> </tr> </table>						対象年齢	平均値	中央値	標準偏差	95%ile	99%ile	99.9%ile	99.99%ile	99.999%ile	1点推定法	%ARFD	試算ケース	全員(1歳以上)	27.46	17245	84.3	59.0	382	085	219.3	55.5	2a	○		小児(1~6歳)	15.07	847	37.7	38.0	378	085	147.9	18.4	2b	○		春	33.97	4166	86.4	56.8	388	083	214.2	56.6	2a	○		夏	47.47	4701	82.3	70.3	407	087	265.2	55.6	2a	○		秋	13.81	2375	46.7	37.7	355	079	153.0	55.4	2b	○		冬	15.71	2636	48.6	40.1	361	076	147.9	55.6	2b	○		東日本	30.82	9132	69.3	60.9	390	085	228.5	55.6	2a	○		西日本	23.99	8113	58.8	54.8	374	083	198.9	55.4	2a	○	
対象年齢	平均値	中央値	標準偏差	95%ile	99%ile	99.9%ile	99.99%ile	99.999%ile	1点推定法	%ARFD	試算ケース																																																																																																						
全員(1歳以上)	27.46	17245	84.3	59.0	382	085	219.3	55.5	2a	○																																																																																																							
小児(1~6歳)	15.07	847	37.7	38.0	378	085	147.9	18.4	2b	○																																																																																																							
春	33.97	4166	86.4	56.8	388	083	214.2	56.6	2a	○																																																																																																							
夏	47.47	4701	82.3	70.3	407	087	265.2	55.6	2a	○																																																																																																							
秋	13.81	2375	46.7	37.7	355	079	153.0	55.4	2b	○																																																																																																							
冬	15.71	2636	48.6	40.1	361	076	147.9	55.6	2b	○																																																																																																							
東日本	30.82	9132	69.3	60.9	390	085	228.5	55.6	2a	○																																																																																																							
西日本	23.99	8113	58.8	54.8	374	083	198.9	55.4	2a	○																																																																																																							
残留量	Bifenthrin	ARFD	0.01	単位	mg/kg bw																																																																																																												
<p>作物残留データ</p> <p>HR (mg/kg) n 1 2 3 4 5 6 7 8 9 10 11 12 13 14 15 16 17 18 19 20 21 22 23 24 25 26 27 28 29 30</p> <p>0.15 7 0.03 0.04 0.06 0.06 0.09 0.15 0.15</p>																																																																																																																	

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

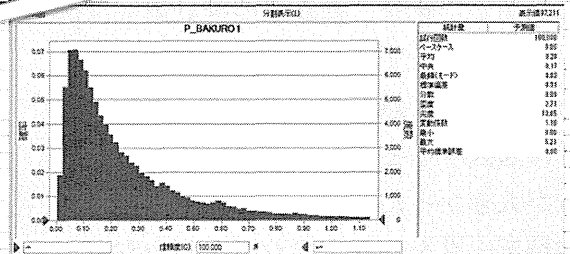
わが国の試験では、十分な例数が得られないので、JMPRの資料から、GAPに基づく適切な値のみを抽出

