

残留農薬等のばく露量推定手法の開発

研究分担者 中村公亮 国立医薬品食品衛生研究所 食品部第五室長

研究要旨

本研究は、加工食品を含む食品からの残留農薬等の化学物質のばく露量を推定する方法の開発を目的とする。具体的には、①加工食品における農薬等の残留濃度の変化率（加工係数、Processing factor [PF]）を予測する方法の開発と、②最新の全国食事調査データを用いて、加工食品を含む食品からの残留農薬のばく露量の推定方法の精緻化を目指す。①PFを予測する方法の開発：本研究課題では、輸出拡大が期待されている日本産農作物のうち、りんご、ぶどう及びトマトに着目し、これらの加工食品であるジュース、ポマース及び乾燥ポマースを対象として、PFと農薬等の物理化学的性質との関連性を解析した。残留農薬等に関する基準策定に関わるリスク評価機関〔(FAO/WHO 合同残留農薬専門家会議（Joint FAO/WHO Meeting on Pesticide Specifications, JMPR）及びFAO/WHO 合同農薬規格専門家会合（Joint FAO/WHO Meeting on Pesticide Specifications, JMPS）〕が公開しているPFに関するデータを収集し、農薬等の各種物性との関連性を解析した。その結果、りんご、ぶどう及びトマトのジュース、ポマース及び乾燥ポマースにおけるPFは、農薬の水-オクタノール分配係数及び水への溶解度と関連性が示唆された。②残留農薬のばく露量の推定方法の開発：本研究課題では、開発したばく露量推定ツールを用いて、生鮮ぶどうまたはぶどうを原材料にした食品に、食品中の残留農薬等検査結果の最大残留濃度の農薬が含有したと仮定して、そのばく露量を算出し、算出された値とJMPRが設定している残留基準値と比較した。その結果、ぶどうからの残留農薬のばく露量については、年齢区分における食品への嗜好性が大きく影響することが示唆された。

協力研究者：

山崎由貴（国立医薬品食品衛生研究所）
千葉慎司（国立医薬品食品衛生研究所）
木内隆（国立医薬品食品衛生研究所）
柏原奈央（国立医薬品食品衛生研究所）

等のばく露量の精緻化にあたっては、生鮮農産物（raw agricultural commodity, RAC）からの農薬の摂取量に加え、加工食品由来の摂取量を考慮する必要がある。その際に重要となるのが、加工過程における農薬の減衰または濃縮による残留濃度の変化率、すなわちPFである（式1）。国際的な残留農薬のリスク評価においては、例えば、RACにおける作物残留試験の残

A. 研究目的

①加工係数（processing factor, PF）を予測する方法の開発：食品からの残留農薬

留濃度中央値 (supervised trials median residue, STMR) に PF を乗じ、加工食品における残留濃度中央値 (STMR-processing, STMR-P) を推定することにより、より精密な暴露評価を行うことが求められている。

$$PF = \frac{\text{加工食品における残留濃度}}{\text{RAC における残留濃度}}$$

…式 1

PF を実験的に求めるためには、圃場での作物の栽培、農薬散布、収穫を経て、収穫した作物の加工試験を行う必要があることから、多大な時間及び費用を要することから、多岐にわたる手法で PF を予測することができれば、農薬摂取量の精緻化の一助となると考えられる。

加工食品としては、ジュース、ジャム、ピューレ、ペースト、ポマース、油等の様々な形態が挙げられるが、加工過程で農薬が減衰するものと濃縮されるものに大分される。例えばジュースにおいては、一般的にその加工過程で農薬が減衰することが知られている。一方、油においては、その加工過程で農薬が濃縮され、PF が 300 以上を示す可能性がある¹とされている。また、加工食品の形態に加えて、PF は農薬の水への溶解度、水-オクタノール分配係数 (logKow)、揮発性、加水分解性、熱分解性等の農薬の物理化学的性質に依存する可能性が示されているが²⁴、その詳細は十分に明らかとなっていない。

そこで本研究では、残留農薬に関する基準策定に関わるリスク評価機関 [国際

連合食糧農業機関 (FAO) /世界保健機構 (WHO) 合同残留農薬専門家会議 (Joint FAO/WHO Meeting on Pesticide Residues, JMPR) 及び FAO/WHO 合同農薬規格専門家会合 (Joint FAO/WHO Meeting on Pesticide Specifications, JMPS)] が公開している農薬の PF に関するデータを網羅的に収集し、PF 及び農薬の物理化学的性質の関連性を明らかにすることを目的とした。今年度は、輸出拡大が期待されている日本産農作物のうち、りんご、ぶどう及びトマトに着目し、これらの加工食品であるジュース (Juice)、ポマース (Wet pomace) 及び乾燥ポマース (Dry pomace) を対象に解析を行った。

②残留農薬等のばく露量の推定方法の開発：我が国では、2020年4月1日付で「農林水産物及び食品の輸出の促進に関する法律」が施行し、日本からの輸出拡大が期待されているところである。しかしながら、輸出先国からは、最新の食品の喫食実態に合わせて、残留農薬等の摂取量の精密な推計と評価を行うことが強く求められている。そこで我々は、全国食事調査データより得られた最新の情報を精査し、食品からの残留農薬等の摂取量を精密に推定する手法を開発した。令和3年度は、開発した手法を用いて、生鮮ぶどうと、ぶどうを原材料にしたすべての加工食品に、これまで検出された最高濃度の残留農薬が含有した場合の摂取量を推定した。摂取量は、長期ならびに短期ばく露量として試算し、JMPR等が設定した基準値と比較した。

B. 研究方法

①PFを予測する方法の開発：

PFデータの収集

FAOのホームページ（[https://www.fao.org/pest-and-pesticide-management/guidelines-standards/faowho-joint-meeting-on-pesticide-residues-jmpr/pesticides-evaluated-by-jmpr-jmps/en/](https://www.fao.org/pest-and-pesticide-management/guidelines-standards/faowho-joint-meeting-on-pesticide-residues-jmpr/jmpr-pesticides-evaluated-by-jmpr-jmps/en/)）より、1975年から2022年までに公開されたJMPR/JMPSの評価書(Evaluation)及び報告書(Report) 1,740点を入手した(最終確認日：2022年1月18日)。

入手した評価書及び報告書のうち、りんご、ぶどう及びトマトのジュース、ポマース及び乾燥ポマースの加工係数について報告のある農薬を選択し、各評価書及び報告書よりPFに関するデータを収集した。データの収集は、各加工食品の表記ゆれを考慮した上で行い、ジュースにおいては「Juice」に加えて「Apple juice」、「Grape Juice」、「Tomato juice」、「Pasteurized juice」、「Raw juice」等のデータを、ポマースにおいては「Wet pomace」に加えて「Strain rest」、「Pomace, wet」等のデータを、乾燥ポマースにおいては「Dry pomace」に加えて「Dried pomace」、「Pomace, dry」等のデータをあわせて収集した。

また、本研究では、圃場試験1回につき1つのPFに関するデータを収集した。すなわち、同条件で栽培した農産物について複数回の加工試験が行われている場合には、各加工試験のPFの平均値をデータとして収集した。なお、同一圃場内で収穫前日数が異なるPFが複数示されている場合には、別データとして取り扱うこ

ととした。

PFデータの整理

収集したPFデータのうち、農薬の規制対象に代謝物が含まれる場合には、親化合物のPFのみを解析対象とした。RAC及び加工食品の双方において親化合物の残留が認められず、かつ代謝物の物性値が明らかでない場合、当該農薬は解析対象外とした(例えば、殺菌剤Thiram)。また、RAC及び加工食品の双方において親化合物の残留が認められない一方、代謝物が検出され、かつ代謝物の物性値が明らかとなっている場合には、代謝物のPFデータを対象として解析を行った(例えば、殺菌剤Benomyl及び除草剤Dichlobenil)。

ぶどうについては、ジュース及びワインの間で製法及び得られる加工食品の組成が大きく異なることから、「Juice production」と「Wine production」が明確に区別して記載されている場合、「Wine production」由来のジュース及びポマースのデータは解析対象外とした。

また、RACにおける残留濃度が定量限界未満のデータ、RACにおける残留濃度が示されておらずPF計算時の分母が「Washed fruits」のデータ、りんごにおいて果皮除去後にジュースを調製しているデータについても解析対象外とした。

農薬等の物性値の収集

各農薬等の分子量、蒸気圧、logKow、水への溶解度及び比重は、The Pesticide Manual 18th Edition⁵及びJMPR/JMPSの評価書及び報告書より収集した。

データ解析及び統計解析

データ解析は、R ソフトウェア及び JMP ソフトウェアを用いて行った。各農薬の PF について代表値が必要な場合には、複数の加工試験から得られた PF の中央値を用いた。

各データの正規性は Shapiro-Wilk test により確認した。PF 及び農薬の物性値の関連性は相関分析及び単回帰分析により検討した。相関分析においては Spearman の順位相関係数を算出し、多重比較は false discovery rate (FDR) 法により補正した。また、農薬の物性値を基に PF 予測モデルを確立できるか否かを明らかとするため、PF を目的変数、農薬の物性値を説明変数とした重回帰分析を行った。説明変数の選択は強制投入法及びステップワイズ法（変数増減法）により行い、ステップワイズ法においては、赤池情報量規準 (Akaike Information Criterion, AIC) の値が最小となるようにモデル選択を行った。いずれの検定においても、 $p < 0.05$ を有意差ありとした。

