

令和4年度厚生労働行政推進調査事業費補助金 食品の安全確保推進研究事業

輸出先国のリスク管理に対応した残留農薬データ等の補完に関する研究
研究分担報告書

輸出可能性が高い農産品における残留物濃度の加工による変化に関する研究

研究分担者 荒川 史博

日本ハム株式会社 中央研究所

研究要旨

農林水産物・食品の輸出促進をするにあたり、農薬の最大残留基準値（MRL）の設定は一国の課題ではなく、多くの国で受け入れられるよう適切な根拠をもとに設定される必要がある。農薬等を使用して栽培された作物由来の農産品を原料とする農産加工品を対象に、精密な暴露量の推定や MRL 設定の必要性を判断するためには、個々の農産品と農薬等との組み合わせごとに、残留物の特性に応じた加工による変化や加工後の濃度を明らかにする必要がある。そのために実施される研究は、加工試験と呼ばれるが、世界規模で輸出入される主要な農産加工品でしか実施されていない。

本研究課題では、我が国からの輸出可能性が高く特有の農産加工品の原料ともなる農産品を対象とした加工試験を実施する上で必要な条件検討を実施し、農薬の有効成分やそれらの代謝産物並びに分解物の加工による挙動に関するデータを収集し解析を行うために、研究課題1で作製した農薬を投与して栽培した結果得られる農薬残留物を含むインカード試料を原料として加工試験を行い、加工工程での残留物の挙動を明らかにすることを目的とした。

本年度は、トリシクラゾール、メプロニルを同一の区に散布した稲から玄米、精白米を経た炊飯試験を行い、これら農薬の加工係数及び物質収支（マスバランス）の算出を行った。また、チアクロプリド、ピフルブミドを別々の区に散布した荒茶から、飲料茶を淹れる際の農薬の加工係数及び物質収支の算出も行った。

研究協力者

渡邊 敬浩	国立医薬品食品衛生研究所
山田 友紀子	国立医薬品食品衛生研究所
中村 歩	一般財団法人 日本食品分析センター
渡邊 文子	一般財団法人 日本食品分析センター
古田 早紀	一般財団法人 日本食品分析センター

築野 卓夫

築野食品工業株式会社

山中 崇

築野食品工業株式会社

小石 翔太

築野食品工業株式会社

佐藤 安志

国立研究開発法人 農研機構 植物防疫研究部門

A. 研究目的

わが国は 1981 年から 30 年連続して貿易黒字が続く貿易立国であったが、2011 年の東日本大震災発生を機に貿易赤字を記録するようになった。財務省の令和 4 年度貿易統計（令和 5 年 4 月 27 日）によると、輸出額は 99 兆 2262 億円、輸入額は 120 兆 9770 億円となり、輸出から輸入を差し引いた貿易収支は 21 兆 7509 億と 2 年連続の赤字となっている。食料品の輸出額は 1.2 兆円、輸入額は 9.6 兆円で、純輸入額が 8.4 兆円にもなり、世界一の食料品の純輸入国となっている。このような状況を是正するために令和 2 年 4 月に施行された「農林水産物及び食品の輸出の促進に関する法律」では、輸出拡大のための課題の 1 つとして「輸出先国の食品安全等の規制への対応」が挙げられている。例えば、国内の農産物等の輸出先国において、該当する品目に農薬等の MRL が設定されていない場合や、設定されていたとしてもその値が我が国に比べ低い場合がこれにあたる。現状では、世界規模で輸出入される主要な農産加工品でしか、加工試験は実施されていないのが現状である。

そこで本分担研究では、我が国からの

輸出可能性は高いが OECD のガイドラインに加工係数の収載がない農産物の加工係数を算出することを目的とした。昨年度は我が国の主要農産物である米を原料とし、工業的に製造したこめ油と米の加工品として最も摂取量が多い炊飯米の加工係数とマスバランスの算出を行った。本年度は昨年度に引き続き、炊飯米を試料とした。より実用性の高いデータとするために化学的特性の異なる 2 種の農薬を散布してインカード試料を作製し、加工係数とマスバランスの算出を行った。さらに、日本国内の主要農産物で輸出の可能性の高い飲料茶についても、昨年度同様加工係数とマスバランスの算出を行った。

B. 研究方法

【米加工試験】

本分担研究では、精密な暴露量推定に資する科学的データを得るために、研究課題 1 で作製したインカード試料を用いて、炊飯米製造時の薬剤のマスバランス並びに加工係数を算出する。昨年度のインカード試料は、FAO/WHO 合同残留農薬専門家会議（以下、JMPR）に作物残留試

験データが提出されており、農産品における残留濃度が高いと評価されている薬剤の中で脂溶性の高いブプロフェジン、水溶性の高いスルホキサフロルの 2 剤を選択した。本年度も同様に脂溶性の高い薬剤としてメプロニルと水溶性の高い薬剤としてトリシクラゾールの 2 剤を選択した。メプロニルの logPow は 3.66 であり、昨年度選択したブプロフェジン (logPow 4.8) より脂溶性が低い。また、トリシクラゾールの logPow は 1.41 であり、昨年度選択したスルホキサフロル (logPow 0.8) より水溶性が低い剤である。昨年度選択した剤より、脂溶性、水溶性とも低い化合物を選択した事により、一次加工製品からの食事暴露量評価の基礎的なデータになる事が期待できる。

圃場から稲の収穫、脱穀、脱稈、精米までの工程は東京農業大学で実施した。上記工程でインカード試料として玄米、糠、精白米を得た。試料は東京農業大学から日本ハムに冷蔵で輸送され、一時保管した後、炊飯試験に供した。保管、輸送時の温度記録を表 1 に示した。本研究に使用した試料の保管時の冷凍庫の記録は図 1 に示した。

インカード試料である玄米の一部を用いて、精米度合い 9% で精米し 1.78 kg の米糠と 17.3 kg の白米を得た。玄米から米糠、精白米までの工程は 1 試行で実施した。得られた精白米の一部を用いて、炊飯試験を 2 試行で行った。

本研究では、米の加工工程の中で玄米、糠、精白米、炊飯米を試験対象とし、マスバランス及び加工係数の算出を行った。

炊飯試験

炊飯時の白米の研ぎ方は様々な方法があり、調査の結果一様に定義された方法はなかった。一昨年度の研究で、株式会社神明及び福井精米株式会社が推奨する 2 種の方法で白米を研ぎ、その方法によって加工係数に違いが生じるか検証した。その結果、白米の研ぎ方の違いが加工係数に与える影響はない事を確認した。従って、本年度は昨年度に引き続き、株式会社神明が推奨する方法で白米を研ぎ、家庭用の炊飯器を用いて炊飯試験を行った。加工試験のフローは図 2 に示した。

株式会社神明の研ぎ方を以下に記す。炊飯釜に約 450 g (3 合) の米を入れ、水 1 L を加え 2~3 回手早くかき混ぜ、水を捨てた。この操作をさらに 2 回繰返した。最後に水を約 560 mL 加え、30 分間浸漬し、家庭用炊飯器の標準モードで炊飯を行った。炊飯米は、農薬試験の抽出に供する前に、1.15 倍の水を加え米粒が確認できなくなる程度まで粉碎操作を行った。

インカード試料の分析

農薬の分析は一般財団法人日本食品分析センターへ委託した。本研究で実施する試験方法の性能は、インカード試料栽培時に農薬散布区と非散布区の境界で栽培、収穫した玄米を試料 (以下、額縁試料)

