

検査機関の信頼性確保に関する研究

研究分担報告書

食品衛生外部精度管理調査用適性試料の作製検討と
信頼性確保に関する研究（その 1）
理化学的検査調査試料の作製に関する研究

研究代表者	渡辺 卓穂	（一財）食品薬品安全センター秦野研究所 部長
研究協力者	鈴木 達也	（一財）食品薬品安全センター秦野研究所 室長
	高坂 典子	（一財）食品薬品安全センター秦野研究所 室長
	佐藤 夏岐	（一財）食品薬品安全センター秦野研究所 研究員
	久保田佳子	（一財）食品薬品安全センター秦野研究所 研究員
	池田 真季	（一財）食品薬品安全センター秦野研究所 研究員

研究要旨

精度管理調査を行う上で、適正な調査試料作製は非常に重要であり、調査対象物質濃度の均質性及び調査期間中の濃度の安定性は必須である。そこで、実分析をふまえた新規基材の開発を検討し、今年度、実配付量の作製が可能となった。

固体試料として、米類（玄米及び精米）の適用性については、これまでに米類を粒状で農薬混合溶媒に浸漬後、浸漬溶媒を留去し、さらに乾燥・粉碎することで、添加農薬が均質となることが明らかとなっている。しかしこの方法は、農薬添加後の粒状試料を遠心粉碎機で粉碎する際、遠心粉碎機の細かな部分に微細試料が残留することにより汚染のリスクが考えられた。また粒状でなく粉末試料を用いて同様に作製した場合、浸漬溶媒を留去する際、減圧によりロータリー部分に粉末が吸引され、汚染の原因となることが危惧された。今年度はそれらのリスクを低減できるよう作製方法を改良し、スモールスケールでの作製方法から実配付量の作製検討をし、玄米を基材とした粉末固体試料の作製プロセスを確立できた。またこれらの冷蔵及び冷凍保存による長期安定性も継続して検討した。冷凍保存条件下では作製後 360 日間は添加した 4 種の農薬は高い安定性を示し、外部精度管理調査実施後、余剰試料を内部精度管理へ活用できる可能性も示唆された。

一方、作製実績のある水分量が多い従来の野菜ペーストに加えて、これらと比較してたんぱく質及び脂質量が高い枝豆を基材として検討を進めてきたが、今年度はスモールスケールから実配付量の作製プロセスを検証・確立した。均質化のために添加剤として水分 10%を加え、1 バッチ約 2kg の作製を複数バッチ作製し、それらの均質（同等）性が確認できた。

以上のことから、固体試料としては玄米を、また半固体試料として枝豆を基材に用いた新たな外部精度管理調査用試料の作製及び提供が可能となった。

A. 研究目的

食品の安全性を確保するためには、試験・検査等の信頼性の確保が重要である。信頼性の確保のためには、外部・内部精度管理調査が重要な項目となり、この精度管理調査を実施するためには、検査対象物質の濃度が均一で、検査期間において濃度が安定である調査試料が求められる。また、試料の基材にもバリエーションが必要であり、新たな基材について検査対象物質の濃度が均一で安定な調査試料の開発を行っているところである。昨年に引き続き、残留農薬試料としては初めての固体試料として米類を、またこれまでのほうれんそうやにんじんなど水分量が多い従来の野菜ペーストに加えて、これらと比較してたんぱく質及び脂質量の高い枝豆ペーストについても検討を行っている。米類の試料作製プロセスでは、粒状への添加法から粉末試料への添加法へ変更し、昨年までの作製法を改良した上で、スモールスケールから実配付量作製の方法を検証・確立することを目的とした。

また、枝豆については、昨年までに油分を添加することで均質性のある試料を作製できることが明らかとなっており、今年度は、米類と同様にスモールスケールから実配付量の作製法を検証・確立することを目的とした。

1. 試料基材及び試薬

1) 試料基材

市販の玄米及び精米のそれぞれ古米（平成27年産）、以下、米類、枝豆ペースト（新進）

2) 標準品

ダイアジノン、クロルピリホス、馬拉チオン、フェニトロチオン
（Dr.Ehrenstorfer GmbH）

3) 試薬

蒸留水、アセトニトリル（HPLC用、和光純薬工業）、アセトン、ヘキサン、酢酸エチル（残留農薬・PCB試験用、和光純薬工業）、塩化ナトリウム、無水硫酸ナトリウム（試薬特級、和光純薬工業）

2. 使用機器及び測定条件

1) 試料作製用使用機器及び器材

ブrikサー5プラス（エフ・エム・アイ、以下、ブrikサー）、ロッキングミキサー RM-10-3（愛知電機）、遠心粉碎機（Retsch）、減圧濃縮器（東京理化学器械）、粉体攪拌用フラスコ（旭製作所）、球形ガラスフィルター（G1タイプ）（旭製作所）、ロータリージョイント（C-3型、G3フィルタータイプ）

2) 試料抽出用機器

オムニミキサー（OMNI-International）、減圧濃縮装置（東京理化学器械）

3) 測定機器

リン検出器付きガスクロマトグラフ（以下GC(FPD)）：Agilent 7890A（アジレント・テクノロジー）

4) 測定条件

カラム：DB-210（内径0.25 mm、長さ30 m、膜厚0.25 μm）、カラム流量：2.5 mL/min、カラム温度：60°Cで2分間保持し、その後毎分10°Cで昇温し、200°Cに到達後10分間保持、注入口温度：250°C、検出器温度：250°C、キャリ