確率モデルによる短期暴露量の推定

試算日 2013.3.3

対象農薬	Bifenthrin	ARFD	0.01	単位	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																																																																																																														
<p>摂取量データ</p> <table border="1"> <tr> <th>対象年齢</th> <th>平均値</th> <th>中央値</th> <th>標準偏差</th> <th>95%ile</th> <th>99%ile</th> <th>99.9%ile</th> <th>99.99%ile</th> <th>99.999%ile</th> <th>1点推定法</th> <th>%ARFD</th> <th>試算ケース</th> </tr> <tr> <td>全員(1歳以上)</td> <td>0.31</td> <td>0.17</td> <td>0.31</td> <td>1.20</td> <td>1.54</td> <td>2.22</td> <td>3.22</td> <td>4.59</td> <td>1.54</td> <td>13</td> <td></td> </tr> <tr> <td>小児(1~6歳)</td> <td>0.58</td> <td>0.34</td> <td>0.37</td> <td>2.42</td> <td>3.36</td> <td>5.59</td> <td>7.25</td> <td>9.33</td> <td>4.06</td> <td>41</td> <td></td> </tr> <tr> <td>春</td> <td>0.29</td> <td>0.18</td> <td>0.31</td> <td>1.23</td> <td>1.54</td> <td>2.16</td> <td>3.13</td> <td>4.37</td> <td>1.52</td> <td>15</td> <td></td> </tr> <tr> <td>夏</td> <td>0.35</td> <td>0.22</td> <td>0.37</td> <td>1.47</td> <td>1.73</td> <td>2.66</td> <td>3.94</td> <td>5.42</td> <td>1.66</td> <td>17</td> <td></td> </tr> <tr> <td>秋</td> <td>0.21</td> <td>0.13</td> <td>0.23</td> <td>0.86</td> <td>1.18</td> <td>1.74</td> <td>2.36</td> <td>2.79</td> <td>1.24</td> <td>12</td> <td></td> </tr> <tr> <td>冬</td> <td>0.22</td> <td>0.14</td> <td>0.23</td> <td>0.88</td> <td>1.19</td> <td>1.75</td> <td>2.14</td> <td>2.57</td> <td>1.19</td> <td>12</td> <td></td> </tr> <tr> <td>東日本</td> <td>0.30</td> <td>0.19</td> <td>0.30</td> <td>1.31</td> <td>1.58</td> <td>2.28</td> <td>3.14</td> <td>4.27</td> <td>1.56</td> <td>16</td> <td></td> </tr> <tr> <td>西日本</td> <td>0.25</td> <td>0.16</td> <td>0.28</td> <td>1.09</td> <td>1.47</td> <td>2.03</td> <td>2.81</td> <td>3.56</td> <td>1.49</td> <td>15</td> <td></td> </tr> </table>						対象年齢	平均値	中央値	標準偏差	95%ile	99%ile	99.9%ile	99.99%ile	99.999%ile	1点推定法	%ARFD	試算ケース	全員(1歳以上)	0.31	0.17	0.31	1.20	1.54	2.22	3.22	4.59	1.54	13		小児(1~6歳)	0.58	0.34	0.37	2.42	3.36	5.59	7.25	9.33	4.06	41		春	0.29	0.18	0.31	1.23	1.54	2.16	3.13	4.37	1.52	15		夏	0.35	0.22	0.37	1.47	1.73	2.66	3.94	5.42	1.66	17		秋	0.21	0.13	0.23	0.86	1.18	1.74	2.36	2.79	1.24	12		冬	0.22	0.14	0.23	0.88	1.19	1.75	2.14	2.57	1.19	12		東日本	0.30	0.19	0.30	1.31	1.58	2.28	3.14	4.27	1.56	16		西日本	0.25	0.16	0.28	1.09	1.47	2.03	2.81	3.56	1.49	15	
対象年齢	平均値	中央値	標準偏差	95%ile	99%ile	99.9%ile	99.99%ile	99.999%ile	1点推定法	%ARFD	試算ケース																																																																																																						
全員(1歳以上)	0.31	0.17	0.31	1.20	1.54	2.22	3.22	4.59	1.54	13																																																																																																							
小児(1~6歳)	0.58	0.34	0.37	2.42	3.36	5.59	7.25	9.33	4.06	41																																																																																																							
春	0.29	0.18	0.31	1.23	1.54	2.16	3.13	4.37	1.52	15																																																																																																							
夏	0.35	0.22	0.37	1.47	1.73	2.66	3.94	5.42	1.66	17																																																																																																							
秋	0.21	0.13	0.23	0.86	1.18	1.74	2.36	2.79	1.24	12																																																																																																							
冬	0.22	0.14	0.23	0.88	1.19	1.75	2.14	2.57	1.19	12																																																																																																							
東日本	0.30	0.19	0.30	1.31	1.58	2.28	3.14	4.27	1.56	16																																																																																																							
西日本	0.25	0.16	0.28	1.09	1.47	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3 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 ~

表5 確率モデルによる短期暴露量の推定

		Bifenthrin		ARFD: 0.01		単位: mg/kg bw		(μg/day/kg)												
		摂取者人数	平均値	中央値	標準偏差	95%ile	99%ile	99.9%ile	99.99%ile	99.999%ile	1点推定法	%ARFD	試算ケース							
(オレンジ)																				
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								
(いちご)																				
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	74	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								
(なす)																				
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								
(トマト)																				
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								
(だいこん菜)																				
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	2.81	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。

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 2 農薬のみである。また、わが国においては、適切な作物残留試験データに乏しく、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、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 パーセンタ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、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と考えられた。

これらの検討結果を踏まえて、MS-Excel 2010 にアドインマクロ (Crystal Ball) を加えた環境下で、確率モデルにより短期経口暴露量を試算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。