として用いた。

分析対象化合物

米加工試験における分析対象化合物は、トリシクラゾール、メプロニルとした。

分析対象品目

玄米、糠、精白米及び炊飯米の 4 品目を分析対象品目とした (表 1)。

【茶加工試験】

飲料茶の加工

本分担研究では、精密な暴露量推定に資する科学的データを得るために、米加工試験と同様に、研究課題 1 で作製したインカード試料を用いて、飲料茶を淹れる際の薬剤のマスバランス並びに加工係数を算出する。昨年度、茶に投与した農薬は、FAO/WHO 合同残留農薬専門家会議 (以下、JMPR) に作物残留試験データが提出されており、農産品における残留濃度が高いと評価されている薬剤の中で脂溶性の高いトルフェンピラド、水溶性の高いジノテフランの 2 剤を選択した。本年度も同様に脂溶性の高い薬剤としてピフルブミドと水溶性の高い薬剤としてチアクロプリドの 2 剤を選択した。ピフルブミドの logPow は 5.34 であり、昨年度選択したトルフェンピラド (logPow 5.61) より脂溶性が低い。また、チアクロプリドの logPow は 1.26 であり、昨年度選択したジノテフラン (logPow -0.549) より水溶性が低い剤である。昨年度選択した剤より、脂溶性、水溶性とも低い化合物を選択した

事により、米加工試験と同様に一次加工産品からの食事暴露量評価の基礎的なデータになる事が期待できる。

茶を淹れる工程は、試料の輸送から試験開始までの時間等を考慮し、研究協力者である日本食品分析センターへ委託した。

飲料茶の調製は 2 試行で行った。調製方法を以下に示す。インカード試料である荒茶を急須に 5 g 採取し、あらかじめ 90 °C に加温したイオン交換水 250 mL を茶葉が舞わないように静かに注いだ。お湯を注いだ急須を時計回りに 2 回転、反時計回りに 2 回転した後に、2 分間静置した。この浸漬液を全量回収し、飲料茶 1 とした。次いで、90 °C に加温したイオン交換水 250 mL を飲料茶 1 を採取した後の急須に注いだ。お湯を注いだ急須を時計回りに 2 回転、反時計回りに 2 回転した後に、2 分間静置し、浸漬液を全量回収したものを飲料茶 2 とした。飲料茶 2 を採取した後の急須に残った茶殻を全量回収したものを、茶殻試料と定義した。加工試験のフローは図 3 に示した。

分析対象化合物

茶加工試験における分析対象化合物はピフルブミド、ピフルブミド代謝物 B、チアクロプリドとした。

分析対象品目

荒茶、飲料茶 1、飲料茶 2 及び茶殻の 4 品目を分析対象とした (表 1)。

【農薬の測定】

試験方法の性能評価

試験法の性能要求事項は、LOQ が 0.01 mg/kg 以下であること、添加回収率が 70 ～ 120 %の範囲内であること及び併行精度が 20 %未満であることを確認し、試験法としての妥当性を評価する。飲料茶の試験法については、荒茶の定量下限の 1/100 の濃度を担保することを確認し、妥当性を評価する。

標準品

分析には以下の標準品を使用した。

チアクロプリド標準品：純度 98.1 %（富士フィルム和光純薬製）

トリシクラゾール標準品：純度 98.85 %（Dr.Ehrenstorfer 製）

ピフルブミド標準品：純度 98.6 %（富士フィルム和光純薬製）

ピフルブミド代謝物 B 標準品：純度 99.4 %（富士フィルム和光純薬製）

メプロニル標準品：純度 99 %（富士フィルム和光純薬製）

試薬

アセトン、アセトニトリル、ヘキサンは関東化学株式会社製の残留農薬試験用、メタノールは関東化学株式会社製の高速液体クロマトグラフ用を使用した。塩化ナトリウム、酢酸アンモニウムは関東化学株式会社製の特級を使用した。くえん酸三ナトリウム二水和物、無水硫酸マグネシウムは富士フィルム和光純薬製の特級、くえん酸水素二ナトリウム 1.5 水和物は富士フィルム和光純薬製の一級を用いた。InertSep C18 (1 g)、InertSep Slim-J C18-

C (500 mg) はジーエルサイエンス株式会社製を使用した。

試液の調製方法

ヘキサン飽和アセトニトリルは、アセトニトリル約 500 mL とヘキサン約 100 mL を混合し、5 分間振とう後静置してアセトニトリル層を分取、又は同割合で調製した。

水及びメタノールの混液 (9:1) は、メタノール 900 mL と水 100 mL を混合、又は同割合で混合した。1 mol/L 酢酸アンモニウム溶液は、酢酸アンモニウム 15.43 g を水に溶解し 200 mL とした。2 mmol/L 酢酸アンモニウム溶液は、1 mol/L 酢酸アンモニウム溶液 2 mL に水を加えて 1000 mL とし、調製した。

標準溶液の調製方法

標準原液調製法

チアクロプリド標準品 25 mg を精密に量り、50 mL 容の全量フラスコに入れた。アセトンを加え、超音波処理をしながら溶解した後に定容し、これをチアクロプリド標準原液 (500 mg/L) とした。トリシクラゾール標準品 25 mg を精密に量り、以下同様に調製し、トリシクラゾール標準原液 (500 mg/L) とした。メプロニル標準品 25 mg を精密に量り、以下同様に調製し、メプロニル標準原液 (500 mg/L) とした。ピフルブミド標準品 10 mg を精密に量り、以下同様に調製し、ピフルブミド標準原液 (200 mg/L) とした。ピフルブミド代謝物 B 標準品 10 mg を精密に量り、以下同様に調製し、ピフルブミド代謝物 B 標準原液 (200 mg/L) とした。

測定用標準溶液調製法

米加工試験の標準溶液として、500 mg/L のトリシクラゾール標準原液 1 mL、500 mg/L のメプロニル標準原液 1 mL を 25 mL の全量フラスコに測り取り、アセトニトリルを用いて定容したものを 20 mg/L トリシクラゾール／メプロニル混合標準溶液として調製し、適宜希釈し定量用の標準溶液とした。標準溶液の濃度は表 2 に示した。

茶加工試験の標準溶液として、500 mg/L のチアクロプリド標準原液 1 mL、200 mg/L のピフルブミド及びピフルブミド代謝物 B 標準原液 2.5 mL を 25 mL の全量フラスコに測り取り、アセトニトリルを用いて定容したものを 20 mg/L チアクロプリド／ピフルブミド／ピフルブミド代謝物 B 混合標準溶液として調製し、適宜希釈し定量用の標準溶液とした。標準溶液の濃度は表 3 に示した。

試験溶液の調製

米加工品の試験溶液は、試料に応じて 4 種の調製方法を行った。一例として玄米の調製方法を以下に示す。玄米 10.0 g を採取し、水 20 mL を加え 30 分間放置した。その後、アセトン 100 mL を加え、ホモジナイズ後吸引ろ過をした。ろ紙上の残留物にアセトン 50 mL を加え、再度ホモジナイズし、吸引ろ過をした。得られたろ液を合一し、アセトンで正確に 200 mL に定容した。これを 1 mL 分取しメタノールで 20 mL に定容したものを、LC-MS/MS による測定に供した。その他米加工品の試験溶液の調製方法は図 4-1, 4-2, 4-3, 4-4 に示した。

茶加工試験の試験溶液は、試料及び対

象化合物に応じて 4 種の調製方法を行った。一例として荒茶のチアクロプリド試験の調製方法を以下に示す。試料 5.0 g を採取し、水 20 mL を加え 30 分間放置した。その後、アセトニトリル 100 mL を加え、ホモジナイズ後吸引ろ過をした。ろ紙上の残留物にアセトニトリル 50 mL を加え、再度ホモジナイズし、吸引ろ過した。得られたろ液を合一し、アセトニトリルを加えて正確に 200 mL に定容した。この抽出液を 2 mL 分取しメタノールで 25 mL に定容後、さらに、定容液を 2 mL 分取しメタノールで 10 mL に定容したものを試験溶液とした。

これを、LC-MS/MS に供する試験溶液とした。茶加工品の試験溶液の調整方法は図 5-1, 5-2, 5-3, 5-4 に示した。

LC-MS/MS による測定条件

機種：LC 部；Nexera X2 (LC-30AD)

MS 部；LCMS-8050

解析ソフト：LabSolutions LCMS

(以上、島津製作所製)

カラム：InertSustain C18

内径 2.1 mm、長さ 150 mm、粒径 5 μm

(ジーエルサイエンス株式会社製)

オープン温度：40 °C

移動相：

A 液；2 mmol/L 酢酸アンモニウム溶液

B 液；メタノール

A 液：B 液 (40：60)