各解析及び作図においては、R ソフトウェアの追加パッケージ「psych」、「tidyr」、「ggplot2」、「ggpubr」、「ggparallel」及び「tidyverse」を使用した。

② 残留農薬等の摂取量を推定方法の開發：

1. 食品中の残留農薬等の摂取量推計に用いたデータ

本研究班で収集した、以下の 3 種類のデータを食品中の残留農薬等の摂取量推計に供した。

① 食品の摂取量データ

分担研究者佐々木らがまとめた、調査対象を年齢区分 (1~6 歳、7~64 歳、65 歳以上、14~50 歳の妊娠可能な女性と参加者全体[1 歳以上]) における食品の摂取量

② 調理加工係数データ

分担研究者吉池らがまとめた、各食品を原材料まで分解させる換算係数

③ 農薬等の PF データ

分担研究者中村らがまとめた、海外ならびに国際機関の報告書ならびに評価書を参考に取り纏めた PF 値

残留農薬の摂取量推計には、厚生労働省ホームページで公開されている“食品中の残留農薬等検査結果について”の情報を参照した。平成 30 年度において“ぶどう”で検出された 54 品目の農薬の最大残留濃度を推計に供した。

2. ばく露量計算ツール

残留農薬等のばく露量の計算プログラムには、エクセルの VBA を使った Excel 2019 のマクロを用い、以下の機能を付与した。

① 入力データとして用いる「農薬品目名」、「作物名」、「作物中の農薬濃度」を選択できるグラフィカルユーザーインターフェース

② 加工食品の原材料を同定するため、日本食品標準成分表の中で食品番号が付与されている「作物」までを自動分解

③ 食品番号をキーとして PF データから計算に用いる PF 値を指定

(同一作物の同一食品に複数の PF 値が存在した場合は、最大の PF 値を選択、または、対応する PF 値が無い食品には PF

値を“1.0”とした。)

④ばく露量の計算に用いた、各年齢区分別の食品の摂取量、農薬等の検出濃度、PF値、調理加工係数、ならびに、ばく露量計算結果のデータ出力

本研究で開発した計算プログラムを用いて、生鮮ぶどうまたはぶどうを原材料にしたすべての食品に、食品中の残留農薬等検査の結果から最大残留濃度の農薬等が含有したと仮定して、ばく露量を推計した。下記の方程式に従って算出される長期ならびに短期ばく露量と、残留農薬の国際規格基準値 CXL、国内外で設定されている最大残留基準値 MRL、各農薬の許容一日摂取量 ADI または急性参照用量 ARfD と比較し、考察した。

1日当たりの平均的な農薬等の摂取量(長期ばく露量)の推計:

$$CP_{\text{農薬}}^{\text{作物}} \times 0.001 \times \sum_{\text{食品}} \left\{ PF_{\text{作物}}^{\text{食品}} \right. \\ \times \prod_{n \text{ 分解}} CF_{n \text{ 分解}}^{\text{食品}} \\ \left. \times FC_{\text{平均}}^{\text{食品}} \div BW_{\text{平均}}^{\text{食品}} \right\}$$

CP: 作物から検出された農薬等の最高濃度 (mg/kg)

平成30年度食品中の残留農薬等検査結果(厚労省ホームページ)を参照

PF: 加工の過程における残留量の変化率

CF: 食品を原材料の作物に分解される系列 n 分解目の調理加工係数

FC: 年齢区分別の食品の平均摂取量 (g/day/person)

BW: 平均体重 (kg bw/person)

個別の食品の摂取量の 97.5 パーセントイル値に、作物残留試験成績における最大の残留濃度を乗じた摂取量(短期ばく露量)の推計:

$$CP_{\text{農薬}}^{\text{作物}} \times 0.001 \times \max_{\text{食品}} \left\{ PF_{\text{作物}}^{\text{食品}} \right. \\ \times \prod_{n \text{ 分解}} CF_{n \text{ 分解}}^{\text{食品}} \\ \left. \times FC_{97.5\% \text{tile}}^{\text{食品}} \div BW_{97.5\% \text{tile}}^{\text{食品}} \right\}$$

CP: 作物から検出された農薬等の最高濃度 (mg/kg)

平成30年度食品中の残留農薬等検査結果(厚労省ホームページ)を参照

PF: 加工の過程における残留量の変化率

CF: 食品を原材料の作物に分解される系列 n 分解目の調理加工係数

FC: 年齢区分別の食品の摂取量 97.5 パーセントマイル (g/day/person)

BW: 97.5%tile 体重 (kg bw/person)

なお、開発したツールのデータの前処理には、大容量のデータから推計計算に必要な処理時間を短縮するため、食品を分解し得られる作物毎の調理加工係数データと、農薬等の PF 値を農薬毎に分解して、特定の作物を介して摂取される推計量計算時のデータアクセス範囲を限定した。調理加工係数に関するデータは、食品毎に“食品群の要素単位までの完全分解”とした。残留農薬の PF は、農薬別にエクセル・シート化し、調理加工係数データと関連づけるためのキーとして、日本食品標準成分表 2020 年版(八訂)の食品番号

を用いた。

C. 研究結果

①PFを予測する方法の開発：

1. PFのデータ整理

B.1 及び B.2 に示したデータ整理後の PF のデータの数は、**Table 1** に示した。りんごのジュースにおいては 330 件 (83 農薬)、ポマースにおいては 238 件 (73 農薬)、乾燥ポマースにおいては 147 件 (57 農薬)、ぶどうのジュースにおいては 456 件 (89 農薬)、ポマースにおいては 205 件 (59 農薬)、乾燥ポマースにおいては 123 件 (38 農薬)、トマトのジュースにおいては 309 件 (81 農薬)、ポマースにおいては 145 件 (62 農薬)、乾燥ポマースにおいては 69 件 (40 農薬) の PF を解析対象とした。

2. PF 及び農薬物性値の関連性：相関分析

りんご、ぶどう及びトマトのジュース、ポマース及び乾燥ポマースにおける PF と農薬の物性値との関連性を明らかにするため、Spearman の順位相関係数を求めることにより相関分析を行った (**Table 2**)。

りんごのジュースにおいては、PF と分子量及び $\log K_{ow}$ の間に負の相関性が、PF と水への溶解度の間に正の相関性が認められた。りんごのポマース及び乾燥ポマースにおいては、PF と分子量及び $\log K_{ow}$ の間に正の相関性が、PF と水への溶解度の間に負の相関性が認められた。

ぶどうのジュースにおいては、PF と分子量及び $\log K_{ow}$ の間に負の相関性が、PF と水への溶解度の間に正の相関性が認め

られた。ぶどうのポマース及び乾燥ポマースにおいては、PF と農薬の物性値の間に有意な相関性は認められなかった。

トマトのジュースにおいては、PF と $\log K_{ow}$ の間に負の相関性が、PF と水への溶解度の間に正の相関性が認められた。

トマトのポマース及び乾燥ポマースにおいては、PF と分子量及び $\log K_{ow}$ の間に正の相関性が、PF と水への溶解度の間に負の相関性が認められた。

3. PF 及び農薬の $\log K_{ow}$ の関連性：単回帰分析

りんご及びトマトのジュース、ポマース及び乾燥ポマース、ぶどうのジュースにおいて、PF と $\log K_{ow}$ には、正又は負の関連性が認められた (**Table 2**)。そこで、縦軸を PF、横軸を $\log K_{ow}$ とした散布図を作成し、各加工形態について単回帰分析を行った。その結果、りんご、ぶどう及びトマトのいずれにおいても、ジュースでは負の傾きを持つ回帰直線が、ポマース及び乾燥ポマースでは正の傾きを持つ回帰直線が得られた (**Figure 1**)。農薬によっては、加工試験間で PF がばらつく傾向があるものの、ジュースにおける PF は農薬の $\log K_{ow}$ によらず概ね 1 以下、ポマース及び乾燥ポマースにおける PF は $\log K_{ow}$ が 3 以上の農薬で概ね 1 より大きい値を示した。

4. PF 及び農薬の水への溶解度の関連性：単回帰分析

りんご及びトマトのジュース、ポマース及び乾燥ポマース、ぶどうのジュースには、PF と水への溶解度に正又は負の関

連性が認められた (Table 2)。そこで、縦軸を PF、横軸を水への溶解度とした散布図を作成し、各加工形態について単回帰分析を行った。その結果、りんご及びトマトにおいては、ジュースでは正の傾きを持つ回帰直線が、ポマース及び乾燥ポマースでは負の傾きを持つ回帰直線が得られた (Figure 2)。ぶどうにおいては、ジュースでは正の傾きを持つ回帰直線が、ポマースでは負の傾きを持つ回帰直線が得られた。一方、乾燥ポマースでは、回帰直線の傾きは確認できなかった。

農薬によっては、加工試験間で PF がばらつく傾向があるものの、ジュースにおける PF は農薬の水への溶解度によらず概ね 1 以下、ポマース及び乾燥ポマースにおける PF は水への溶解度が 1 mg/L 以上の農薬で概ね 1 より大きい値を示した。