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

・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

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

その1) 卸売市場品の調査

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22-24年度総合研究報告書

分担課題：食品中残留農薬の汚染実態把握に関する研究
その1）卸売市場品の調査

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）

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を対象として、個別食品での残留農薬を把握することを目的とした。平成22年度は皮ごと摂取可能あるいは生で摂取する野菜・果実の分析、平成23年度は、複数の農薬暴露による相互作用の観点から重要と考えられる柑橘類の分析、平成24年度は、検出農薬の季節変動の観点から重要と考えられる通年野菜の分析を実施した。総検査数あたりの農薬検出率は農産物に発生する病害虫の数や発生時期により異なったが、農産物の中でも発生する病害虫の数が多い柑橘類での検出率が他よりも高かった。検出された農薬について食品分類からの基準値を適用させると、一律基準を超えたものが1試料あったが、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。その他には基準値を超えた試料はなく、GAPに従って適正に農薬が使用されていることが示唆された。

A. 研究目的

食品中の残留農薬等については、ポジティブリスト制度の導入により、820品目以上に基準値が設定された。また、基準が設定されていないものには、一律基準0.01 ppmが適用されている。

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方式を用いた農薬の摂取量調査を実施している。この方法は、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あるが、いずれの食品群からも農薬はほとんど検出されない。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について、個別食品での残留実態を調査することにした。

平成22年度は皮ごとあるいはそのまま摂取可能な野菜・果実の分析、平成23年度は、国内産および輸入柑橘類の分析、平成24年度は、通年流通される野菜の分析を実施した。

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。

B. 研究方法

調査試料としては、平成22年度は農薬を多く摂取することが考えられる、皮ごとあるいはそのまま摂取可能な野菜・果実9作物を対象とし、さいたま市内の市場および農産物直売所を流通する農産物を購入した。レモンを除き、1作物につき3地域以上、1地域につき異なる3生産者の製品を入手し、3生産者の製品を等量ずつ混合したものを試料とし、表1のとおり27試料を分析した。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13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試料の単一試料とし、表2のとおり43試料を分析した。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)3作物を対象とした。試料として、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購入した。試料は1生産者1試料の単一試料とし、表3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。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。これらに加えて、平成23年度は5種農薬(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)についても、近藤らの試験法²⁾により分析を実施した。定量限界は0.005 ppm(平成23年度のみ0.01 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。

一斉分析項目186成分および5種農薬のリストを表4に、分析法の分析フローを図1、2に、機器の分析条件を表5-1、2に示した。

C. 研究結果

前述の試料を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6~12に分析結果を示す。

平成22年度に実施した、皮ごとあるいはそのまま摂取可能な野菜・果実の分析では、3生産者の混合試料27試料中19試料から45農薬が検出された。1試料あたりの検出数は1.7農薬であり、総検査数(検体数×項目数)あたりの農薬検出率は0.90%であった(表8)。

検出量の範囲は0.005~0.11 ppmで、検出量が0.01 ppm未満の農薬は17農薬、0.01 ppm以上は28農薬であり、0.1 ppm以上検出された農薬は1農薬のみであった。このうち、ハウレンソウ1試料からクロルフェナピルの基準値(一律基準:0.01 ppm)を超える

値(0.034 ppm)が検出された。その他、基準値を超える量の農薬は検出されなかった(表6)。

農薬を成分および系統別で見ると、検出された農薬の種類は23成分、12種であり、最も検出された農薬は、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で13試料から検出され、検出された全農薬の約3割(28.9%)を占めていた。次いで、クレソキシムメチルおよびアズキシストロビンのストロビルリン系農薬が8試料(17.8%)から検出された。

また、農薬を用途別で見ると、検出された45農薬のうち、約6割(57.8%、26農薬)が殺虫剤で、他はすべて殺菌剤であった(42.2%、19農薬、表7)。

平成23年度に実施した国内産および輸入柑橘類の分析では、43試料中37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、総検査数あたりの農薬検出率は0.83%であった(表8)。

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8)。

検出量の範囲は0.01~2.8 ppmで、検出量が0.01~0.1 ppmの農薬は38農薬、0.1~1.0 ppmの農薬は25農薬、1.0 ppm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8)。

農薬を成分および系統別で見ると、検出された農薬の種類は17成分、11種であり、最も検出された農薬はメチダチオンやクロルピリホスなどの有機リン系農薬で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、チアベンダゾールのベンズイミダゾール系農薬とイマザリルのイミダゾール系農薬が9試料(13.2%)から、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クレソキシムメチルのストロビルリン系農薬が6試料(8.8%)から検出された。また、農薬を用途別で見ると、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、他は

すべて殺菌剤であった(10.3%、7農薬、表9)。

平成24年度に実施した通年野菜の分析では、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、年間の総検査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10)。