流量：0.2 mL/min

注 入 量：4 μL

コリジョンガス：アルゴン

モニターイオン等：イオン化法、モニターイオン等の詳細は表 4-1, 4-2, 4-3, 4-4 に示

す。

C. D. 結果及び考察

保管設備及び試料輸送時の温度モニタリング

研究課題 1 で作製したインカード試料及び加工を行った試料は試験開始まで日本ハム(株)中央研究所にて保管した。保管を開始した 2022 年 9 月 1 日より、6 時間毎に冷凍保管庫の温度モニタリングを行った。温度記録計は株式会社シロ産業の MI1TP-251-FRM を用いた。試料保管時の温度記録は図 1 に示す。保存期間中の最も高い温度は-18.11 °C、最も低い温度は-20.54 °Cであり、試料保管時の温度は問題ない事を確認した。試料の輸送は宅急便(ヤマト運輸株式会社)の冷蔵便もしくは冷凍便を利用した。試料輸送時の箱に温度記録計を同梱し、輸送温度のモニタリングを行ったところ、輸送時においても冷凍状態が維持されていることを確認した。以上より、いずれの試料とも輸送、保管時に試料が毀損するような条件にはなっておらず、適切な試料管理が実施できていることを確認した。

炊飯試験

農林水産省食料・農業・農村政策審議会食糧部会において纏められた資料「米をめぐる関係資料」(令和 2 年 7 月 30 日)において、国内の米の消費は 67.3 %が家庭内消費であると調査されていることか

ら、昨年度と同様に炊飯米の加工試験は家庭用炊飯器を用いて行った。米の研ぎ方は、株式会社神明が推奨する方法で 2 試行の炊飯試験を実施した。

収穫された玄米 45.6 kg の一部 20 kg から精米を行い米糠 1.78 kg と白米 17.3 kg を得た。白米は炊飯試験に供するまで冷凍庫で保管をした。

炊飯試験の 1 試行目は、0.45 kg の精白米から 1.03 kg の炊飯米が得られ、2 試行目は、0.45 kg の精白米から 1.04 kg の炊飯米を得た。コントロール区の米の研ぎ方も試験区同様、株式会社神明が推奨する方法で実施し、0.45 kg の精白米から 1.00 kg の炊飯米を得た。試験区による収量の違い、試行回数による収量の違いは無かった。

飲料茶の加工試験

飲料茶の調製は 2 試行で行った。研究方法 飲料茶の加工に従って、荒茶から飲料茶を淹れた結果、チアクロプリド試験区では 1 試行目の飲料茶 1 は 223.0 g、飲料茶 2 は 237.5 g、茶殻は 24.7 g であり、2 試行目の飲料茶 1 は 226.7 g、飲料茶 2 は 241.2 g、茶殻は 24.3 g であった。ピフルブミド試験区では 1 試行目の飲料茶 1 は 220.7 g、飲料茶 2 は 236.0 g、茶殻は 24.4 g であり、2 試行目の飲料茶 1 は 226.5 g、飲料茶 2 は 242.7 g、茶殻は 24.1 g であった。試行回数による収量の違いは確認されなかった(表 12-1, 12-2, 12-3)。

試験方法の性能評価

表 2、3 で示した混合標準溶液と試験溶液の調製方法の項で示した抽出方法から、本研究で実施するトリシクラゾール及びメプロニルの定量下限は、玄米で 0.08 mg/kg、糠、精白米及び炊飯米で 0.01 mg/kg であった。チアクロプリドの定量下限は、荒茶で 0.5 mg/kg、飲料茶で 0.0001 mg/kg、茶殻で 0.01 mg/kg であった。ピフルブミド及びピフルブミド代謝物 B の定量下限は、荒茶で 0.4 mg/kg、飲料茶で 0.0001 mg/kg、茶殻で 0.01 mg/kg であった。

米加工試験の添加回収試験は玄米で 6 試行、糠、白米、炊飯米で 3 試行実施した。添加濃度を表 5 に、添加回収試験の結果を表 6-1、6-2 に示した。併行精度はトリシクラゾールでは糠で最も大きく 4.5% であった。メプロニルでは玄米で最も大きく 2.5% であった。添加回収率は、トリシクラゾールでは 92 ~ 103%、メプロニルでは 80 ~ 98% と薬剤、試料いずれの組合せにおいても性能評価要件を満たしていた。茶加工試験は荒茶で 6 試行、飲料茶 1 で 3 試行、飲料茶 2 及び茶殻で 1 試行実施した。添加濃度を表 5 に添加回収試験の結果を表 7-1、7-2、7-3 に示した。併行精度はチアクロプリドでは荒茶で最も大きく 2.5% であった。ピフルブミドでは飲料茶 1 で最も大きく 2.1%、ピフルブミド代謝物 B では飲料茶 1 で最も大きく 4.6% であった。添加回収率は、チアクロプリドでは 88 ~ 99%、ピフルブミドで

は 95 ~ 101%、ピフルブミド代謝物 B では 84 ~ 105% と薬剤、試料いずれの組合せにおいても性能評価要件を満たしていた。

以上より、開発された方法は本研究に用いる分析法として妥当であると評価した。

炊飯米の加工係数とマスバランス

日本国の主要農産物である米を試料として、一昨年、昨年度同様加工試験を実施した。散布する剤は、FAO/WHO 合同残留農薬専門家会議（以下、JMPR）に作物残留試験データが提出されており、農産品における残留濃度が高いと評価されている薬剤の中で水溶性の高いトリシクラゾール、脂溶性の高いメプロニルの 2 種の薬剤を選択し、インカード試料の作製を行った。インカード試料からの加工産品は炊飯米とした。玄米から糠及び精白米までの工程は 1 試行で行い、精白米から炊飯米までの工程については 2 試行で行った。各試料の測定結果を表 8-1、8-2 に示した。散布した薬剤の加工工程での挙動を確認するため各工程で得られた試料の収量とその試料の分析値を乗じて得た薬剤量をマスバランスとして算出した。さらに、加工品による精密な暴露量の推定を行うために玄米を RAC (raw agricultural commodities) として、炊飯試験時の加工係数を算出した。マスバランス、加工係数の算出に当たっては 2 試行で実施した炊飯米の測定値は平均値を用いた

(表 9-1, 2、表 10-1, 2 の赤※)。炊飯試験には得られた玄米の一部を用いた。炊飯米のマスバランスは得られた精白米を全て炊飯したと仮定し、計算した。マスバランスの算出結果は表 9-1、9-2 に、加工係数は表 10-1、10-2 に示した。

精米工程を経た糠と白米の結果から水溶性のトリシクラゾール (logPow 1.41) は約 49%が精白米に移行し、糠には約 40%移行することが示された。また、脂溶性のメプロニル (logPow 3.66) は約 25%が精白米に移行し、糠には約 68%が移行することが示された。3 ヶ年の研究成果から、玄米から糠へのマスバランスは令和 2 年度の本研究の報告書でも触れたが、糠中のエトフェンプロックスがこめ油中のマスバランスから推定される量よりも低く見積もられている点を除き、ジノテフラン (logPow -0.549)、スルホキサフロル (logPow 0.8)、トリシクラゾール (logPow 1.41)、メプロニル (logPow 3.66)、ブプロフェジン (logPow 4.8)、エトフェンプロックス (logPow 7.05) とインカード試料作製に散布した農薬の logPow の増加とともにマスバランスは増加する傾向が確認された。さらに、玄米から精白米へのマスバランスは logPow の増加とともに減少する挙動が示され、実圃場での稲の栽培、収穫、加工を経ても剤の特性に応じた消長を示すことが確認できた

炊飯の工程でトリシクラゾールのマスバランスは 0.49 から 0.43 と 87.9%に、メ

プロニルのマスバランスは 0.25 から 0.12 と 48.0%に減少していた。JMPR の報告書には使用した 2 剤の加水分解安定性について、トリシクラゾールは 100 °C、pH 6 で 4 日間安定、メプロニルは 25 °C、pH 7 で 1 年間安定と記載されている。100 °C で 4 日間安定とされているトリシクラゾールの方が高温、高圧で炊飯する炊飯試験においてメプロニルより安定であったことは JMPR の報告書の記載内容とも相関がとれていると考察された。