5. PF 予測モデルの確立：重回帰分析

農薬の物性値を基に PF 予測モデルを確立できるか否かを明らかとするため、PF を目的変数、農薬の物性値を説明変数とした重回帰分析を行った。

各食品及び加工形態の重回帰分析において、決定係数 (R^2) が最も高値を示した回帰式の一覧を Table 3 に示した。ぶどうのポマース及び乾燥ポマースについては、強制投入法及びステップワイズ法ともに、有意な回帰式が得られなかった (data not shown)。また、強制投入法及びステップワイズ法により求めた各回帰式のうち、自由度調整済み決定係数 (adjusted R^2) が最も高値を示したのは、いずれもステップワイズ法により求めた回帰式であった (data not shown)。

ステップワイズ法で求めたりんごの乾燥ポマースの回帰式において、蒸気圧は有意な説明変数ではないものの、 $\log K_{ow}$ 及び蒸気圧を説明変数としたモデルが最も低い AIC を示した (data not shown)。また、ステップワイズ法で求めたトマトのジュースの回帰式において、水への溶解度は有意な説明変数ではないものの、 $\log K_{ow}$ 及び水への溶解度を説明変数としたモデルが最も低い AIC を示した (data not shown)。 $\log K_{ow}$ 及び水への溶解度の間には負の相関性が認められることから (Table 2)、 $\log K_{ow}$ 及び水への溶解度間の多重共線性を確認するため、両変数間の variance inflation factor (VIF) を算出した。その結果、VIF は 1.38 を示したことから、 $\log K_{ow}$ 及び水への溶解度間に多重共線性は認められないと判断された。

②残留農薬等のばく露量の推定方法の開発：

1. 残留農薬等の摂取量推計ツールの開発

本研究で開発した残留農薬等の摂取量推計ツールの計算フローのスキームを Figure 3 に示す。計算に用いた食品の摂取量は年齢区分毎の情報、調理加工係数は最終分解された食品毎の情報、PF は JMPR で評価された農薬毎の情報を自動で抽出できるようプログラムを構築した。すべてのデータは、日本食品標準成分表の食品番号に対応させた。長期ならびに短期ばく露量は、本プログラムに農薬等名ならびに農薬等の残留量を入力して、自動計算が可能なエクセルのマクロ機能を用いたツールを開発した (Figure 4)。

2. 推計プログラムのツールとしての動作チェック

開発したばく露量推計ツールの動作チェックを行うため、“ぶどう”の摂取を例に取り上げた。生鮮ぶどうならびにぶどうを原材料とした食品を摂取した場合を想定し、検出された農薬等のばく露量を算出した。**Figure 5**は、ツールに実装させたデータベースの中から、年齢区分別のぶどうの摂取量ならびにぶどうを含有する各加工食品の原材料までを分解した調理加工係数に関する情報を集約した結果を示す。集約したデータは、ばく露量の計算式に供し、短期ばく露量と長期ばく露量の推計を行った。本研究班で収集した日本人の年齢区分別毎の食品の平均摂取量ならびに97.5パーセントタイル値、加工食品のPF値を用いて、残留農薬等のばく露量の自動計算は可能であることが示唆された (**Figure 6**)。

3. 推計されたばく露量と基準値との比較

開発したツールを用いて、各年齢層別の残留農薬等の短期と長期ばく露量を試算した。厚生労働省ホームページ「平成30年度食品中の残留農薬等検査結果」で公開されている、ぶどうに検出された各農薬の最大の残留量が食品に含有したと仮定し、1～6歳、7～64歳、65歳以上、1歳以上の各年齢層別の男女、ならびに、14～50歳の女性のばく露量を推計した (**Figure 7**)。長期ばく露量は、各食品の平均摂取量から求められる農薬等の摂取量の合算値から推定した。平成30年度の残

留農薬モニタリング検査では、日本産ぶどうから検出された農薬等は40品目、海外産ぶどうから検出された農薬等は32品目であった。各農薬のばく露量の推定値を算出し、JMPRのADIとの比率(対ADI比)を算出した (**図 5A** [国内産ぶどうの場合]、**Figure 7B** [海外産ぶどうの場合])。その結果、1～6歳の小児の長期ばく露量は他の年齢区分と比較して突出して高いことが示唆された。推計された長期ばく露量と各農薬等のJMPRの基準値ADIを比較した結果、対ADI比では、国内産では殺菌剤Famoxadoneで0.045、海外産では殺菌剤Cyprodinilで0.043であった。

短期ばく露量 (**Figure 7C** [国内産ぶどう]、**Figure 7D** [海外産ぶどう]) は、各食品の摂取量97.5%タイル値から求められる。ばく露量の計算に供した摂取量97.5%タイル値の食品は、以下の通り年齢層で異なっていた。

1～6歳の小児で最大の97.5%タイル値であった食品

ぶどう 果実飲料 ストレートジュース
(食品番号 07118)

7～64歳の一般の人で最大の97.5%タイル値であった食品

ぶどう 果実飲料 ストレートジュース
(食品番号 07118)

14～50歳の妊娠可能な女性で最大の97.5%タイル値であった食品

<アルコール飲料類> (醸造酒類) ぶどう酒 白 (食品番号 16010)

65歳以上で最大の97.5%タイル値であった食品

<アルコール飲料類> (醸造酒類) ぶどう酒 白 (食品番号 16010)

1 歳以上で最大の 97.5%タイル値であった食品

＜アルコール飲料類＞（混成酒類）スイートワイン（食品番号 16029）

本研究で算出された短期ばく露量と、各農薬等の JMPR の ARfD と比較を行った結果、対 ARfD 比では、年齢区分別の明確な偏りはないものの、小児（1～6 歳）と 65 歳以上の高齢者に高い傾向にあった。対 ARfD 比の最高値は、国内産では殺虫剤 Bifenthrin で 0.064、海外産では殺虫剤 Fenpropathrin で 0.344 であった。長期と短期ばく露量のパターンは、年齢区分別で異なっていた。これは、年齢区分によって特定の食品への嗜好性が異なるためと考えられた。

D. 考察

①PF を予測する方法の開発：

本研究では、JMPR 及び JMPS の評価書及び報告書より PF データを網羅的に解析し、PF 及び農薬の物性値物理化学的性質の関連性を明らかにすることを目的とした。今年度は、輸出拡大が期待されている日本産農作物のうち、りんご、ぶどう及びトマトに注目し、これらの加工食品であるジュース、ポマース及び乾燥ポマースを対象として解析を行った。

PF と分子量、蒸気圧、 $\log K_{ow}$ 、水への溶解度及び比重等の農薬の物性値の関連性を検討した結果、りんご及びトマトのジュース、ポマース及び乾燥ポマース、及びぶどうのジュースには、PF と農薬の $\log K_{ow}$ 及び水への溶解性に関連性があることが示された（Table 2）。また、ジュー

スにおける PF は農薬の $\log K_{ow}$ 及び水への溶解度によらず概ね 1 以下、ポマース及び乾燥ポマースにおける PF は $\log K_{ow}$ が 3 以上又は水への溶解度が 1 mg/L 以上の農薬で概ね 1 より大きい値を示し（Figure 1 及び 2）、農薬の物性値から PF を推定できる可能性が示された。

重回帰分析による PF 予測モデルの構築を試みた結果、りんご及びトマトのジュース、ポマース及び乾燥ポマース、及びぶどうのジュースにおいて、有意な回帰式が得られた（Table 3）。従って、 $\log K_{ow}$ 、蒸気圧、水への溶解度、比重等の農薬の物性値を説明変数として、PF 予測モデルを構築できることが示唆された。しかしながら、ぶどうのポマース及び乾燥ポマースにおいては、有意な回帰式を得られなかった。本研究では、JMPR 及び JMPS の評価書及び報告書において「Juice production」と「Wine production」が明確に区別して記載されている場合、「Wine production」由来のジュース及びポマースのデータは解析対象外とした。一方で、「Juice production」由来の PF 値が「Wine production」由来か判断できないデータについては解析対象としていることから、データセットの一部に「Wine production」由来のデータが含まれていることが予想される。ワインの加工においては、農薬残留量の多い果梗を除去せずに搾汁を行う場合がある、発酵後に搾汁を行う場合がある等、ジュースの加工と異なる点が数多く挙げられることから、「Juice production」由来のポマースと「Wine production」由来のポマースの PF は異なる値を示すと考えられる。実際に、JMPR

及び JMPS の複数の評価書において、「Juice production」由来のポマースの PF と「Wine production」由来のポマースの PF には差異が認められることが示されている^{6,9}。以上のことより、ぶどうのポマース及び乾燥ポマースにおいて有意な回帰式を得られなかった理由として、データセットの一部に「Wine production」由来のデータが含まれていることが一因である可能性が考えられた。

りんご及びトマトのジュース、ポマース及び乾燥ポマース、及びぶどうのジュースにおいて、農薬の物性値を説明変数として有意な回帰式が得られた一方で、回帰式の説明率を表す adjusted R² は最大でも 0.314 であった (Table 3)。すなわち、本研究で求めた PF 予測モデルでは、データセットに含まれる PF データのうち 68% 以上の情報を欠失することが示された。この原因として、①解析に投入した農薬物性値の不足、②加工方法が統一されていない等の要因が考えられる。特に②について、加工試験における食品の加工方法は「commercial practice」を模すこととされているが¹、その詳細は定められておらず、加工試験ごとに異なる方法及び機器を用いて RAC の加工を行っている。実際の PF データにおいても、同一の農薬及び加工形態内で PF 値に大きなばらつきが認められる場合があるが (Figure 1 及び 2)、この一因として、加工方法が統一されていないことが挙げられる。過去の報告において、りんごに複数の農薬を散布し、ジュースにおける各農薬の PF を同一加工条件下で算出した結果、pK_{ow} 及び土壌吸着係数 (pK_{oc}) を説明変数とした R² =