アーガス：ヘリウム

3. 試料作製

1) 玄米及び精米

(1) 冷凍及び冷蔵保存における長期安定性（回収率）の評価

平成 27 年度から引き続き、基材に玄米及び精米それぞれの古米を用い、冷凍及び冷蔵保存における添加農薬の安定性（回収率）を検討し、比較評価した。

基材である米類をそれぞれ遠心粉碎機で粉碎し、粉末化後、直ちに 10 g をそれぞれ量り採り、添加用農薬混合標準液（ダイアジノン、クロルピリホス及びマラチオン 1 µg/mL、フェニトロチオン 2 µg/mL、アセトン溶液）1 mL を正確に加え、試料に十分浸潤させた（理論値：ダイアジノン、クロルピリホス及びマラチオン 0.1 µg/g、フェニトロチオン 0.2 µg/g）。また、同様に粉碎、粉末化した米類それぞれに、添加用農薬混合標準液の代わりにアセトン 1 mL を添加し、空白試料とした。併せて、アセトンを添加しない米類粉末試料をアセトン無添加空白試料とした。

これらの試料について、各農薬の回収率、冷凍及び冷蔵保存（180、270 及び 360 日間）における安定性（回収率）を検討した（各 n=3）。

(2) 実作製における作製プロセスの確立及びその検証

浸漬用溶媒の検討

粉体攪拌用フラスコ（2L 容）に各溶媒（ヘキサン、アセトン及び酢酸エチル）をそれぞれ 590 mL とり、これに添加用農薬混合標準液（ダイアジノン、ク

ロルピリホス及びマラチオン 5 µg/mL、フェニトロチオン 10 µg/mL、アセトン溶液）10 mL を正確に加え、ロータリーエバポレーターに取り付け、室温下、常圧で 5 分間回転混合し、予め均質な浸漬用農薬混合標準液を調製した。これに、遠心粉碎機により粉碎・粉末化した玄米（古米）500 g を量り入れ、同様に 5 分間回転混合した後、室温で遮光下 24 時間静置による浸漬を行った。浸漬後、浸漬溶媒を留去し、内容物をテフロンシート上に広げ、室温下で 3 日間乾燥し、浸漬溶媒検討用作製試料とした（図 1）（溶媒留去後理論値：ダイアジノン、クロルピリホス及びマラチオン 0.1 µg/g、フェニトロチオン 0.2 µg/g）。この時の、溶媒留去の様子及び浸漬溶媒検討用作製試料の乾燥状態等を目視で観察し、浸漬用溶媒として適用可能な溶媒について検討した。なお、溶媒留去において、減圧濃縮装置のロータリーエバポレーターに球形ガラスフィルターあるいはロータリージョイントを接続し、粉体の冷却部への吸い込みを防止した。

バッチ内の均質性の検討（回転・揺動混合無し）

粉体攪拌用フラスコ（2L 容）1 個にアセトンを 710 mL とり、これに添加用農薬混合標準液（ダイアジノン、クロルピリホス及びマラチオン 6 µg/mL、フェニトロチオン 12 µg/mL、アセトン溶液）10 mL を正確に加え、ロータリーエバポレーターに取り付け、室温下、常圧で 5 分間回転混合し、予め均質な浸漬用農薬混合標準液を調製した。これに、遠心粉碎機により粉碎・粉末化した玄米（古

米) 600 g を量り入れ、以下、と同様に操作し、1 個のバッチ内均質性の検討用作製試料(回転・揺動混合無し)とした(溶媒留去後理論値: ダイアジノン、クロルピリホス及びマラチオン 0.1 µg/g、フェニトロチオン 0.2 µg/g)。作製した試料は、約 25 g ずつ分取しジッパー付袋に入れ、均質性試験は、無作為に選んだ 10 袋について行った。

バッチ内の均質性の検討(回転・揺動混合有り)

と同様にして得られた乾燥試料すべてをロッキングミキサーにより回転・揺動混合し、1 個のバッチ内均質性の検討用作製試料(回転・揺動混合有り)とした(溶媒留去後理論値: ダイアジノン、クロルピリホス及びマラチオン 0.1 µg/g、フェニトロチオン 0.2 µg/g)。作製した試料は、約 25 g ずつ分取しジッパー付袋に入れ、均質性試験は、無作為に選んだ 10 袋について行った。なお、浸漬溶媒を留去後、内容物を取り出した後の粉体攪拌用フラスコ内壁面の残渣をヘキサン 50 mL で 3 回洗い込み、これらを合わせて減圧濃縮し、5 mL とした溶液について各農薬濃度を測定し、粉体攪拌用フラスコ内壁面への農薬残存率を算出した。

バッチ間の均質性の検討

粉体攪拌用フラスコ(2L 容) 10 個に各々アセトンを 710 mL とり、これに添加用農薬混合標準液(ダイアジノン、クロルピリホス及びマラチオン 6 µg/mL、フェニトロチオン 12 µg/mL、アセトン溶液) 10 mL を各々正確に加え、ロータリーエバポレーターに取り付け、室温

下、常圧で 5 分間回転混合した。これに、遠心粉碎機により粉碎・粉末化した玄米(古米) 600 g を各々量り入れ、同様に 5 分間、回転混合した後、以下、バッチ内均質性の検討用作製試料(混合)と同様に行い、10 個のバッチ間均質性の検討用作製試料とした(溶媒留去後理論値: ダイアジノン、クロルピリホス及びマラチオン 0.1 µg/g、フェニトロチオン 0.2 µg/g)。なお、ロッキングミキサーによる混合は、各バッチ毎に行った。作製した試料は、約 25 g ずつ分取しジッパー付袋に入れ、均質性試験は、1 バッチにつき無作為に選んだ 1 袋について n=2 で測定を行った。また、バッチ内均質性の検討用作製試料(回転・揺動混合有り)と同様に、各粉体攪拌用フラスコ内壁面残存農薬の残存率について測定した。