米加工試験の加工係数は炊飯米でトリシクラゾールが 0.22、メプロニルが 0.060 であった。本研究において炊飯米のスルホキサフロル及びブプロフェジンの加工係数を示せたことは、加工品を通じた暴露量の推定を行う上での基礎的なデータになるものと考えられる。

茶加工試験の加工係数とマスバランス

輸出可能性が高く日本国内でも消費量の多い飲料茶について、マスバランス及び加工係数の算出を行った。インカード試料を作製するに際し投与する剤として水溶性の高いチアクロプリド、脂溶性の高いピフルブミドの 2 剤を選択した。加工試験は荒茶を原料として一煎目の茶 (飲料茶 1)、二煎目の茶 (飲料茶 2) 及び茶殻とした。荒茶から飲料茶 2 までの工程を 2 試行で行い、それぞれの試料を分析した。茶殻のみ試行 1 の試料を分析した。各試料の測定結果を表 11-1、11-2、11-3 に示した。試料の収量とその試料の分析

値を乗じて得た薬剂量をマスバランスとして算出した（表 12-1、12-2、12-3）。さらに、飲料茶 1、飲料茶 2 の加工係数を算出した（表 13-1、13-2、13-3）。

水溶性のチアクロプリド (logPow 1.26) は、約 28% が飲料茶 1 に約 23% が飲料茶 2 に移行した。茶殻には約 51% が移行した。脂溶性のピフルブミド (logPow 5.34) は約 0.4% が飲料茶 1 に、約 0.3% が飲料茶 2 に移行した。茶殻には約 78% が移行した。ピフルブミド代謝物 B (logPow 5.02) は約 0.6% が飲料茶 1 に、約 0.7% が飲料茶 2 に移行した。茶殻には約 79% が移行した。チアクロプリドのマスバランスの合計は 1.01、ピフルブミドのマスバランスの合計は 0.79、ピフルブミド代謝物 B のマスバランスの合計は 0.80 と計算され、いずれの剤とも加工による分解を受けなかった。2 試行実施した茶加工試験の加工係数はチアクロプリドが飲料茶 1 で 0.0062, 0.0058、飲料茶 2 で 0.0048, 0.0047 であり、茶殻で 0.11 であった。ピフルブミドの加工係数は飲料茶 1 で 0.000079, 0.000076、飲料茶 2 で 0.000054, 0.000057 であり、茶殻で 0.16 であった。ピフルブミド代謝物 B の加工係数は飲料茶 1 で 0.00014, 0.00015、飲料茶 2 で 0.00012, 0.00014 であり、茶殻で 0.16 であった。本試験では、茶を淹れて一般的に飲まれる状態のものを飲料茶として定義しているため、加工係数としては小さい数字になっている。また、一煎目と二煎目で

加工係数に違いがない事が確認できた。

3 年間を通じて logPow が異なる剤を散布したインカード試料を用いて米油および炊飯米の加工試験を行った。炊飯米においては 1 種の加工試験について 6 種の薬剤の消長を確認できたことから、本研究の最終的な目的である国産農産品の輸出促進に繋がるデータを取得できたものとする。今後も引き続き輸出可能性の高い農産加工品と農薬の組合せを模索し検討を重ね、精緻な研究を遂行していく必要がある。

E. 研究発表

1. 論文発表

なし

2. 学会発表

なし

表 1 試験試料一覧

試料名	加工/調製		加工機関から保管機関への輸送			保管				保管機関から試験機関への輸送			試験実施機関
	実施機関	期間	期間	最低温度	最高温度	機関	期間	最低温度	最高温度	期間	最高温度	最低温度	
玄米	東京農業大学	2022/8/24-8/29	2022/8/31-9/1	-6.2	-14.3	日本ハム株式会社	2022/9/1-11/29	-20.54	-17.65	2022/11/29-11/30	温度記録なし (冷凍便)	温度記録なし (冷凍便)	日本食品分析センター
糠	東京農業大学	2022/8/30	2022/8/31-9/1	-6.2	-14.3	日本ハム株式会社	2021/10/25-11/16	-20.54	-17.65	2022/11/29-11/30	温度記録なし (冷凍便)	温度記録なし (冷凍便)	日本食品分析センター
精白米	東京農業大学	2022/8/30	2022/8/31-9/1	-6.2	-14.3	日本ハム株式会社	2021/10/25-11/15	-20.54	-17.65	2022/11/29-11/30	温度記録なし (冷凍便)	温度記録なし (冷凍便)	日本食品分析センター
炊飯米	日本ハム株式会社	2022/11/28	輸送なし	-	-	日本ハム株式会社	2022/11/28-11/29	-20.36	-18.23	2022/11/29-11/30	温度記録なし (冷凍便)	温度記録なし (冷凍便)	日本食品分析センター
荒茶	食品総合研究所	4/29完了	2022/5/10-5/11	-15.4	-4.2	日本ハム株式会社	2022/5/11-8/22	-20.47	-18.19	2022/8/22-8/23	温度記録なし (冷凍便)	温度記録なし (冷凍便)	日本食品分析センター
飲料茶	日本食品分析センター	5/11-	輸送なし	-	-	-	-	-	-	-	-	-	日本食品分析センター
茶殻	日本食品分析センター	5/11-	輸送なし	-	-	-	-	-	-	-	-	-	日本食品分析センター