0.702 の重回帰モデルが得られることが示されている¹⁰。また、収穫後のぶどうに複数の農薬を添加し、ワインにおける各農薬の PF を同一加工条件下で算出した結果、pK_{ow} を説明変数とした R² = 0.8522 の単回帰モデルが得られることも示されている¹¹。これらのことから、本研究で用いた JMPS 及び JMPS のデータを基により精度の高い PF 予測モデルを確立するためには、各加工試験における加工条件及び加工食品の収量等を精査し、それらを PF に反映させた上で解析を行う必要があると考えられる。また、今回解析に含めなかった農薬の物性値を説明変数として投入する、各農薬の PF を同一加工条件下で算出したデータセットを解析する等の手法も有効かもしれない。

我が国において広く用いられている農薬の中にも、JMPS 及び JMPS の評価書及び報告書において PF が報告されていない農薬が数多く存在する。これらの農薬の PF を明らかにすることは、日本産農産物を用いて製造された加工食品の輸出拡大を図るにあたって、非常に重要であると考えられる。今後はより精確な PF 予測モデルの確立を目指すとともに、確立した PF 予測モデルの妥当性を実験的に評価し、加工食品の輸出拡大に貢献するデータを拠出していきたい。

②残留農薬等のばく露量の推定方法の開発：残留農薬等のばく露量の推計値には、摂取する食品の種類や量、調理・加工における原材料中の農薬等の残留量が影響する。本研究の結果より、調査対象とした年齢区分によって、食品の喫食に關す

る嗜好性の違いから、推計された農薬等のばく露量は異なっていた。平成30年度のぶどう中の残留農薬等のモニタリング結果より報告された海外産と国内産のぶどうに検出された残留農薬の品目と濃度は異なる。例えば、抗カビ剤として使用される pyrimethanil は、国内産ぶどうからは、pyrimethanil は検出されていない。また、海外産ぶどうを摂取した場合の短期ばく露量は、国内産ぶどうを摂取した場合に比べ多くの農薬において高く算出された。したがって、ばく露量の推計に供するモニタリングデータの影響は大きいことが示唆された。

ぶどうを含むすべての食品から検出された農薬のばく露量の推計値と基準値と比較した結果 (Figure 7)、以下の点が示唆された。

1. 年齢区分毎の各農薬のばく露量のパターンは、PF が同じであれば相似となる。本研究で用いた以下の方程式 (1) において説明できる。ADI との比較の参考となるばく露量の計算：

$$CP_{\text{農薬}}^{\text{作物}} \times 0.001 \times \sum_{\text{食品}} \left\{ PF_{\text{作物}}^{\text{食品}} \times \prod_{n \text{ 分解}} CF_{n \text{ 分解}}^{\text{食品}} \times FC_{\text{平均}}^{\text{食品}} \div BW_{\text{平均}}^{\text{食品}} \right\} \dots (1)$$

$CP_{\text{農薬}}^{\text{作物}}$: 作物から検出した農薬の濃度 (mg/kg)

$PF_{\text{作物}}^{\text{食品}}$: 作物から食品の農薬加工係数

$CF_{n \text{ 分解}}^{\text{食品}}$: 食品を分解し、最終的に作物に分解される系列の n 分解目の調理係数

$FC_{\text{平均}}^{\text{食品}}$: 食品の平均摂取量 (g/day/person)

$BW_{\text{平均}}^{\text{食品}}$: 平均体重 (kg bw/person)

したがって、 $PF_{\text{作物}}^{\text{食品}}$ が同じ (農薬、作物、

食品によらず一定の PF) となれば ADI (許容一日摂取量) との比較の参考となる値は

$$CP_{\text{農薬}}^{\text{作物}} \times 0.001 \times PF \times \sum_{\text{食品}} \left\{ \prod_{n \text{ 分解}} CF_{n \text{ 分解}}^{\text{食品}} \times FC_{\text{平均}}^{\text{食品}} \div BW_{\text{平均}}^{\text{食品}} \right\} = CP_{\text{農薬}}^{\text{作物}} \times 0.001 \times PF \times FF_{\text{年齢区分}}$$

となる。ただし、 $\sum_{\text{食品}} \left\{ \prod_{n \text{ 分解}} CF_{n \text{ 分解}}^{\text{食品}} \times FC_{\text{平均}}^{\text{食品}} \div BW_{\text{平均}}^{\text{食品}} \right\}$ を $FF_{\text{年齢区分}}$ とした。したがって、 $FF_{\text{年齢区分}}$ を年齢区分の関数と考えると、 $FF_{\text{年齢区分}}$ は ADI (許容一日摂取量) との比較の参考となる結果の年齢区分の分布における形状因子、 $CP_{\text{農薬}}^{\text{作物}} \times 0.001 \times PF$ はゲイン項と考えることができる。すなわち、PF が農薬によらず一定と仮定すると、形状因子は農薬に依存する項目を持たないことになり、形状が一定、ゲイン項に比例することになり相似形状となる。

2. 各農薬のばく露量は、PF が大きく影響していることが示唆された。例えば、65 歳以上のグループでは、Pyrimethanil のばく露量は 0.082 mg/kg bw/day であったのに対し、Fenhexamid のばく露量は 0.017 mg/kg bw/day であった。このばく露量の差は、ぶどう酒 白 (食品番号 16010) の PF 値 (Pyrimethanil=2.9, Fenhexamid=0.9) の差によるものであった (農薬濃度はそれぞれ 1.75 ppm と 1.15 ppm、ぶどう酒 白の摂取量は共に 800 g/人/day)。

3. 算出された各農薬のばく露量 (mg/kg bw/day) は、インプット情報として用いた農薬の検出濃度が影響した。方程式 (1) を用いた場合、各農薬の検出濃度 CP は、ばく露量のゲイン項であることから、検出濃度に比例することになるからである。

4. 調査対象とした年齢区分によって、食品の喫食に関する嗜好性の違いから、農

薬のばく露量は異なっていた。ばく露量の形状因子は、 $FC_{平均}^{食品}$ に依存するからである。(ただし、ばく露量は、推計に用いる平均体重に反比例する。)

5. 「1～6歳の小児」における長期ばく露量は、他の年齢区分に比べ圧倒的に多いが、短期ばく露量は、他の年齢区分と同程度であった。これは、食品への嗜好性の影響が反映しているためと思われる。すなわち、食事調査データの重要性を示唆している。

6. ADIは全食品からの影響を合算するが、ARfDは食品の97.5%タイル摂取量から計算されるばく露量の最大値から推定される(方程式(2))。

ARfD(急性参照用量)との比較の参考となる結果:

$$CP_{作物}^{農薬} \times 0.001 \times \max_{食品} \left\{ PF_{作物}^{食品} \times \prod_{n分解} CF_{n分解}^{食品} \times FC_{97.5\%tile}^{食品} \div BW_{97.5\%tile}^{食品} \right\} \dots (2)$$

$CP_{作物}^{農薬}$: 作物から検出した農薬の濃度 (mg/kg)

$PF_{作物}^{食品}$: 作物から食品の農薬加工係数

$CF_{n分解}^{食品}$: 食品を分解し、最終的に作物に

分解される系列のn分解目の調理係数

$FC_{97.5\%tile}^{食品}$: 食品の97.5%tile摂取量 (g/day/person)

$BW_{97.5\%tile}^{食品}$: 97.5%tile体重 (kg bw/person)

(1)と(2)の両式には、食品の摂取量データが含まれている。したがって、年齢区分毎の食品の摂取量データは、ばく露量に影響した。

7. Fenpropathrinの短期ばく露量推計値とJMPRが設定したARfD値との比は0.344

で、他の農薬等と比較して高く算出された。Fenpropathrinのばく露量は他の農薬に比べ少ないが、本農薬にはARfD値が低く設定されているためと推測された。

E. 結論

①PFを予測する方法の開発:

JMPR及びJMPSが公開しているPFデータの網羅的解析により、りんご及びトマトのジュース、ポマース及び乾燥ポマース、及びぶどうのジュースにおいて、PFと農薬の $\log K_{ow}$ 及び水への溶解性に関連性があることが示された。すなわち、農薬の物性値からPFを推定できる可能性が示された。一方で、分子量、蒸気圧、 $\log K_{ow}$ 、水への溶解度及び比重からPFを予測する重回帰モデルの説明率は最大でも31%であったことから、PFをより精確に予測するためには、さらなるデータの精査及びモデルの改良が必要であると考えられた。

②残留農薬等のばく露量の推定方法の開発: 開発したばく露量計算ツールを用いて、食品の摂取による農薬等の短期ならびに長期ばく露量を推計することができた。本研究の最終年度(令和4年度)では、特に胎児期におけるばく露による神経行動学的異常が報告されているChlorpyrifosや、市販の国内産や海外産のぶどうのモニタリング試験より検出された農薬等(Kresoxim-methyl、Famoxadone、Mandipropamid)の日本人のばく露量を算出し、国内外の基準値等と比較して考察したい。

