

Ⅱ. 令和元年～令和3年度 分担研究報告

課題 1. 食品を介した農薬等の摂取量推定 に関する研究

研究分担者 鈴木美成

食品や環境からの農薬等の摂取量の推計と国際標準を導入するための研究

課題 1. 食品を介した農薬等の摂取量推定に関する研究

研究分担者 鈴木美成 国立医薬品食品衛生研究所 食品部第四室長

研究要旨

有害物質の摂取量推定値は、健康リスクの管理を目的とする規格値策定等の行政施策の検討、及び効果検証のための科学的根拠となる。本研究では、日常的な食事から国民が平均的に摂取する残留農薬の量を、マーケットバスケット方式により全国 6 地域、トータルダイエツト試料の分析結果に基づき推定した。調査対象とした農薬等にはこれまで ADI に対する推定摂取量の割合が高いと推定されている農薬と、国民の関心が高まっているネオニコチノイド系農薬に対して摂取量評価研究を行った。さらに有機塩素系農薬についても調査を行った。

令和元年度から令和 3 年度にかけて、継続して残留農薬摂取量を推定したところ、各農薬の推定一日摂取量は次の通りであった;BHC: 0.049 $\mu\text{g}/\text{person}/\text{day}$, γ -BHC: 0.025 $\mu\text{g}/\text{person}/\text{day}$, アセタミプリド (代謝物含む): 1.51 $\mu\text{g}/\text{person}/\text{day}$, アセフェート: 0.236 $\mu\text{g}/\text{person}/\text{day}$, イミダクロプリド: 1.07 $\mu\text{g}/\text{person}/\text{day}$, インドキサカルブ: 0.004 $\mu\text{g}/\text{person}/\text{day}$, クロチアニジン: 0.644 $\mu\text{g}/\text{person}/\text{day}$, クロルピリホス: 0.151 $\mu\text{g}/\text{person}/\text{day}$, ジノテフラン: 4.69 $\mu\text{g}/\text{person}/\text{day}$, スルホキサフロル: 0.470 $\mu\text{g}/\text{person}/\text{day}$, チアクロプリド: 0.328 $\mu\text{g}/\text{person}/\text{day}$, チアメキサム: 0.328 $\mu\text{g}/\text{person}/\text{day}$, テフルトリン: 0.040 $\mu\text{g}/\text{person}/\text{day}$, ニテンピラム: 0.223 $\mu\text{g}/\text{person}/\text{day}$, ノバルロン: 0.088 $\mu\text{g}/\text{person}/\text{day}$, ハルフェンブロック: 0.040 $\mu\text{g}/\text{person}/\text{day}$, ビフェントリン: 0.150 $\mu\text{g}/\text{person}/\text{day}$, ピリダベン: 0.060 $\mu\text{g}/\text{person}/\text{day}$, フェントロチオン: 0.184 $\mu\text{g}/\text{person}/\text{day}$, ブプロフェジン: 0.091 $\mu\text{g}/\text{person}/\text{day}$, フルアジホップブチル(代謝物含む): 0.062 $\mu\text{g}/\text{person}/\text{day}$, フルベンジアミド: 0.344 $\mu\text{g}/\text{person}/\text{day}$, ヘキサジノン: 0.023 $\mu\text{g}/\text{person}/\text{day}$, ヘプタクロル (異性体含む): 0.006 $\mu\text{g}/\text{person}/\text{day}$, ボスカリド: 1.43 $\mu\text{g}/\text{person}/\text{day}$, メタミドホス: 0.064 $\mu\text{g}/\text{person}/\text{day}$ 。

調査した全ての農薬において、対 ADI 比は 1%未満であった。対 ADI 比が比較的高かったのは、クロルデン (0.35%)、クロルピリホス (0.27%)、メタミドホス (0.19%)、アセフェート (0.18%)であった。

以上の検討から、一般的な食事を介した残留農薬の摂取による日本人への健康影響のリスクは小さいと推定された。

研究協力者

北海道立衛生研究所 平間祐志、竹脇優太郎、宮島祥太、青柳 光敏

秋田市保健所 戸田英汰、伊藤功一

神奈川県衛生研究所 萩尾真人、林 孝子

和歌山県環境衛生研究センター 新宅 沙織

広島県立総合技術研究所 井原紗弥香、川崎恭寛、中島 安基江

A. 研究目的

厚生労働省では食品を介した残留農薬等の暴露量を推定し、ADI の 80%を超えないことを確認している。しかし、食品以外の暴露経路も懸念され、例えば、家庭用殺虫剤を使用することで経気暴露の可能性がある。食品を介した農薬等の暴露推定のみを根拠とした食品中残留農薬の基準値設定は、食品以外の暴露量に不確定な要素があるため、精密なリスク管理には食品以外の経路も含めた総合的評価が必要である。