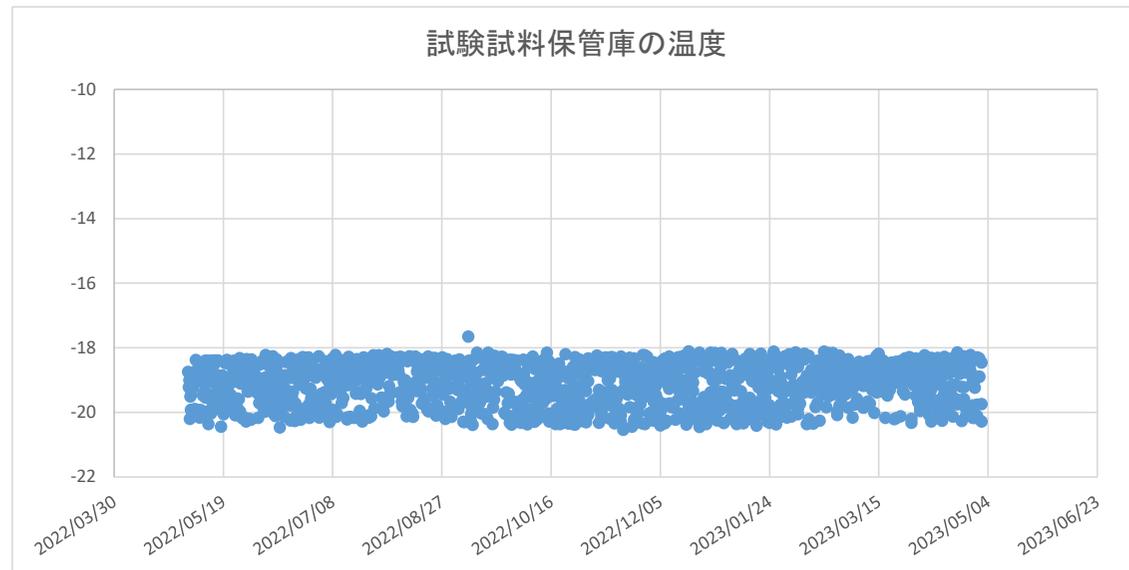


図 1 試験試料保管庫の温度

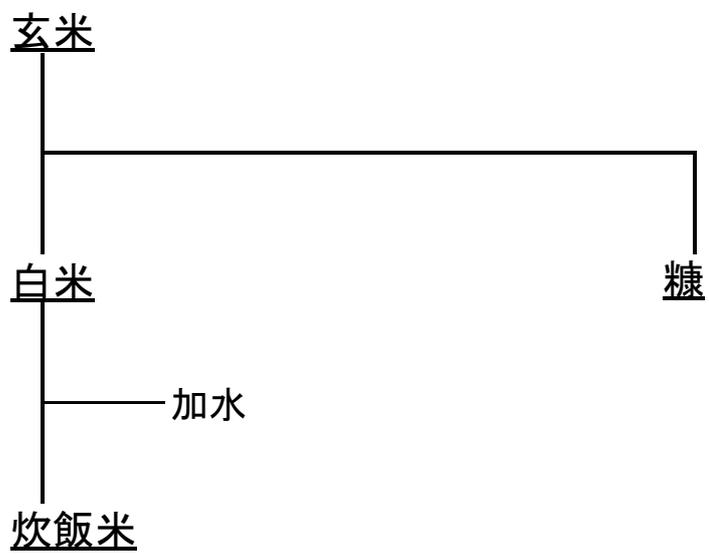


図2 米加工試験のフロー

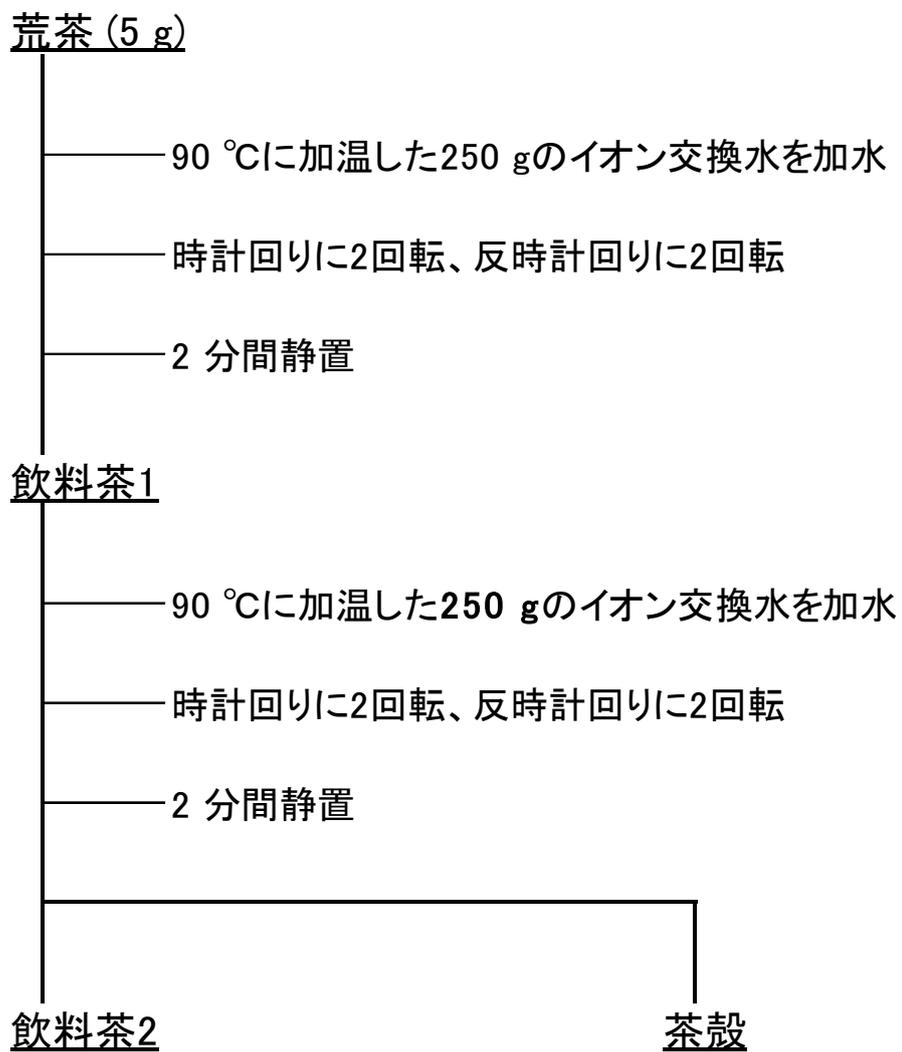


図3 茶加工試験のフロー

表2 トリシクラゾール、メプロニル測定用混合標準溶液

名称	調製濃度 (mg/L)	使用溶液	使用量 (mL)	定容量 (mL)
標準溶液 A	1	20 mg/L	1	20
標準溶液 B	0.04	標準溶液 A	1	25
標準溶液 C	0.01	標準溶液 B	5	20
標準溶液 D	0.008	標準溶液 B	4	20
標準溶液 E	0.006	標準溶液 B	3	20
標準溶液 F	0.004	標準溶液 B	2	20
標準溶液 G	0.002	標準溶液 B	1	20
標準溶液 H	0.001	標準溶液 C	2	20
標準溶液 I	0.0008	標準溶液 D	2	20
標準溶液 J	0.0006	標準溶液 E	2	20
標準溶液 K	0.0004	標準溶液 F	2	20
標準溶液 L	0.0002	標準溶液 G	2	20
標準溶液 M	0.0001	標準溶液 G	1	20
標準溶液 N	0.00004	標準溶液 K	1	10

[調製溶媒...メタノール]

表3 チアクロプリド、ピフルブミド及びピフルブミド代謝物 B 測定用混合標準溶液

名称	調製濃度 (mg/L)	使用溶液	使用量 (mL)	定容量 (mL)
標準溶液 A	1	20 mg/L	1	20
標準溶液 B	0.04	標準溶液 A	1	25
標準溶液 C	0.01	標準溶液 B	5	20
標準溶液 D	0.008	標準溶液 B	4	20
標準溶液 E	0.006	標準溶液 B	3	20
標準溶液 F	0.004	標準溶液 B	2	20
標準溶液 G	0.002	標準溶液 B	1	20
標準溶液 H	0.001	標準溶液 C	2	20
標準溶液 I	0.0008	標準溶液 D	2	20
標準溶液 J	0.0006	標準溶液 E	2	20
標準溶液 K	0.0004	標準溶液 F	2	20
標準溶液 L	0.0002	標準溶液 G	2	20
標準溶液 M	0.0001	標準溶液 G	1	20
標準溶液 N	0.00004	標準溶液 K	1	10

[調製溶媒...メタノール]

試料10.0 g採取

水20 mLを加え30分間放置

アセトン100 mLを加えホモジナイズ後、吸引ろ過

ろ紙上の残留物にアセトン50 mLを加えホモジナイズ後、吸引ろ過

得られたろ液を合わせ、アセトンで200 mLに定容

抽出液1 mL

メタノールで20 mL定容

LC-MS/MS注入

図 4-1 玄米の試験溶液の調整法

試料2.0 g採取

水20 mLを加え30分間放置

アセトン100 mLを加えホモジナイズ後、吸引ろ過

ろ紙上の残留物にアセトン50 mLを加えホモジナイズ後、吸引ろ過

得られたろ液を合わせ、アセトンで200 mLに定容

InertSep C18 (1 g)

(カラムを予め、メタノール5 mL、水5 mLで洗浄)