参考文献

1. OECD, Test Guideline No. 508: Magnitude of the Pesticide Residues in Processed Commodities, OECD Guidelines for the Testing of Chemicals, Section 5, OECD Publishing, 2008. doi:10.1787/9789264067622-en.
2. Abou-Arab, A., Behavior of pesticides in tomatoes during commercial and home preparation. *Food Chemistry*, 65, 509-514, 1999.
3. Chavarri, M. J.; Herrera, A.; Ariño, A., The decrease in pesticides in fruit and vegetables during commercial processing. *International journal of food science & technology*, 40, 205-211, 2005.
4. Sharma, J.; Satya, S.; Kumar, V.; Tewary, D. K., Dissipation of pesticides during bread-making. *Chemical Health & Safety*, 12, 17-22, 2005.
5. British Crop Production Council (BCPC), Pesticide Manual 18th Edition 2018.
6. JMPR Evaluation, Dithianon 2013, Available online: https://www.fao.org/fileadmin/user_upload/IPM_Pesticide/JMPR/Evaluations/2013/Dithianon.pdf (accessed on 24 March 2022).
7. JMPR Evaluation, Benzovindiflupyr 2016, Available online: https://www.fao.org/fileadmin/user_upload/IPM_Pesticide/JMPR/Evaluations/2016/BENZOVINDIFLUPYR.pdf (accessed on 24 March 2022).
8. JMPR Evaluation, Oxathiapiprolin 2016, Available online: https://www.fao.org/fileadmin/user_upload/IPM_Pesticide/JMPR/Evaluations/2016/OXATHIPIPROLIN.pdf (accessed on 24 March 2022).
9. JMPR Evaluation, Pydiflumetofen 2018, https://www.fao.org/fileadmin/user_upload/IPM_Pesticide/JMPR/Evaluations/2018/Pydiflumetofen_309_.pdf (accessed on 24 March 2022).
10. Martin, L.; Mezcuca, M.; Ferrer, C.; Gil Garcia, M.; Malato, O.; Fernandez-Alba, A., Prediction of the processing factor for pesticides in apple juice by principal component analysis and multiple linear regression. *Food Additives & Contaminants: Part A*, 30, 466-476, 2013.
11. Pazzirota, T.; Martin, L.; Mezcuca, M.; Ferrer, C.; Fernandez-Alba, A., Processing factor for a selected group of pesticides in a wine-making process: distribution of pesticides during grape processing. *Food Additives & Contaminants: Part A*, 30, 1752-1760, 2013.

F. 研究発表

1. 論文等発表

1. 中村公亮、穂山浩、食品中の残留農薬等の基準に係わる情報の包括的データベースの構築、*食品衛生研究*, 72, 1, 17-23, 2022
2. 阿波圭介、福澤学、渡邊敬浩、中村公亮、FAO/WHO 合同食品規格計画第 52 回残留農薬部会 (CCPR) 報告、*食品衛生研究*, 72, 3, 27-36, 2022

2. 学会発表

1. 中村公亮、千葉慎司、木内隆、吉池信男、小川久美子、堤智昭、穠山浩：一日最大喫食量データを用いた動物用医薬品等の短期摂取量推計の精緻化、日本薬学会第 142 年会、2022 年 3 月 25 日（金）～28 日（月）、名古屋
2. 山崎由貴、中村公亮、千葉慎司、柏原奈央、穠山浩、堤智昭：国際機関の公開評価データを用いた食品の加工係数の網羅的解析、日本薬学会第 142 年会、2022 年 3 月 25 日（金）～28 日（月）、名古屋
3. 中村公亮、千葉慎司、鶴身和彦、加藤公子、堤智昭、穠山浩：日本の食品中農薬残留基準に関わる情報を統合させたデータベースのツール開発（第一報）、第 55 回全国衛生化学技術協議会年会、令和 3 年 11 月 15 日（月）～26 日（金）
4. Nakamura, K., Chiba, S., Kashiwabara, N., Sasaki, S., Yoshiike, N., Tsutsumi, T., Akiyama, H. Estimation of a pesticide residue concentration in processed food using a processing factor, The 2021 AOAC Annual Meeting & Exposition at Boston, Massachusetts, USA (In-person and Virtual) Aug. 27-Sep. 2, 2021
5. 千葉慎司、中村公亮、鍋師裕美、堤智昭、蜂須賀暁子、穠山浩：食品中の放射性セシウムに関する公開検査データに基づく日本産水産物の現状について、日本食品化学学会 第 27 回総会・学術大会、川崎市、2021 年 6 月 10 日（木）～6 月 11 日（金）
6. 中村公亮、千葉慎司、佐々木敏、吉池信男、穠山浩：国際機関の公開評価データと農薬の物性値から予測される加工食品中の残留農薬量の変化、日本食品化学学会 第 27 回 総会・学術大会、川崎市、2021 年 6 月 10 日（木）～6 月 11 日（金）

G. 知的所有権の出願・登録状況

なし

Table 1. Number of pesticides and their PF values examined in this study.

Processed commodities	Apple		Grape		Tomato	
	Pesticides	PF	Pesticides	PF	Pesticides	PF
Juice	83	330	89	456	81	309
Wet pomace	73	238	59	205	62	145
Dry pomace	57	147	38	123	40	69

Table 2. Spearman's rank correlation matrix between PF and physicochemical properties of pesticides in the juice, wet pomace, and dry pomace that were processed from apple, grape, and tomato.

Apple, Juice							Grape, Juice							Tomato, Juice						
	PF	Molecular weight	Vapor pressure (mPa)	logK _{ow}	Solubility in water (mg/L)	Specific gravity	PF	Molecular weight	Vapor pressure (mPa)	logK _{ow}	Solubility in water (mg/L)	Specific gravity	PF	Molecular weight	Vapor pressure (mPa)	logK _{ow}	Solubility in water (mg/L)	Specific gravity		
Molecular weight	1.00	1.00	1.00	1.00	1.00	1.00	1.00	1.00	1.00	1.00	1.00	1.00	1.00	1.00	1.00	1.00	1.00	1.00		
Vapor pressure (mPa)	-0.41***	-0.34***	1.00	1.00	1.00	1.00	-0.29*	-0.05	-0.37**	1.00	1.00	1.00	-0.19	1.00	-0.34***	1.00	1.00	1.00		
logK _{ow}	0.08	0.59***	-0.02	1.00	1.00	1.00	-0.40***	0.46***	-0.01	1.00	1.00	1.00	-0.33**	0.52***	-0.06	1.00	1.00	1.00		
Solubility in water (mg/L)	0.57***	-0.88***	0.28*	-0.82***	1.00	1.00	0.41***	-0.58***	0.23*	-0.73***	1.00	1.00	0.35**	-0.86***	0.25	-0.81***	1.00	1.00		
Specific gravity	-0.11	0.04	-0.21	-0.15	-0.09	1.00	-0.05	0.05	-0.26*	-0.23*	-0.10	1.00	-0.03	0.24	-0.17	-0.07	-0.20	1.00		
Apple, Wet pomace							Grape, Wet pomace							Tomato, Wet pomace						
	PF	Molecular weight	Vapor pressure (mPa)	logK _{ow}	Solubility in water (mg/L)	Specific gravity	PF	Molecular weight	Vapor pressure (mPa)	logK _{ow}	Solubility in water (mg/L)	Specific gravity	PF	Molecular weight	Vapor pressure (mPa)	logK _{ow}	Solubility in water (mg/L)	Specific gravity		
Molecular weight	1.00	1.00	1.00	1.00	1.00	1.00	1.00	1.00	1.00	1.00	1.00	1.00	1.00	1.00	1.00	1.00	1.00	1.00		
Vapor pressure (mPa)	-0.14	-0.38**	1.00	1.00	1.00	1.00	-0.13	-0.32*	1.00	1.00	1.00	1.00	-0.15	-0.40**	1.00	1.00	1.00	1.00		
logK _{ow}	0.57***	0.57***	-0.06	1.00	1.00	1.00	0.28	0.52***	0.01	1.00	1.00	1.00	0.67***	0.49***	-0.16	1.00	1.00	1.00		
Solubility in water (mg/L)	-0.54***	-0.89***	0.30*	-0.82**	1.00	1.00	-0.23	-0.66***	0.30	-0.69***	1.00	1.00	-0.56***	-0.61***	0.30*	-0.82***	1.00	1.00		
Specific gravity	-0.10	0.04	-0.24	-0.20	-0.09	1.00	-0.21	0.11	-0.39**	-0.19	-0.11	1.00	-0.02	0.34*	-0.20	-0.08	-0.19	1.00		
Apple, Dry pomace							Grape, Dry pomace							Tomato, Dry pomace						
	PF	Molecular weight	Vapor pressure (mPa)	logK _{ow}	Solubility in water (mg/L)	Specific gravity	PF	Molecular weight	Vapor pressure (mPa)	logK _{ow}	Solubility in water (mg/L)	Specific gravity	PF	Molecular weight	Vapor pressure (mPa)	logK _{ow}	Solubility in water (mg/L)	Specific gravity		
Molecular weight	1.00	1.00	1.00	1.00	1.00	1.00	1.00	1.00	1.00	1.00	1.00	1.00	1.00	1.00	1.00	1.00	1.00	1.00		
Vapor pressure (mPa)	-0.27	-0.39**	1.00	1.00	1.00	1.00	0.01	-0.53**	1.00	1.00	1.00	1.00	-0.28	-0.40**	1.00	1.00	1.00	1.00		
logK _{ow}	0.49***	0.57***	0.00	1.00	1.00	1.00	0.19	0.36	0.01	1.00	1.00	1.00	0.76***	0.51**	-0.14	1.00	1.00	1.00		
Solubility in water (mg/L)	-0.49***	-0.89***	0.25	-0.82**	1.00	1.00	0.09	-0.56**	0.38	-0.58**	1.00	1.00	-0.63***	-0.57***	0.26	-0.78***	1.00	1.00		
Specific gravity	-0.04	0.02	-0.30*	-0.10	-0.16	1.00	-0.34	0.20	-0.45*	-0.20	-0.29	1.00	-0.08	0.17	-0.15	-0.28	-0.07	1.00		

Spearman's rank correlation analysis was performed between median values of PF and physicochemical properties for each pesticide.