2) 枝豆

昨年度までの検討結果より、冷凍保存における凍結融解3回及び融解後冷蔵保存(14日間)の安定性を確認した結果、枝豆ペーストに水10%の添加が最も有効であることが明らかとなった。そこで今年度は、水10%添加の条件により、外部精度管理調査の実配付量である作製プロセスの確立の一環として、ブrikサー5プラスを用いて複数バッチを作製し、バッチ間の均質(同等)性を検討した。

ブrikサーを用いて均質化した枝豆ペースト1.8 kgに、水分添加量が10%となるように水を加え、さらにブrikサーを用いて均質化した。これに添加用農薬混合標準液(ダイアジノン2 µg/mL、クロルピリホス60 µg/mL、マラチオン及びフ

フェニトロチオン100 µg/mL、アセトン溶液) 10 mLを正確に加え、ブレンダーを用いて混合した(理論値:ダイアジノン 0.01 µg/g、クロルピリホス 0.3 µg/g、マラチオン及びフェニトロチオン0.5 µg/g)。更に、同様の操作をそれぞれ別のブレンダー容器を用いて4回繰り返すを行い、合計5バッチを作製した。次に、各容器内作製ペースト試料の上層部と下層部の各々を4分割し、計8分割とし冷凍した。これらのペースト試料から、1バッチにつき4分画(図2の各々丸数字)をそれぞれ5バッチについて採取し、5バッチ間の均質(同等)性を確認した(図2)。別に、枝豆ペーストに、水分添加量が10%となるように水を加え、添加用農薬混合標準液の代わりに同量のアセトンを添加し、同様に操作して得られた試料を、水10%ブランク試料とした。

4. 試験方法

測定操作は、「食品衛生検査指針 残留農薬編(2003)」に準じた。

試料10.0 gを量り採り、オムニミキサーを用い、アセトン100 mLで1回、更に50 mLで2回抽出した。抽出液を合わせ、40°C以下でアセトンを留去した。濃縮物に飽和塩化ナトリウム溶液100 mLを合わせ、これにn-ヘキサン100 mLを加え振とうした。n-ヘキサン層をとり、残った水層に酢酸エチル/n-ヘキサン(1:4) 100 mLを加え振とう後、酢酸エチル/n-ヘキサン(1:4)層を先のn-ヘキサン層に合わせた。上記の操作を2回繰り返した。得られた溶液に適量の無水硫酸ナトリウムを加え、時々振り混ぜながら15分

間放置後、ろ過し、得られたる液を40°C以下で酢酸エチル/n-ヘキサンを留去した。残留物をアセトニトリル飽和n-ヘキサン30 mLに溶解し、n-ヘキサン飽和アセトニトリル30 mLを加えて振とうした。アセトニトリル層をとり、残ったn-ヘキサン層にn-ヘキサン飽和アセトニトリル30 mLを加え、上記の操作を2回繰り返す、アセトニトリル層を合わせた後、アセトニトリルを留去した。残留物にn-ヘキサンを加えて溶解させ、正確に10 mLとした後、GC(FPD)で測定した。

なお、玄米及び精米試料の測定においては、試料採取後、水20 mLを加え2時間膨潤させた後、アセトンによる抽出操作を行った。各農薬の定量には絶対検量線を用いた。

(倫理面への配慮)

食の安全・安心に係わる研究であり、特に倫理面への配慮を必要としなかった。実験者及び環境への配慮としては、有害な溶媒(ベンゼン等)を使用しなかった。

C. D. 研究結果及び考察

1) 玄米及び精米

(1) 冷凍及び冷蔵保存における長期安定性(回収率)の評価

平成27年度から引き続き、基材自体の農薬添加試料としての適用性の確認として、粉碎・粉末化した米類(精米及び玄米のそれぞれ古米)に農薬を添加し冷凍及び冷蔵保存条件下での経日的安定性(平成27年度の農薬添加後0、14、34、60、90及び120日間に加え、本年度は180、270及び360日間)を検討し

たところ、精米及び玄米ともに明らかに冷蔵よりも冷凍保存の方が高い安定性を示し、さらに精米より玄米の方が良好な安定性が得られた(図3、4)。精米においては特にマラチオン及びフェニトロチオンの2農薬が冷凍と冷蔵保存で顕著な差が認められた。玄米の冷凍保存においては、4種農薬とも270日間経過時点で80%以上の回収率を示しており、また、マラチオン及びフェニトロチオンは冷凍保存360日間でも、90%以上の安定した回収率を示していた。このことから、玄米の冷凍保存においては、外部精度管理調査実施後の余剰試料を内部精度管理試料として活用できる可能性があると考えられた。

なお、それぞれの測定時点及び米の種類に応じてブランク試料についても同時に測定を行ったところ、一部の時点及び農薬において基材由来のピークが出現したため、それらを差し引いて回収率の算出を行った。またアセトンを添加しない米類ブランク試料と比較したところ、差は認められず、アセトンを添加後、長期冷凍保存することの影響はないと考えられた。

(2) 実作製における作製プロセスの確立及びその検証

浸漬用溶媒の検討

昨年度までは、米を粒状で浸漬用農薬混合標準液に浸漬し、溶媒留去後乾燥・粉碎し、粉碎物を混合する方法で調製したが、今年度は、米を予め粉碎し粉末化した試料を用いて調製する方法を試みた。調製に先立ち、浸漬用農薬混合標準液に用いる溶媒の検討を行った。玄米