20 mL (試料0.2 g相当) 分取、約2 mLまで減圧濃縮

水10 mLを加え負荷、洗浄

メタノール10 mLで溶出

溶出液

メタノールで10 mL定容

LC-MS/MS注入

図 4-2 糠の試験溶液の調整法

試料10.0 g採取

水20 mLを加え30分間放置

アセトン100 mLを加えホモジナイズ後、吸引ろ過

ろ紙上の残留物にアセトン50 mLを加えホモジナイズ後、吸引ろ過

得られたろ液を合わせアセトンで200 mLに定容

1 mL (0.05 g相当) 分取、減圧濃縮、窒素乾固

残留物

メタノールで2.5 mL定容

LC-MS/MS注入

図 4-3 白米の試験溶液の調整法

試料21.6 g (10 g相当) 採取

アセトン100 mLを加えホモジナイズ後、吸引ろ過

ろ紙上の残留物にアセトン50 mLを加えホモジナイズ後、吸引ろ過

得られたろ液を合わせアセトンで200 mLに定容

1 mL (0.05 g相当) 分取、減圧濃縮、窒素乾固

残留物

メタノールで2.5 mL定容

LC-MS/MS注入

図 4-4 炊飯米の試験溶液の調整法

試料5.0 g採取

水20 mLを加え30分間放置

アセトニトリル100 mLを加えホモジナイズ後、吸引ろ過

ろ紙上の残留物にアセトニトリル50 mLを加えホモジナイズ後、吸引ろ過

得られたろ液を合わせ、アセトニトリルで200 mLに定容

抽出液2 mL

メタノールで25 mL定容

定容液2 mL

メタノールで10 mL定容

LC-MS/MS注入

図 5-1 荒茶のチアクロプリドに対する試験溶液の調製法

試料5.0 g採取

水20 mLを加え30分間放置

アセトン100 mLを加えホモジナイズ後、吸引ろ過

ろ紙上の残留物にアセトン50 mLを加えホモジナイズ後、吸引ろ過

得られたろ液を合わせ、アセトンで200 mLに定容

抽出液4 mL

メタノールで25 mL定容

定容液2.5 mL

メタノールで10 mL定容

LC-MS/MS注入

図 5-2 荒茶のピフルブミド及びピフルブミド代謝物 B の試験溶液の調製法

試料10.0 g採取
|
InertSep Slim-J C18-C (500 mg)
| (カラムを予め、メタノール5 mL及び水5 mLで洗浄)
| 全量負荷、洗浄
| メタノール10 mLで溶出
| 減圧濃縮、窒素乾固
| 残留物
| | メタノールで2.5 mL定容
| LC-MS/MS注入

図 5-3 飲料茶の試験溶液の調製法

試料5.0 g採取
| 水10 g及びアセトニトリル10 mLを加え、振とう機を用いて1分間振とう
| 塩化ナトリウム1 g、くえん酸三ナトリウム二水和物1 g及びくえん酸水素二
| ナトリウム1.5水和物0.5 g、無水硫酸マグネシウム4 gを加え、振とう機を用
| いて1分間振とう
| 多本架冷却遠心機3000 rpmで5分間遠心分離
| アセトニトリル層2 mL分取、濃縮
| InertSep Slim-J C18-C (500 mg)
| (カラムを予め、メタノール5 mL及び水5 mLで洗浄)
| 濃縮液をメタノール25 mLで負荷、溶出
| 溶出液
| | メタノールで25 mL定容
| LC-MS/MS注入

図 5-4 茶殻の試験溶液の調製法

表 4-1 トリシクラゾールの測定条件

液体クロマトグラフ-タンデム質量分析計操作条件例-1

機 種 : LC 部 ; Nexera X2 (LC-30AD) [島津製作所]
 MS 部 ; LCMS-8050 [島津製作所]
 解析ソフト : LabSolutions LCMS ver5.114 [島津製作所]
 カ ラ ム : InertSustain C18 [ジーエルサイエンス]
 内径 2.1 mm、長さ 150 mm、粒径 5 μm
 オープン温度 : 40 °C
 移 動 相 : A 液 ; 2 mmol/L 酢酸アンモニウム溶液
 B 液 ; メタノール
 A 液 : B 液 (40 : 60)
 流 量 : 0.2 mL/min
 注 入 量 : 4 μL
 コリジョンガス : アルゴン
 モニターイオン等 : 下表の通り

イオン化法、モニターイオン、Q1 Pre Bias、コリジョンエネルギー (CE) 及び保持時間の目安

イオン化法	プレカーサイト (m/z)	プロダクトイオン (m/z)	Q1 Pre Bias (V)	CE (eV)	保持時間の目安 (分)
トリシクラゾール ESI (+)	190	163	-14	-25	3.4

表 4-2 メプロニルの測定条件

液体クロマトグラフ-タンデム質量分析計操作条件例-2

移 動 相 : A 液 ; 2 mmol/L 酢酸アンモニウム溶液
 B 液 ; メタノール
 A 液 : B 液 (20 : 80)

注 入 量 : 2 μL

モニターイオン等 : 下表の通り

その他条件 : 液体クロマトグラフ-タンデム質量分析計操作条件例-1 と同様

イオン化法、モニターイオン、Q1 Pre Bias、コリジョンエネルギー (CE) 及び保持時間の目安

イオン化法	プレカーサイト (m/z)	プロダクトイオン (m/z)	Q1 Pre Bias (V)	CE (eV)	保持時間の目安 (分)
メプロニル ESI (+)	270	119	-10	-22	3.3

表 4-3 チアクロプリドの測定条件

液体クロマトグラフ-タンデム質量分析計操作条件例-3

移動相：A 液；2 mmol/L 酢酸アンモニウム溶液

B 液；メタノール

A 液：B 液（65：35）

注入量：1 μL

モニターイオン等：下表の通り

その他条件：液体クロマトグラフ-タンデム質量分析計操作条件例-1 と同様

イオン化法、モニターイオン、Q1 Pre Bias、コリジョンエネルギー（CE）及び保持時間の目安

	イオン化法	プレカーサーイオン (<i>m/z</i>)	プロダクトイオン (<i>m/z</i>)	Q1 Pre Bias (V)	CE (eV)	保持時間の目安 (分)
チアクロプリド	ESI (+)	253	126	-19	-22	10.05

表 4-4 ピフルブミド及びピフルブミド代謝物の測定条件

液体クロマトグラフ-タンデム質量分析計操作条件例-4

移動相：A 液；2 mmol/L 酢酸アンモニウム溶液

B 液；メタノール

A 液：B 液（20：80）

注入量：4 μL

モニターイオン等：下表の通り

その他条件：液体クロマトグラフ-タンデム質量分析計操作条件例-1 と同様

イオン化法、モニターイオン、Q1 Pre Bias、コリジョンエネルギー（CE）及び保持時間の目安

	イオン化法	プレカーサーイオン (<i>m/z</i>)	プロダクトイオン (<i>m/z</i>)	Q1 Pre Bias (V)	CE (eV)	保持時間の目安 (分)
ピフルブミド	ESI (+)	536	155	-30	-30	7.3
ピフルブミド代謝物 B	ESI (+)	466	382	-10	-37	5.7

標準溶液 0.0002 mg/L

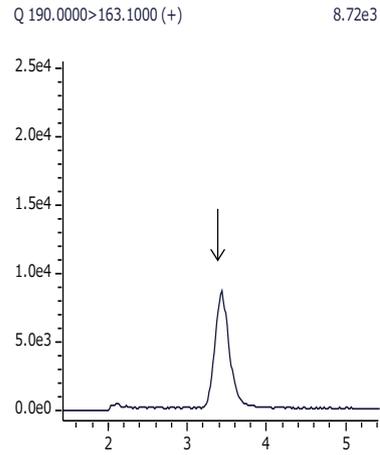
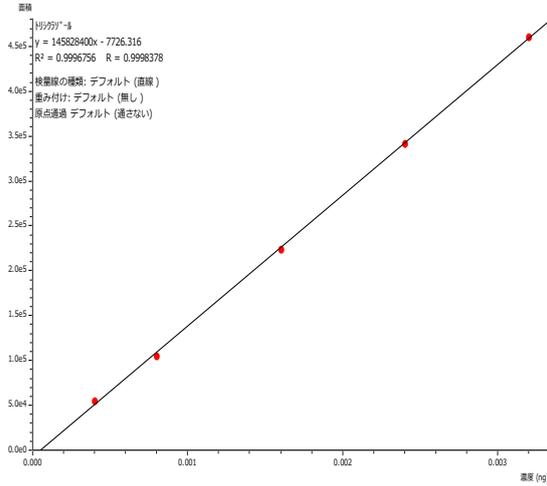