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10)。

検出農薬を成分および系統別で見ると、検出された農薬の種類は18成分、7種であり、最も検出された農薬は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、シペルメトリンなどのピレスロイド系農薬が16試料(23.9%)から、プロシミドンのジカルボキシイミド系農薬およびクロルフェナピルのフェニルピロール系農薬が8試料(11.9%)から、アゾキシストロビンなどのストロビルリン系が7試料(10.4%)から検出された(表11)。また、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11)。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割であった(表12)。

D. 考察

平成22年度における農産物の残留実態調査では、1試料あたり農薬検出数が1.7農薬、総検査数あたりの農薬検出率が0.90%であった。22年度の分析試料としては、3生産者の製品の混合試料を用いた。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。しかしながら、生産地を関東近県とそれ以外に区分し

たときの1試料あたり農薬検出数は、関東近県で1.5農薬、それ以外では2.0農薬であり、地域間による差は認められなかった。

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、混合試料として基準値を超えたものは、ハウレンソウのクロルフェナピル1試料であった(一律基準値0.01 ppmのところ、0.034 ppm検出)。他の検出農薬はすべて基準値比が5%以下であり、個別試料としても基準値を超える可能性のあった試料はなかった。いずれも農薬の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、イミダクロプリドなどのネオニコチノイド系殺虫剤とアゾキシストロビンなどのストロビルリン系殺菌剤の検出数が全検出農薬の約5割(46.7%)を占めていた。これらは、近年生産量の増加している新世代の農薬であり、生産量と使用実態が一致したものと思われた。

平成23年度における柑橘類の残留実態調査では、1試料あたり農薬検出数が1.6農薬、総検査数あたりの農薬検出率が0.83%であり、平成22年度の調査(1.7農薬、0.90%)と比較して同程度であった。しかし、平成22年度は、1試料が3生産者の混合試料であるため、このことを考慮入れると、柑橘類の方が有意に高い検出率であることが示唆された。これは、柑橘類に発生する病害虫が非常に多いため³⁾、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。ただし、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。

生産地を国内産と国外産に区分したときの1試料あたり農薬検出数は、国内産で1.5農薬、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。

農薬別で見ると、メチダチオンなどの有機リン系殺虫剤の検出数が、全検出農薬の約4

割(38.4%)を占めていた。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た。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った。

平成24年度における通年野菜の残留実態調査では、1試料あたり0.9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年度に実施したハウレンソウおよびキュウリの分析結果(1.4種、0.77%)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、個別試料として計算(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(0.15 ppm未満の検出率)から40%として換算)すると、0.8農薬、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に従って適正に使用されていると考えられた。

農薬別で見ると、イミダクロプリドなどのネオニコチノイド系農薬とアゾキシストロビンなどのストロビルリン系農薬の検出数が全検出農薬の4割以上(40.3%)を占めていた。これらは、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(46.7%)となった。一方、全検出農薬の2割以上(23.5%)を占めている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、果菜類では殺菌剤の検出率が葉菜類と比較して高かった。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。

E. 結論

農薬摂取の観点から重要と考えられる農産物における残留農薬の実態把握を目的として、平成22年度は、農薬を多く摂取することが考えられる皮ごと摂取可能あるいは生で摂取する野菜・果実の分析、平成23年度は、複数の農薬暴露による相互作用の観点から重要と考えられる柑橘類の分析、平成24年度は、検出農薬の季節変動の観点から重要と考えられる通年野菜の分析を実施した。

総検査数あたりの農薬検出率は、農産物に発生する病害虫の数や発生時期により異なるが、農産物の中でも、発生する病害虫の数が多い柑橘類の検出率が他よりも高かった。

検出された農薬について、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ハウレンソウのクロルフェナピル1試料のみであったが(一律基準値0.01 ppmのところ0.034 ppm検出)、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。また、他の検出農薬はすべて基準値比が30%以下であり、単一試料として基準値を超える可能性のあった試料はなく、GAPに従って適正に農薬が使用されていることが示唆された。

農薬を用途別で見ると、農産物により殺虫剤と殺菌剤の検出率が異なったが、これは農産物に発生する病害虫の種類に起因すると思われた。

農薬を成分および系統別にみると、国産柑橘類のメチダチオンや輸入柑橘類のチアベンダゾールおよびイマザリル、果菜類のプロシミドン、葉菜類のシペルメトリンなど、特定の農産物において検出率の高い農薬も見られたが、クロチアニジンなどのネオニコチノイド系農薬やアゾキシストロビンなどのストロ