(古米)を3種の浸漬用溶媒(ヘキサン、アセトン及び酢酸エチル)に浸漬した後、ロータリーエバポレーターにより浸漬溶媒を留去し、自然乾燥させた時の、得られた作製試料の乾燥状態等について、目視により観察を行った。その結果、アセトンに浸漬した試料が最も溶媒の除去状態が良好であり、ヘキサン及び酢酸エチルによる試料は、溶媒の除去が不完全となる傾向があった。溶媒の一部が残留することは、溶液部分が濃縮されているため高濃度の農薬が一部の試料と接触し農薬が偏在する可能性が高く、また、アセトン浸漬試料と比べ、ヘキサン及び酢酸エチル浸漬試料は、溶媒留去時に突沸しやすいなど細心の注意と時間を要したため、実試料作製には不適と判断した。

以上の結果より、玄米粉体試料作製に用いる溶媒は、アセトンを採用することとした。

なお、溶媒留去において、減圧濃縮装置のロータリーエバポレーターに球形ガラスフィルターあるいはロータリージョイントを接続し、粉体の冷却部への吸い込みを防止した。その結果、溶媒の留去速度が低下するものの、粉末の飛散防止に高い効果があることがわかり、採用することで農薬の粉体試料への添加が可能となった。

バッチ内の均質性の検討(回転・揺動混合無し)

粉碎・粉末化した玄米(古米)に農薬(アセトン溶液)を添加し、乾燥した試料につき、1バッチ内の均質性について

評価した。

一元配置の分散分析の結果、いずれの農薬においても得られたF値は有意水準5%点よりも大きく、1バッチ内の均質性は得られなかった(表1)。しかし、各農薬の添加濃度(理論値)(ダイアジノン、クロルピリホス及びマラチオン0.1 µg/g、フェニトロチオン0.2 µg/g)に対する回収率は89~97%であり、添加した農薬は、バッチ内においては良好に玄米試料に移行したと考えられた(表1)。

バッチ内の均質性の検討(回転・揺動混合無有り)

の結果よりバッチ内において、玄米試料に対する添加農薬の濃度にばらつきが生じていることが明らかとなったため、これを均質にするために、農薬添加後の乾燥試料をロッキングミキサーにより回転・揺動を混合し、1バッチ内を均質とし、評価を行った。

その結果、いずれの農薬においても得られたF値は有意水準5%点よりも小さく、ロッキングミキサーによる混合により、1バッチ内の試料は良好な均質性を得られることが明らかとなった(表2)。また、農薬の添加濃度(理論値)(ダイアジノン、クロルピリホス及びマラチオン0.1 µg/g、フェニトロチオン0.2 µg/g)に対する回収率は88~101%であり、粉体攪拌用フラスコ内壁面への農薬残存率は1%であることから、いずれの農薬も玄米試料に良好に移行し添加されたと考えられた(表2、3)。

バッチ間の均質性の検討

の方法で1バッチ内の均質性が確認できたため、さらに複数バッチを同様の

方法で作製した場合のバッチ間の均質(同等)性を検討した。10個の粉体攪拌用フラスコを用いて繰り返し10回の操作により農薬添加粉末玄米試料を作製した。

その結果、いずれの農薬においても得られたF値は有意水準5%点よりも小さく、10バッチの試料について良好な均質性が得られ、バッチ間の同等性が明らかとなった(表4)。

また、農薬の添加濃度(理論値)(ダイアジノン、クロルピリホス及びマラチオン0.1 µg/g、フェニトロチオン0.2 µg/g)に対する回収率は89~98%であり、粉体攪拌用フラスコ内壁面への農薬残存率はいずれの粉体攪拌用フラスコ及び農薬で約1%以下であることから、添加農薬は10バッチにおいて玄米試料に良好に移行し高い再現性で添加されたと考えられた(表4、5)。

作製試料の各農薬測定結果は、いずれのバッチにおいても回収率に同様の傾向がみられ、バッチ間で玄米試料への農薬添加の状態に差異は認められなかった(図5)。

2) 枝豆

水10%を添加した枝豆ペーストに農薬混合標準液を添加し、ブrikサー5プラスを用いて混合した時の、1バッチ内の均質性及び5バッチ間の均質(同等)性を評価した。

各バッチ内の均質性について評価した結果、作製試料の各農薬測定結果は、バッチ(容器)内のいずれのサンプリング部位においても、回収率に同様の傾向がみられ、バッチ内の作製試料は均質であ

ることが明らかとなった(図6~9)。

5バッチ間の均質性について評価した結果、いずれの農薬においても得られたF値は有意水準5%点よりも小さく、5バッチの試料について良好な均質性が得られ同等であることが明らかとなった(表6)。また、ダイアジノンについては基材由来の夾雑物の影響があり、ブランク試料を差し引いて算出したことから、他の農薬と比較して部位の違いによる回収率にばらつきがみられたが、農薬の添加濃度(理論値)(ダイアジノン0.01 µg/g、クロルピリホス及びマラチオン0.3 µg/g、フェントロチオン0.5 µg/g)に対する回収率は82~104%であり、満足できる結果であった(表6)。今回の5バッチによる合計作製量は10 kgであるが、本作製操作を繰り返し行うことで、外部精度管理調査の実配付量を作製することが可能であると考えられた。

E. 結論

外部精度管理調査における適正な調査試料作製は重要であり、調査対象項目の濃度の均質性及び調査期間中の濃度の安定性の確保は必須である。新たな基材を開発することも併せて必要であり、これらの事項を満たす調査試料の作製を目的とし、作製方法及び保存条件等を検討し、以下の結論を得た。

1. 玄米及び精米

新たに、固体試料である穀類の粉末試料を基材として、残留農薬検査のための試料作製を玄米及び精米のそれぞれ新米ならびに古米を用いて検討したところ、基材には玄米を使用し、保存は冷凍条件