図 6-1 トリシクラゾールの検量線とクロマトグラムの一例

標準溶液 0.0002 mg/L

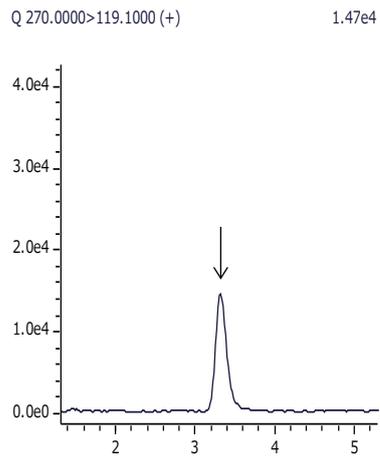
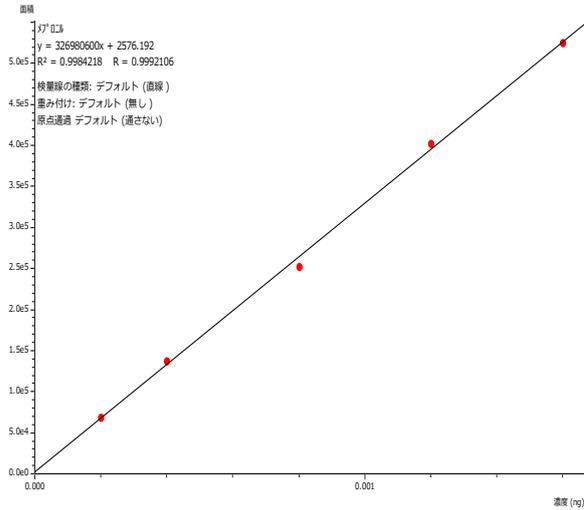


図 6-2 メプロニルの検量線とクロマトグラムの一例

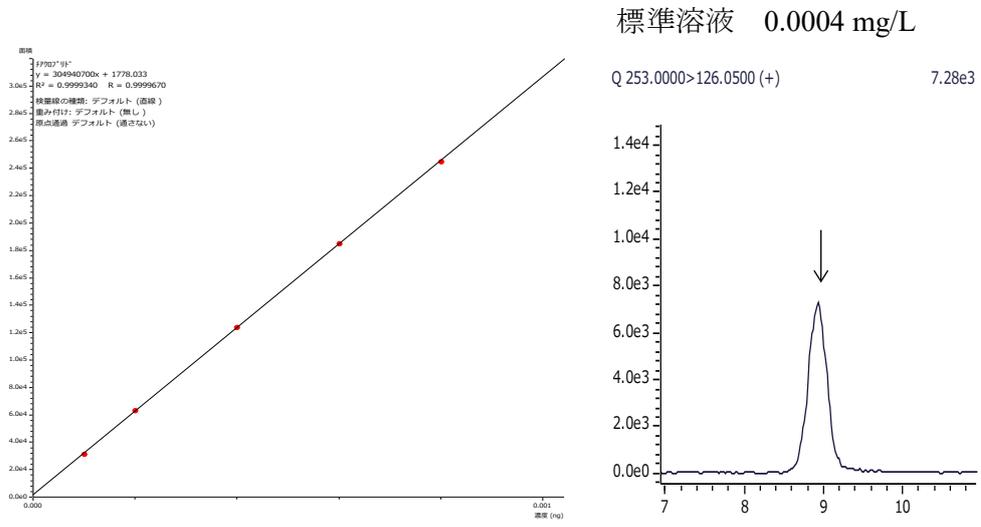


図 6-3 チアクロプリドの検量線とクロマトグラムの一例

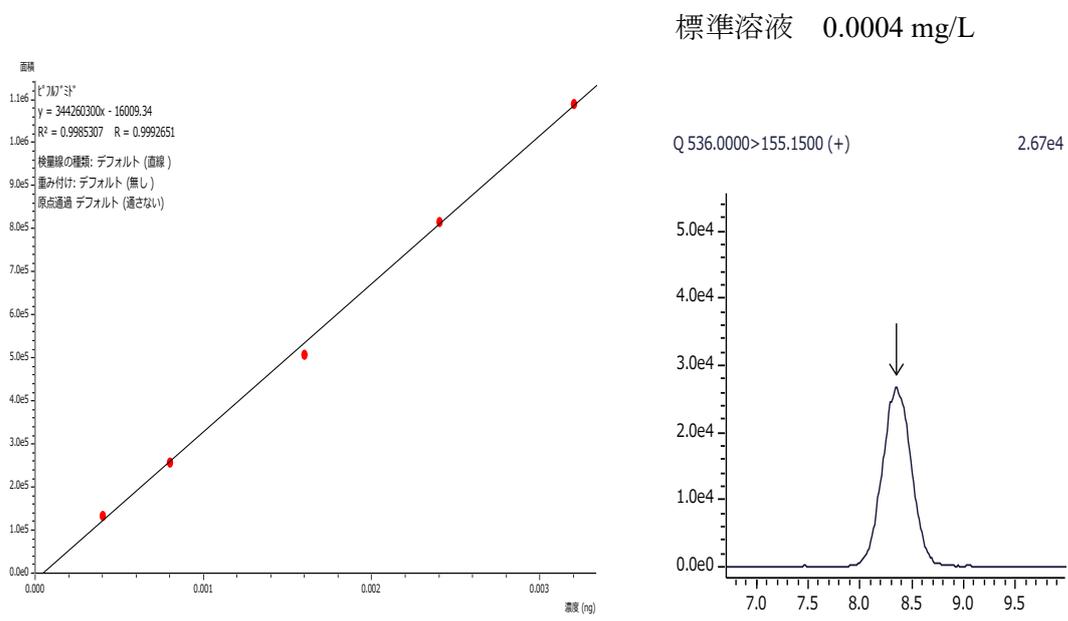
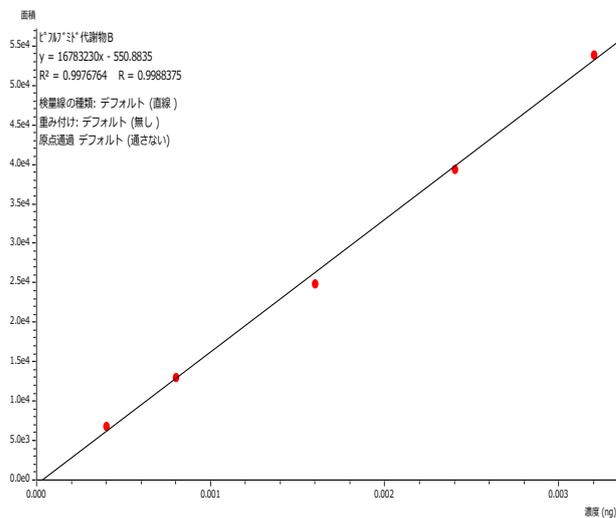


図 6-4 ピルプブミドの検量線とクロマトグラムの一例



標準溶液 0.0004 mg/L

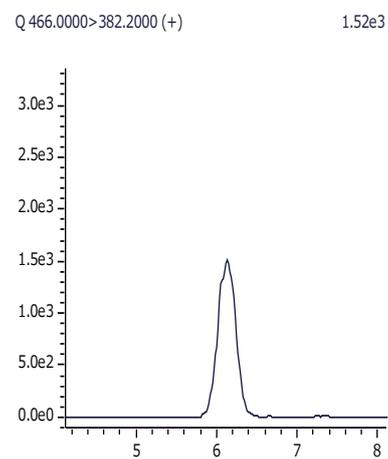


図 6-5 ピフルブミド代謝物 B の検量線とクロマトグラムの一例

表 5 添加回収試験における添加濃度一覧

試料名	玄米	糠	精白米	炊飯米
トリシクラゾール	0.1	0.01	0.01	0.01
メプロニル	0.1	0.01	0.01	0.01

(mg/kg)

試料名	荒茶	飲料茶1	飲料茶2	茶殻
チアクロプリド	1.0	0.0001	0.0001	0.01
ピフルブミド	1.0	0.0001	0.0001	0.01
ピフルブミド代謝物B	1.0	0.0001	0.0001	0.01

(mg/kg)