本研究班においては、ADI が低く設定されている成分かつ、一日推定摂取量試算での ADI 占有率が 70%を超える農薬等に加えて、国民の関心の高いネオニコチノイド系農薬・残留性の高い有機塩素系農薬を主な調査対象物質とした。また、本分担課題においては、令和元年から令和3年度にかけて食品からの摂取量をマーケットバスケット (MB) 方式によるトータルダイエツトスタディ (TD) 試料を用いた評価研究を行った。

B. 研究方法

日常食からの残留農薬摂取量を推定するため、日常食のモデルとして MB 方式による TD 試料を調製した。各地域における個々の食品喫食量は、平成 26 から平成 28 年に行われた国民健康・栄養調査の結果を地域別に集計した平均値を用いた。2021 年の夏から秋にかけて、各地の小売店から食品を購入し、茹でる、焼く等の一般的な調理加工を行ってから、一日当たりの摂取量に従って秤量し、混合・均一化して試料とした。分析に必要な均質性を確保する目的から、調製時に試料に加水される場合があるが、その量は農薬濃度を算出する過程において考慮した。

TD 試料は、混合・均質化の際に組み合わせる食品の種類に応じて、下記 14 群に分割して調製した。1 群:米及びその加工品、2 群:雑穀・芋、3 群:砂糖・菓子類、4 群:油脂類、5 群:豆・豆加工品、6:果実類、7 群:有色野菜、8 群:その他の野菜・海藻類、9 群:嗜好飲料、10 群:魚介類、11 群:肉・卵、12 群:乳・乳製品、13 群:調味料、14 群:飲料水。

各食品群に含まれる農薬等濃度は、LC-MS/MS あるいは GC-MS/MS で分析し、得られた濃度と食品喫食量を掛け合わせて、各食品群からの一日当たりの食品を介した残留農薬摂取量とした。各食品群からの残留農薬摂取量の総和を推定 1 日摂取量とした。1 日当たりの飲水量を 250 mL day⁻¹ として 14 群から残留農薬摂取量を算出した。各分析は3試行で行い、各食品群において1試行で添加試料の分析を行うことを基本とした。

摂取量調査の対象とした農薬等は、ADI 占有率が高いことが推定される農薬 (アセフェート、インドキサカルブ、クロルピリホス、ノバルロン、ピフェントリン、ピリダベン、フェントロチオン、ブプロフェジン、フルアジホップブチル、フルベンジアミド、ヘキサジノン、ヘプタクロル、ボスカリド、メタミドホス)およびネオニコチノイド系農薬 (アセタミプリド、イミダクロプリド、クロチアニジン、ジノテフラン、スルホキサフロル、チアクロプリド、チアメトキサム、ニテンピラム) とした。また、残留性の高い有機ハロゲン系農薬 (BHC、 γ -BHC、クロルデン、テフルトリン、ハルフェンプロックス) およびフェンプロパトリンも測定を行った。

分析法の妥当性の確認として行った添加回収試験においては、試験は最低限2種の濃度で行

った。1つは定量下限近辺の濃度とし、もう1つは定量下限の10倍近辺の濃度、検量線の間近辺の濃度、基準値がある場合は基準値近辺の濃度等から適切な濃度を選んで行った。

定量下限値および検出限界値は、5 併行以上でブランク操作を実施し、それぞれの測定溶液から得られた対象農薬等に由来する信号の平均値と標準偏差 σ を求める。あるいは、目的とする農薬等に由来するピークの近傍(ピークの半値幅の10倍の範囲)のノイズを計測し、その幅(最大値と最小値の差)の2/5をノイズの標準偏差とした。

このブランクの信号の平均値と σ の値から、平均値 + 3 σ に相当する濃度を検出限界値、平均値 + 10 σ に相当する濃度を定量下限値とした。

C. 研究結果及び考察

TD 試料中の農薬分析は、地方衛生研究所に協力して頂き行った。各食品群について、分析の妥当性を添加回収試験により確認したところ、全食品群の平均回収率は低濃度或いは高濃度添濃度のどちらかで、ほとんどの農薬の回収率は70~120%の範囲内であった。

食品中農薬濃度に喫食量を乗じて1日農薬摂取量を推定した。各地域の1日農薬摂取量の平均値を一日推定摂取量とした。定量下限(LOQ)値未満のデータは not detected (ND) として扱った。なお、農薬の摂取量評価においてはこれまで ND に $0.2 \times \text{LOQ}$ を代入して算出してきたことから、これまでと同様の計算方法と同様に算出した。とくに断りが無い限り、以降の解析においては $\text{ND} = 0.2 \text{LOQ}$ を代入して解析を行った。

3年間継続して推定した残留農薬1日摂取量の平均値 \pm 標準偏差は、BHC: 0.049 ± 0.014 $\mu\text{g}/\text{person}/\text{day}$, γ -BHC: 0.025 ± 0.020 $\mu\text{g}/\text{person}/\text{day}$, アセタミプリド(代謝物含む): 1.51 ± 1.10