下で行うことで、適用できることが示唆された。また、長期安定性を検討したところ、玄米試料については冷凍保存により作製後360日間でも添加したいずれの農薬で約80%以上の回収率が得られ、外部精度管理調査実施後の余剰試料を内部精度管理試料として使用が可能であると考えられた。同一ロット試料の提供期間は長い方が使用する上で管理しやすく、特に内部精度管理用試料には、長期安定性の確保は重要である。また、粉体攪拌用フラスコ、球形ガラスフィルター、ロータリージョイント及びロッキングミキサーを用いることで再現性の高いかつ作製工程で汚染のリスクを極力低減できる実配付量の作製が可能であることが示唆された。

2. 枝豆

枝豆ペーストを基材として試料作製を試みた結果、基材成分である水分を10%添加し均質な基材とした後、農薬を添加混合することで、良好な均質性が得られ、1バッチで2 kgの作製を同様の方法で複数バッチ繰り返し実施することで実配付量の枝豆ペースト試料の作製が可能であることが示唆された。

F. 健康危険情報

なし

G. 研究発表

1. 論文発表
なし
2. 学会発表
なし

H. 知的所有権の取得状況

1. 特許取得

なし

2. 実用新案登録

なし

3. その他

なし

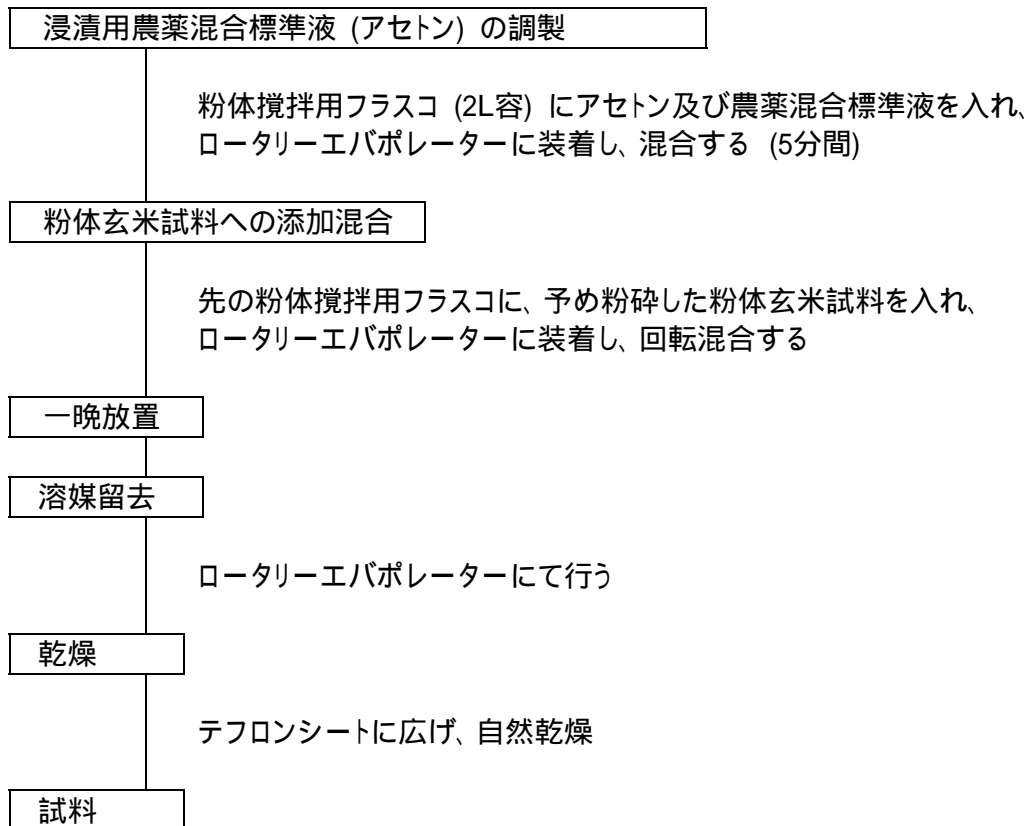


図1 粉体玄米試料への農薬の添加方法

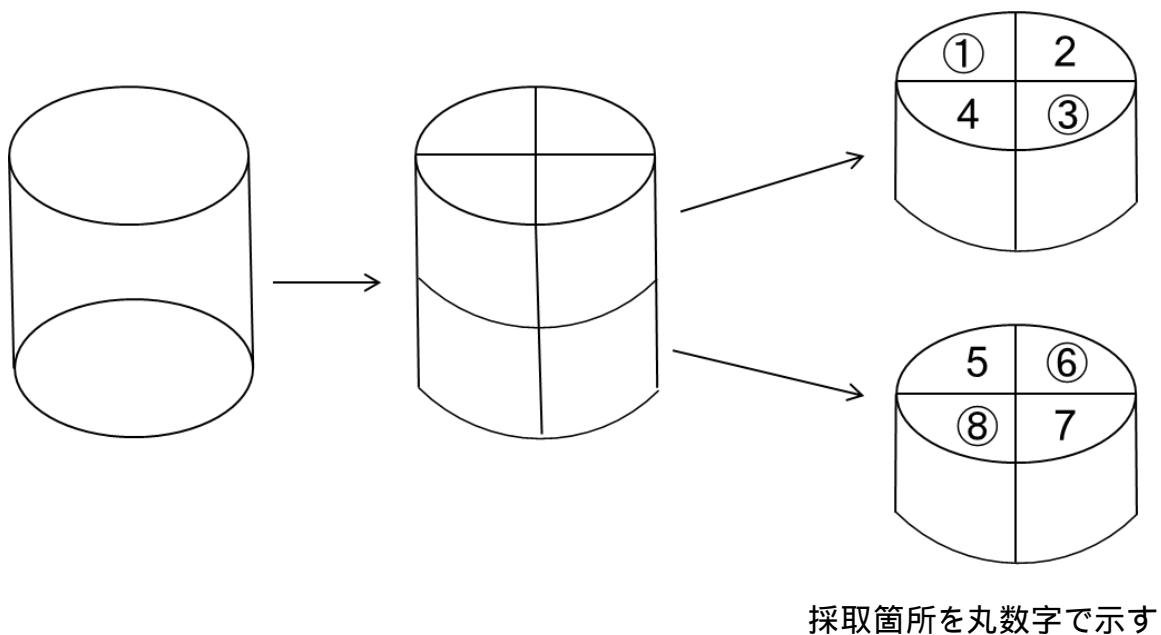


図2 ブリクサー5プラス容器 (1バッチ) 内試料採取箇所

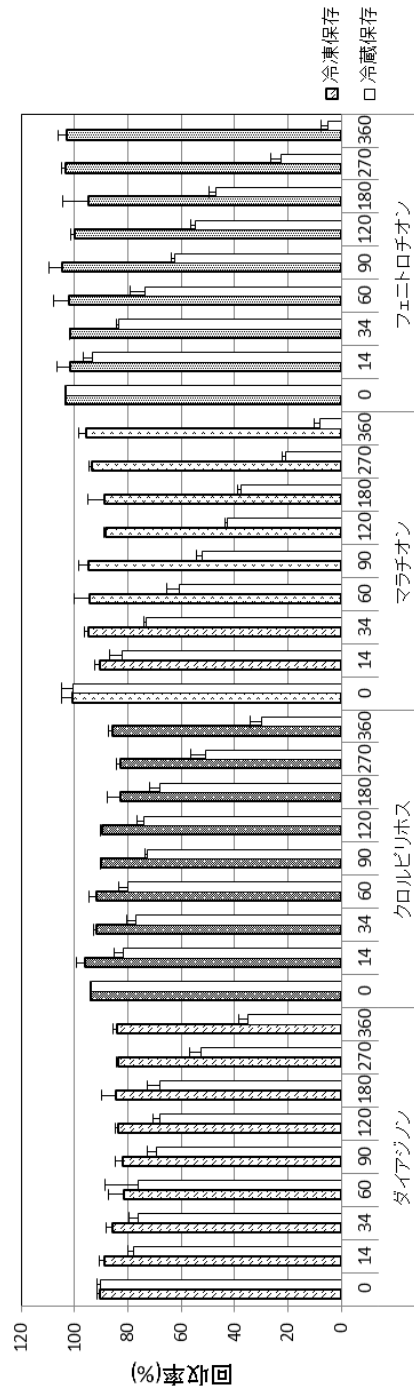


図3 精米(古米)に添加した各種農薬の冷凍及び冷蔵における回収率測定結果
(測定時点につき、各n=3)
保存日数(日)

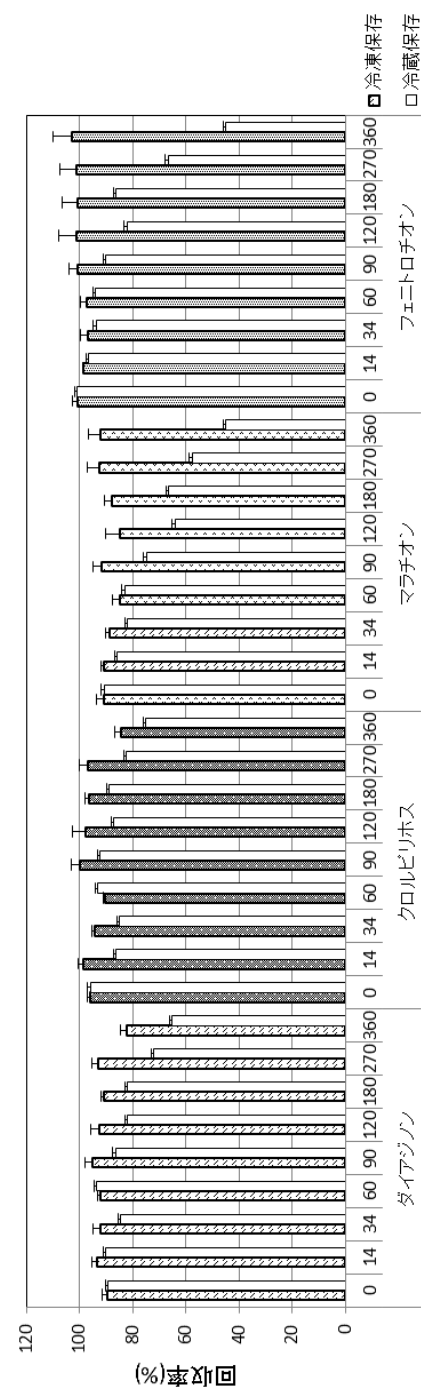


図4 玄米(古米)に添加した各種農薬の冷凍及び冷蔵における回収率測定結果
(測定時点につき、各n=3)
保存日数(日)