Correction for multiple comparisons was carried out using the FDR. * $p < 0.05$, ** $p < 0.01$, *** $p < 0.001$

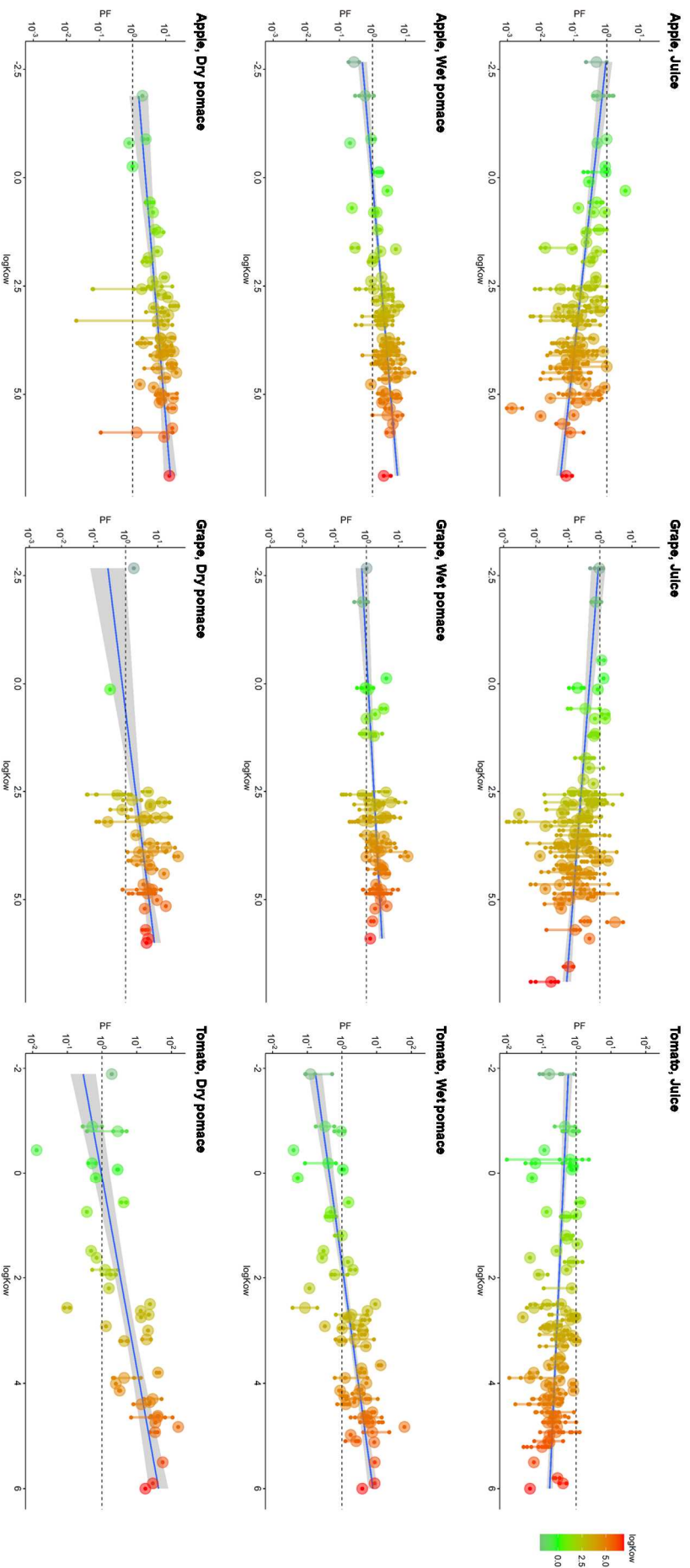


Figure 1. Scatter plot showing the relationships between PF values and logK_{ow} for pesticides in the juice, wet pomace, and dry pomace that were processed from apple, grape, and tomato.

Large filled circles represent median values of PF for each pesticide. Small closed circles represent maximum and minimum values of PF for each pesticide. The regression lines (blue) are shown along with 95% confidence interval (filled gray).

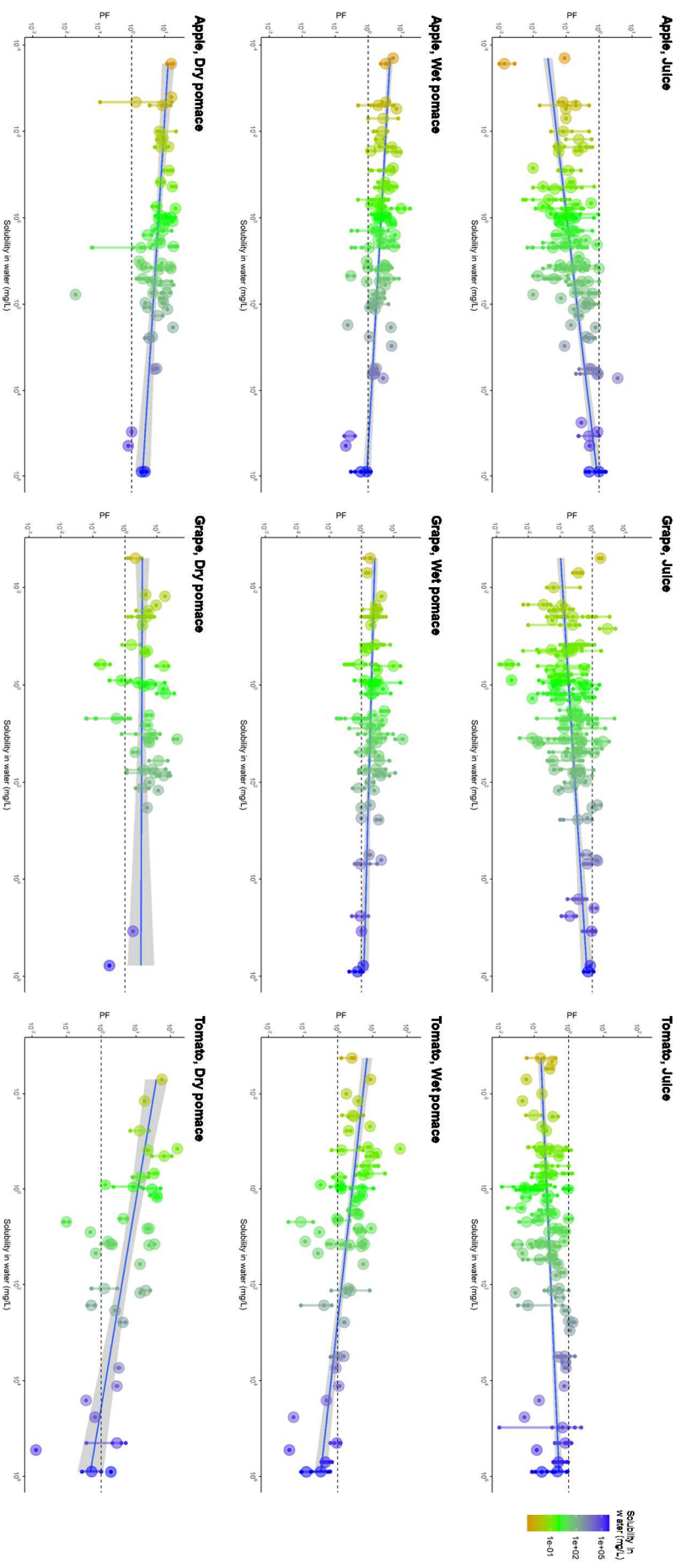


Figure 2. Scatter plot showing the relationships between PF values and solubility in water for pesticides in the juice, wet pomace, and dry pomace produced from apple, grape, and tomato.

Large filled circles represent median values of PF for each pesticide. Small closed circles represent maximum and minimum values of PF for each pesticide. The regression lines (blue) are shown along with 95% confidence interval (filled gray).