$\mu\text{g}/\text{person}/\text{day}$, アセフェート: 0.236 ± 0.271 $\mu\text{g}/\text{person}/\text{day}$, イミダクロプリド: 1.07 ± 0.89 $\mu\text{g}/\text{person}/\text{day}$, インドキサカルブ: 0.004 ± 0.005 $\mu\text{g}/\text{person}/\text{day}$, クロチアニジン: 0.644 ± 0.529 $\mu\text{g}/\text{person}/\text{day}$, クロルピリホス: 0.151 ± 0.119 $\mu\text{g}/\text{person}/\text{day}$, ジノテフラン: 4.69 ± 2.86 $\mu\text{g}/\text{person}/\text{day}$, スルホキサフロル: 0.470 ± 0.639 $\mu\text{g}/\text{person}/\text{day}$, チアクロプリド: 0.328 ± 0.547 $\mu\text{g}/\text{person}/\text{day}$, チアメトキサム: 0.328 ± 1.072 $\mu\text{g}/\text{person}/\text{day}$, テフルトリン: 0.040 ± 0.002 $\mu\text{g}/\text{person}/\text{day}$, ニテンピラム: 0.223 ± 0.232 $\mu\text{g}/\text{person}/\text{day}$, ノバルロン: 0.088 ± 0.137 $\mu\text{g}/\text{person}/\text{day}$, ハルフェンブロック: 0.040 ± 0.002 $\mu\text{g}/\text{person}/\text{day}$, ビフェントリン: 0.150 ± 0.098 $\mu\text{g}/\text{person}/\text{day}$, ピリダベン: 0.060 ± 0.109 $\mu\text{g}/\text{person}/\text{day}$, フェントロチオン: 0.184 ± 0.294 $\mu\text{g}/\text{person}/\text{day}$, ブプロフェジン: 0.091 ± 0.104 $\mu\text{g}/\text{person}/\text{day}$, フルアジホップブチル(代謝物含む): 0.062 ± 0.063 $\mu\text{g}/\text{person}/\text{day}$, フルベンジアミド: 0.344 ± 0.290 $\mu\text{g}/\text{person}/\text{day}$, ヘキサジノン: 0.023 ± 0.040 $\mu\text{g}/\text{person}/\text{day}$, ヘプタクロル(異性体含む): 0.006 ± 0.004 $\mu\text{g}/\text{person}/\text{day}$, ボスカリド: 1.43 ± 0.99 $\mu\text{g}/\text{person}/\text{day}$, メタミドホス: 0.064 ± 0.108 $\mu\text{g}/\text{person}/\text{day}$ であった。

調査した全ての農薬において、対 ADI 比は1%未満であった。対 ADI 比が比較的高かったのは、クロルデン ($0.35 \pm 0.23\%$)、クロルピリホス ($0.27 \pm 0.22\%$)、メタミドホス ($0.19 \pm 0.33\%$)、アセフェート ($0.18 \pm 0.21\%$) であった。

多くの農薬について、農作物である1・2・6・7・8群の寄与率が高かい傾向にあった。

D. 結論

ADI に対する推定摂取量の割合が高いと推定されている農薬と、国民の関心が高まっているネオ

ニコチノイド系農薬に対してトータルダイエツト試料の分析結果に基づき農薬摂取量を評価した。その結果、調査対象とした農薬の1日推定摂取量のADIに対する比率は、全ての農薬において、対ADI比は1%未満であった。また、多くの農薬で6(果実類), 7(有色野菜), あるいは8群(その他の野菜・海草類)群の寄与率が高かった。

E. 研究発表

1. 論文発表

なし

2. 学会発表

- 1) 鈴木美成, 穠山浩; トータルダイエツトスタディによる農薬摂取量の推定におけるベイズモデルを用いた精緻化, 日本食品衛生学会第116回学術講演会 2020年11-12月.
- 2) 鈴木美成, 青柳光敏, 戸田英汰, 伊藤

功一, 福光徹, 萩尾真人, 林孝子, 新宅沙織, 井原紗弥香, 川崎恭寛, 中島安基江, 佐藤環, 飛石和大, 堀就英, 穠山浩; ベイズ法を用いた食品を介した残留農薬摂取量の推定の試み, 第29回環境化学討論会 2021年6月.

- 3) 鈴木美成, 青柳光敏, 戸田英汰, 伊藤功一, 福光徹, 萩尾真人, 林孝子, 新宅沙織, 井原紗弥香, 川崎恭寛, 中島安基江, 佐藤環, 飛石和大, 堀就英, 穠山浩; 不検出値を含むデータを用いたベイズ推定による残留農薬摂取量の精緻化の試み, 第58回全国衛生化学技術協議会年会 2021年12月.

F. 知的財産権の出願・登録状況

なし