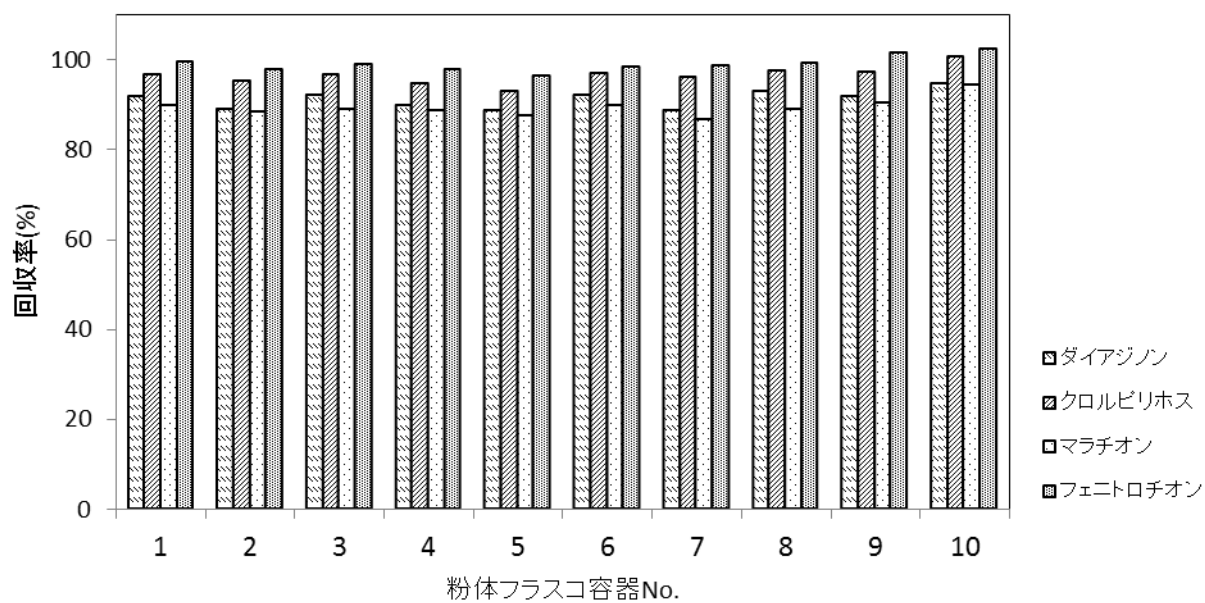


図5 粉体玄米試料への添加法によるバッチ間のばらつき評価
(n=2/容器)

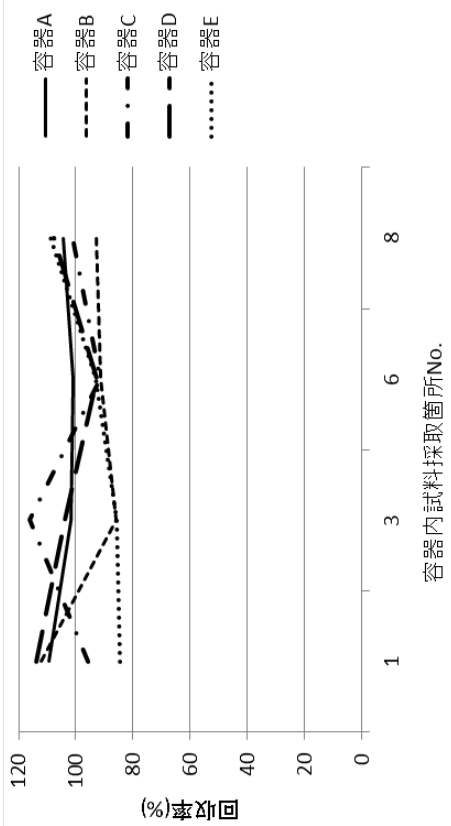


図6 枝豆ペーストのバッチ間の均質 (同等)性:ダイアジノン
(添加濃度 0.01 µg/g)

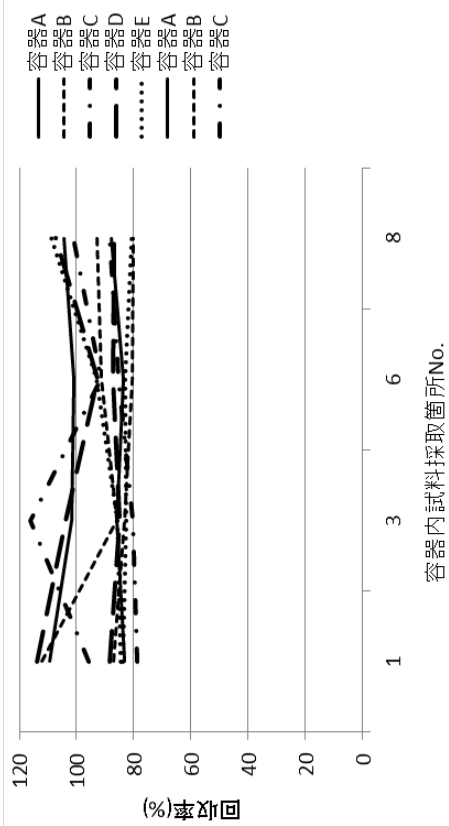


図7 枝豆ペーストのバッチ間の均質 (同等)性:クロルピリホス
(添加濃度 0.3 µg/g)

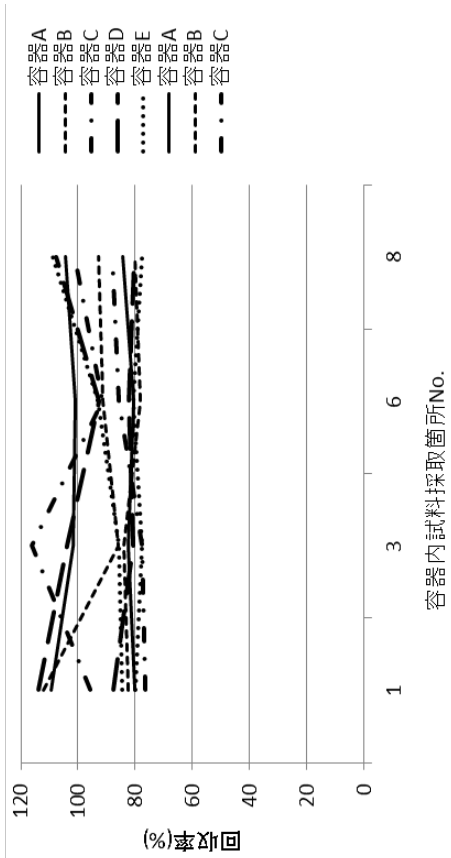


図8 枝豆ペーストのバッチ間の均質 (同等)性:マラチオン
(添加濃度 0.5 µg/g)