Table 3. The best equation obtained from stepwise multiple regression analysis

Processed food	Regression equation	Adjusted R²
Apple, Juice	$PF = 0.61194 - 0.10074 \log K_{ow}$	0.164
Apple, Wet pomace	$PF = 1.0920 + 0.54838 \log K_{ow}$	0.238
Apple, Dry pomace	$PF = 3.2805 + 1.4745 \log K_{ow} - 0.098661$ vapor pressure	0.265
Grape, Juice	$PF = 0.71185 - 0.079369 \log K_{ow}$	0.0472
Tomato, Juice	$PF = 6.1005e-01 - 7.4613e-02 \log K_{ow} - 4.0514e-07$ solubility in water	0.136
Tomato, Wet pomace	$PF = 14.526 + 1.4241 \log K_{ow} - 11.166$ specific gravity	0.227
Tomato, Dry pomace	$PF = 39.488 + 6.6330 \log K_{ow} - 30.552$ specific gravity	0.314

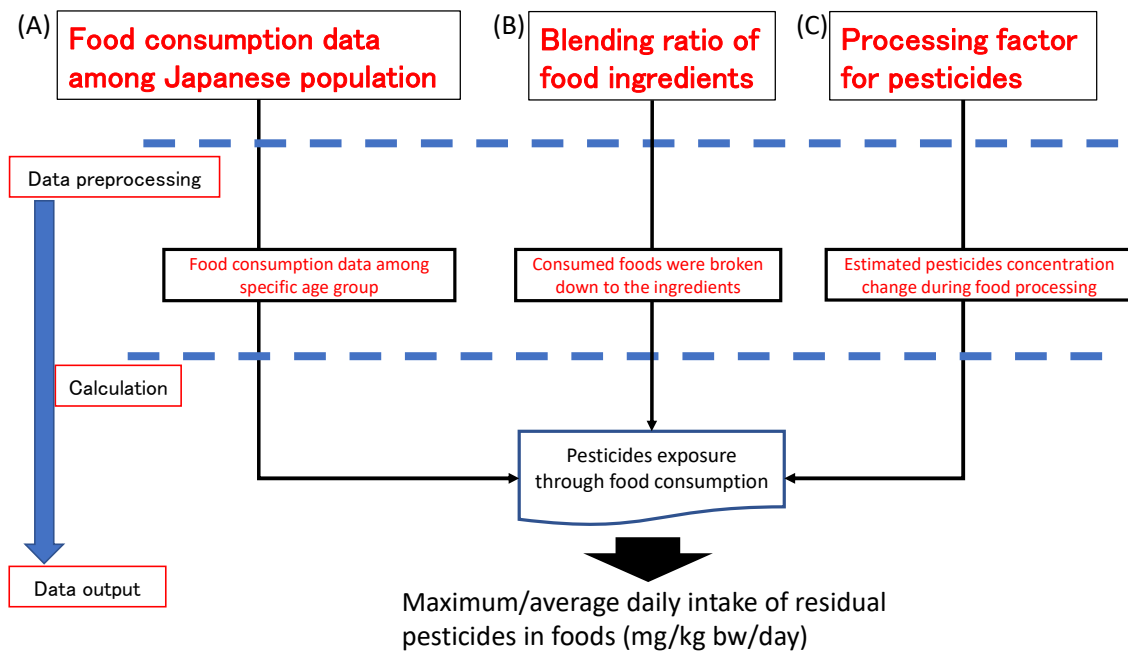


Figure 3. Scheme showing the calculation step for pesticides exposure estimate.

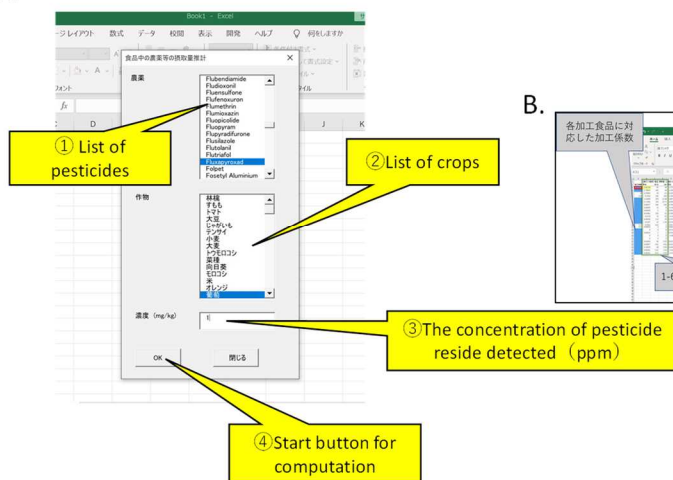
Data processing:

(A) Food consumption data from an age-group of interest among Japanese population were extracted. (B) The types and the amount of consumed foods at ingredient level were identified. The ingredients used were estimated using the blending ratio of food ingredients for each food consumed. (C) The amount of pesticides residues in foods after cooking and processing was estimated using a processing factor.

Data output:

Maximum/average daily intake of pesticide residues in foods (mg/kg bw/day) were calculated using the three database (A-C).

A.



B.

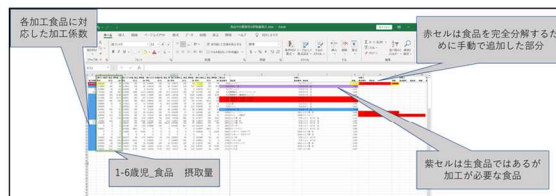


Figure 4. Input data for the pesticide consumption estimate using the developed program.

(A) The name of a pesticide of interest, the crop name from which the residual pesticide was detected and the detected pesticide's concentration were specified. Press OK button to start calculating the amount of the estimated pesticide's exposure. (B) A example showing the summary of data used to calculate the pesticide residue consumption estimate. Food consumption data among Japanese population of specific age group, blending ratio of food ingredients for foods, and processing factor for a specific pesticide used were summarized.

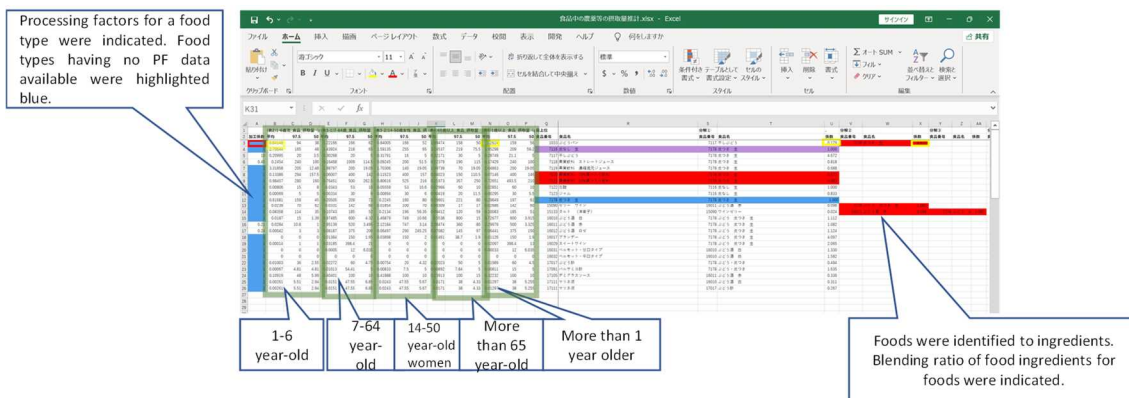


Figure 5. A summary of data used to calculate the pesticide consumption estimate when all foods containing grapes were consumed.

An example of the summary of data used to calculate the estimate. Food consumption data among Japanese population of specific age groups (1-6 years old children, 7-64 years old of general age group, 14-50 years old women who were in childbearing age, seniors at 65 years old or older, 1 year-old or older), blending ratio of food ingredients for foods, and processing factor for specific pesticides were summarized in a table. Processing factor was set “1” when no data were available from JMPR.

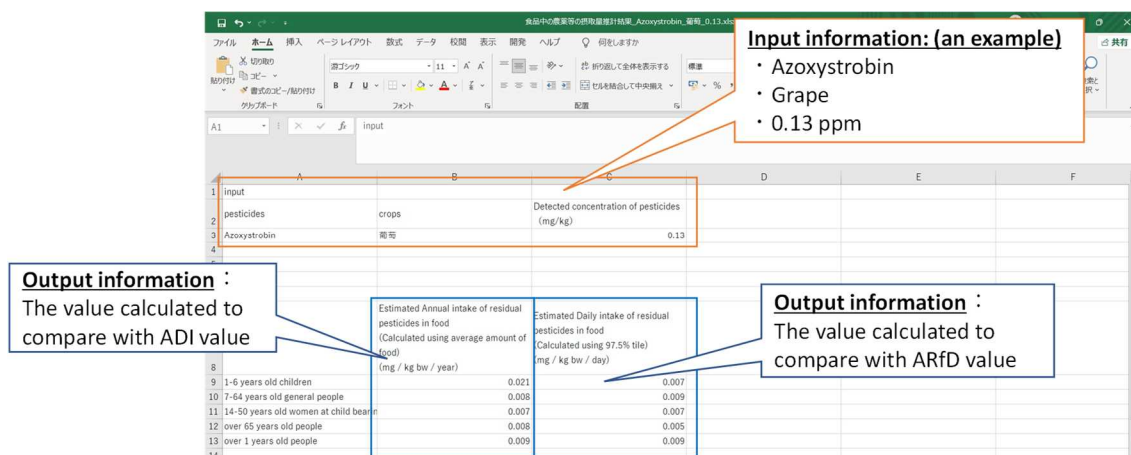
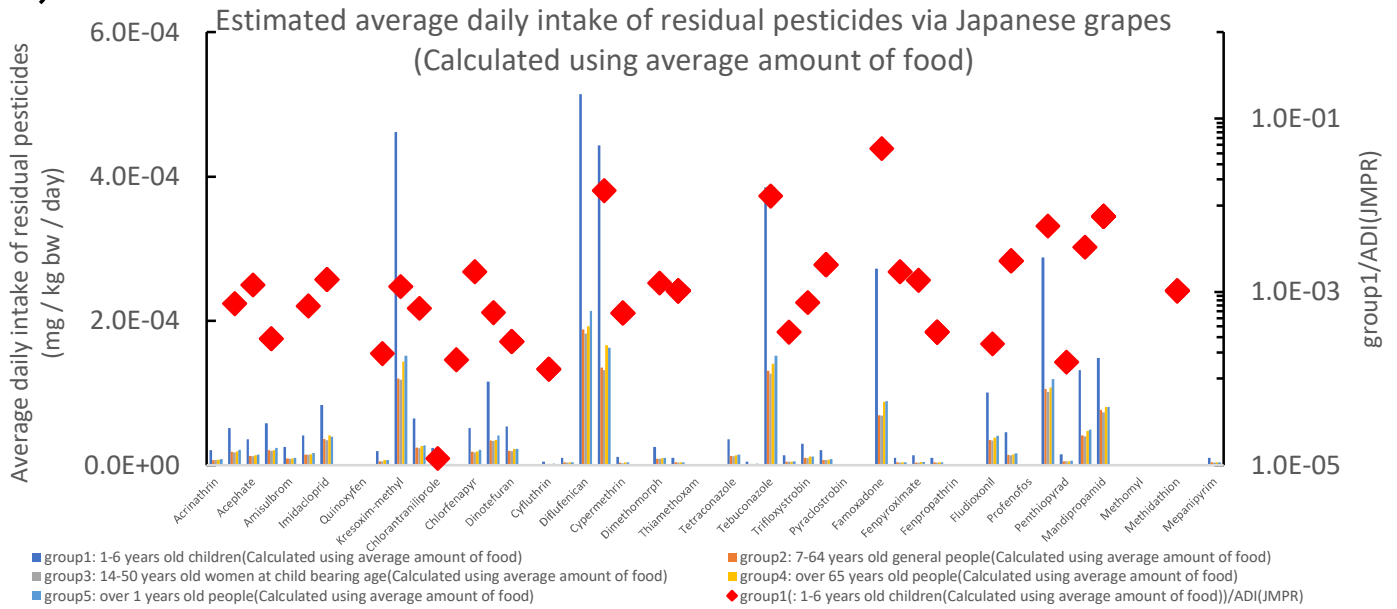