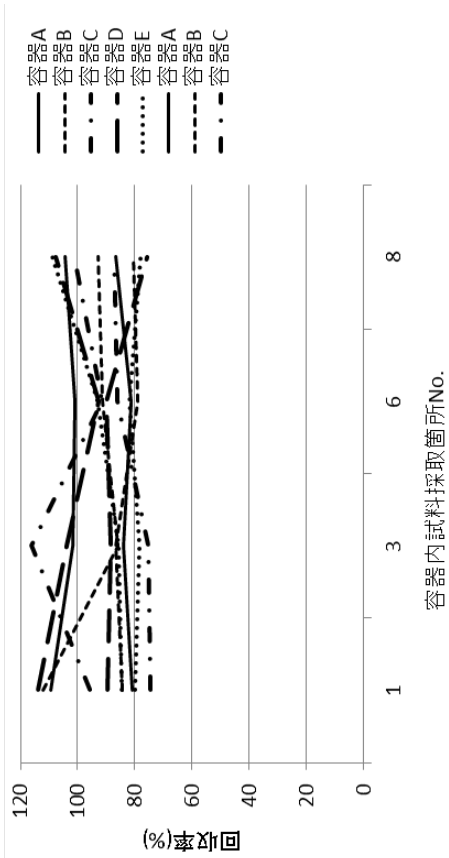


図9 枝豆ペーストのバッチ間の均質 (同等)性:フェニトロチオン
(添加濃度 0.5 µg/g)

表1 粉体玄米試料への添加法（回転・揺動混合無し、1バッチ）による均質性確認結果

[一元配置分散分析(F検定)]

添加農薬	平均値 (μg/g)	RSD (%)	回収率(%)	F値
ダイアジノン	0.0917	11.6	91.7	8.341
クロルピリホス	0.0944	7.91	94.4	13.413
マラチオン	0.0891	6.09	89.1	6.150
フェニトロチオン	0.1944	4.96	97.2	3.817

10試料につき各n=2

F境界値：3.020

表2 粉体玄米試料への添加法（回転・揺動混合有り、1バッチ）による均質性確認結果

[一元配置分散分析(F検定)]

添加農薬	平均値 (μg/g)	RSD (%)	回収率(%)	F値
ダイアジノン	0.0930	1.96	93.0	2.641
クロルピリホス	0.0960	2.19	96.0	2.623
マラチオン	0.0878	3.18	87.8	1.755
フェニトロチオン	0.2010	1.59	100.5	1.823

10試料につき各n=2

F境界値：3.020

表3 粉体攪拌用フラスコ内壁面への農薬残存率（1バッチ）

添加農薬	農薬残存率 (%)
ダイアジノン	0.7
クロルピリホス	0.8
マラチオン	0.7
フェニトロチオン	0.7

$$\text{農薬残存率}(\%) = \frac{\text{粉体フラスコ内壁面への残存量}(\mu\text{g})}{\text{粉体フラスコ1個当たりの添加量}(\mu\text{g})} \times 100$$

表4 粉体玄米試料への添加法（回転・揺動混合有り、10バッチ）による均質性確認結果

[一元配置分散分析(F検定)]

添加農薬	平均値 (μg/g)	RSD (%)	回収率(%)	F値
ダイアジノン	0.0904	3.41	90.4	1.799
クロルピリホス	0.0954	3.54	95.4	1.968
マラチオン	0.0893	2.74	89.3	1.606
フェニトロチオン	0.1954	2.73	97.7	2.289
10バッチにつき各n=2			F境界値：3.020	

表5 粉体攪拌用フラスコ内壁面への農薬残存率（10バッチ）

粉体攪拌用フラスコNo.	農薬残存率(%)			
	ダイアジノン	クロルピリホス	マラチオン	フェニトロチオン
1	0.9	0.9	1.0	0.9
2	1.1	1.1	1.1	1.1
3	0.8	0.9	0.9	0.9
4	1.0	1.0	1.0	1.0
5	0.6	0.6	0.7	0.6
6	1.1	1.1	1.3	1.2
7	0.6	0.6	0.7	0.6
8	0.7	0.7	0.8	0.7
9	0.7	0.7	0.8	1.0
10	0.5	0.5	0.6	0.6
平均値 (%)	0.8	0.8	0.9	0.9

$$\text{農薬残存率(\%)} = \frac{\text{粉体フラスコ内壁面への残存量}(\mu\text{g})}{\text{粉体フラスコ1個当たりの添加量}(\mu\text{g})} \times 100$$

表6 枝豆ペーストをブリクサー5プラスを用いて作製したバッチ間の同等性検討結果

[一元配置分散分析(F検定)]

添加農薬	平均値 (μg/g)	RSD (%)	回収率(%)	F値
ダイアジノン	0.0104	9.40	104.1	1.065
クロルピリホス	0.2556	3.54	85.2	1.875
マラチオン	0.2457	4.03	81.9	0.683
フェニトロチオン	0.3965	6.16	83.6	0.424

5バッチにつき各n=4

F境界値：3.055