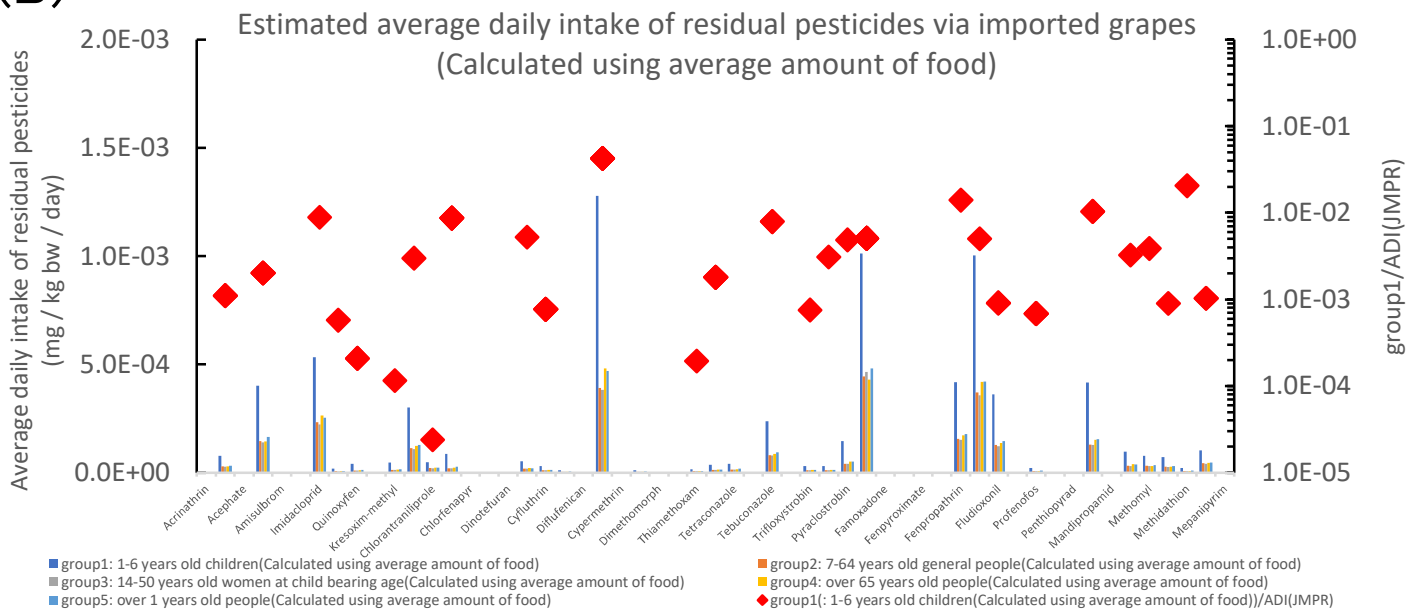
Figure 6. An example of a summary table for the output data from the developed program.

Input and output data for pesticide consumption estimate were summarized. The output values were compared with ADI and ARfD values set by JMPR.

(A)



(B)



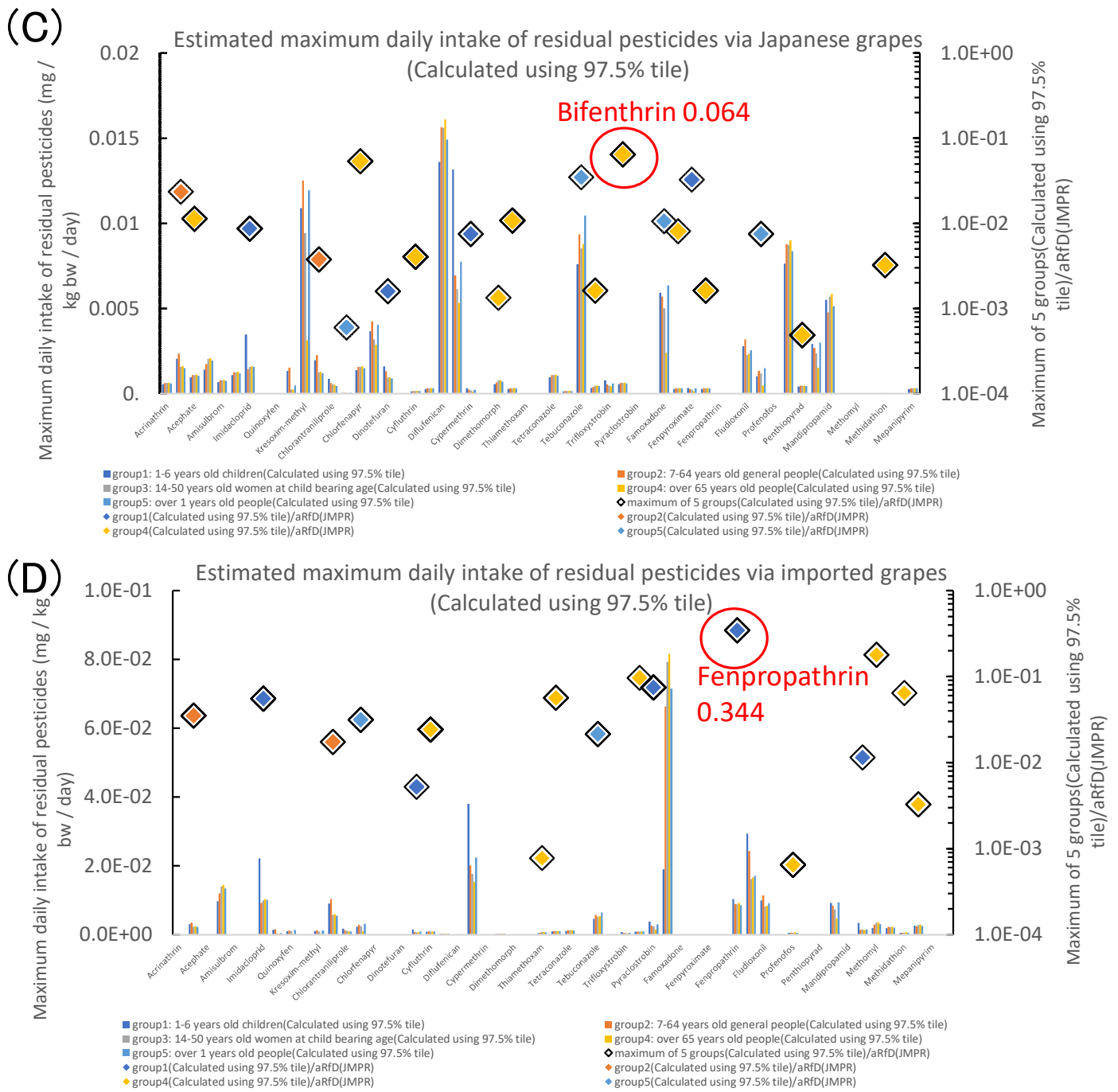


Figure 7. Comparison of pesticide’s consumption estimate with the regulation values.

Pesticides detected in grapes from either of Japan-grown or outside of Japan were compared by age groups among Japanese population. Each pesticides residue consumption estimate calculated for two cases when domestic grapes (A, C) and imported grapes (B, D) were consumed were compared with the ADI (A,B) and ARfD values (C,D) set by JMPPR.