表 6-1 米加工試験試料のトリシクラゾール添加回収試験

試料名	玄米		糠		精白米		炊飯米	
	測定値	回収率	測定値	回収率	測定値	回収率	測定値	回収率
無添加	< LOQ	-	< LOQ	-	< LOQ	-	< LOQ	-
添加1	0.1039	104	0.00963	96	0.00996	100	0.00961	96
添加2	0.1038	104	0.00891	89	0.00984	98	0.00891	89
添加3	0.1027	103	0.00892	89	0.00990	99	0.00914	91
添加4	0.1028	103	-	-	-	-	-	-
添加5	0.1014	101	-	-	-	-	-	-
添加6	0.1012	101	-	-	-	-	-	-
平均	0.1026	103	0.00915	92	0.00990	99	0.00922	92
RSD(%)	1.1		4.5	-	0.6	-	3.9	-

表 6-2 米加工試験試料のメプロニル添加回収試験

試料名	玄米		糠		精白米		炊飯米	
	測定値	回収率	測定値	回収率	測定値	回収率	測定値	回収率
無添加	< LOQ	-	0.0021	-	< LOQ	-	< LOQ	-
添加1	0.09796	98	0.0100	79	0.0096	96	0.00807	81
添加2	0.1023	102	0.0102	81	0.0095	95	0.00815	82
添加3	0.09594	96	0.0099	78	0.0094	94	0.00830	83
添加4	0.09585	96	-	-	-	-	-	-
添加5	0.09629	96	-	-	-	-	-	-
添加6	0.09795	98	-	-	-	-	-	-
平均	0.09772	98	0.0100	80	0.0095	95	0.00817	82
RSD(%)	2.5		1.5	-	1.3	-	1.4	-

表 7-1 茶加工試験試料のチアクロプリド添加回収試験

試料名	荒茶		飲料茶1		飲料茶2		茶殻	
	測定値	回収率	測定値	回収率	測定値	回収率	測定値	回収率
無添加	< LOQ		< LOQ		< LOQ	-	< LOQ	-
添加1	0.9892	99	0.0000953	95	0.0000990	99	0.00880	88
添加2	0.9752	98	0.0000949	95	-	-	-	-
添加3	1.004	100	0.0000979	98	-	-	-	-
添加4	0.9575	96	0.0000968	97	-	-	-	-
添加5	1.007	101	0.0000980	98	-	-	-	-
添加6	1.026	103	0.0000973	97	-	-	-	-
平均	0.9932	99	0.0000967	97	-	-	-	-
RSD(%)	2.5	-	1.4	-	-	-	-	-

表 7-2 茶加工試験試料のピフルブミド添加回収試験

試料名	荒茶		飲料茶1		飲料茶2		茶殻	
	測定値	回収率	測定値	回収率	測定値	回収率	測定値	回収率
無添加	< LOQ		< LOQ		< LOQ	-	< LOQ	-
添加1	0.9971	100	0.0000940	94	0.0000896	90	0.00887	89
添加2	1.0110	101	0.0000969	97	-	-	-	-
添加3	1.006	101	0.0000968	97	-	-	-	-
添加4	1.0190	102	0.0000936	94	-	-	-	-
添加5	1.006	101	0.0000918	92	-	-	-	-
添加6	1.010	101	0.0000947	95	-	-	-	-
平均	1.008	101	0.0000946	95	-	-	-	-
RSD(%)	0.7	-	2.1	-	-	-	-	-

表 7-3 茶加工試験試料のピフルブミド代謝物 B 添加回収試験

試料名	荒茶		飲料茶1		飲料茶2		茶殻	
	測定値	回収率	測定値	回収率	測定値	回収率	測定値	回収率
無添加	< LOQ		< LOQ		< LOQ	-	< LOQ	-
添加1	1.029	103	0.000101	101	0.0000915	92	0.00841	84
添加2	1.068	107	0.000106	106	-	-	-	-
添加3	1.059	106	0.000102	102	-	-	-	-
添加4	1.049	105	0.000101	101	-	-	-	-
添加5	1.063	106	0.0000941	94	-	-	-	-
添加6	1.037	104	0.0000947	95	-	-	-	-
平均	1.051	105	0.000100	100	-	-	-	-
RSD(%)	1.5	-	4.6	-	-	-	-	-

表 8-1 米加工試験のトリシクラゾールの測定結果

	玄米	糠	精白米	炊飯米	
				試行1	試行2
①	1.819	7.92	1.07	0.408	0.396
②	1.887	8.10	1.02	0.394	0.396
③	1.874	8.72	1.04	0.410	0.403
④	1.859	-	-	-	-
⑤	1.841	-	-	-	-
⑥	1.819	-	-	-	-
平均	1.850	8.25	1.04	0.404	0.398
RSD	1.53	5.1	2.4	2.2	1.0

表 8-2 米加工試験のメプロニルの測定結果

	玄米	糠	精白米	炊飯米	
				試行1	試行2
①	1.309	10.05	0.378	0.0819	0.0778
②	1.366	10.35	0.380	0.0808	0.0811
③	1.343	10.47	0.386	0.0821	0.0782
④	1.344	-	-	-	-
⑤	1.331	-	-	-	-
⑥	1.341	-	-	-	-
平均	1.339	10.29	0.381	0.082	0.079
RSD	1.4	2.1	1.1	0.9	2.3

表 9-1 米加工試験のトリシクラゾールのマスバランス

試料名	全質量 (kg)	質量* (kg)	測定値 (mg/kg)	マスバランス (mg)	マスバランス
玄米	45.6	20.0	1.850	37.0	
糠	1.78	1.78	8.25	14.69	0.40
精白米	17.3	17.3	1.04	17.99	0.49
炊飯米	39.4	39.4	* 0.401	15.80	0.43

表 9-2 米加工試験のメプロニルのマスバランス

試料名	全質量 (kg)	質量* (kg)	測定値 (mg/kg)	マスバランス (mg)	マスバランス
玄米	45.6	20.0	1.339	26.8	
糠	1.78	1.78	10.29	18.32	0.68
精白米	17.3	17.3	0.381	6.59	0.25
炊飯米	39.4	39.4	* 0.081	3.17	0.12

表 10-1 米加工試験のトリシクラゾールの加工係数

試料名	測定値 (mg/kg)	加工係数
玄米	1.850	
糠	8.25	4.5
精白米	1.04	0.56
炊飯米	* 0.401	0.22

表 10-2 米加工試験のメプロニルの加工係数

試料名	測定値 (mg/kg)	加工係数
玄米	1.339	
糠	10.29	7.7
精白米	0.381	0.28
炊飯米	* 0.081	0.060

表 11-1 茶加工試験のチアクロプリドの測定結果一覧

	荒茶	試行1			試行2	
		飲料茶1	飲料茶2	茶殻	飲料茶1	飲料茶2
①	11.023	0.0687	0.0532	1.14	0.0637	0.0514
②	10.913	0.0679	0.0528	1.15	0.0637	0.0526
③	10.948	0.0673	0.0531	1.17	0.0637	0.0526
④	10.977	-	-	-	-	-
⑤	11.154	-	-	-	-	-
⑥	10.969	-	-	-	-	-
平均	10.997	0.0680	0.0530	1.15	0.0637	0.0522
RSD	0.77	1.0	0.4	1.3	0.0	1.3

表 11-2 茶加工試験のピフルブミドの測定結果一覧

	荒茶	試行1			試行2	
		飲料茶1	飲料茶2	茶殻	飲料茶1	飲料茶2
①	2.076	0.000162	0.000111	0.320	0.000156	0.000112
②	1.984	0.000170	0.000107	0.331	0.000159	0.000123
③	2.060	0.000156	0.000114	0.338	0.000153	0.000116
④	2.055	-	-	-	-	-
⑤	2.071	-	-	-	-	-
⑥	2.072	-	-	-	-	-
平均	2.053	0.000163	0.000111	0.33	0.000156	0.000117
RSD	1.69	4.3	3.2	2.8	1.9	4.8

表 11-3 茶加工試験のピフルブミド代謝物 B の測定結果一覧

	荒茶	試行1			試行2	
		飲料茶1	飲料茶2	茶殻	飲料茶1	飲料茶2
①	4.070	0.000578	0.000499	0.645	0.000630	0.000534
②	3.950	0.000615	0.000502	0.677	0.000619	0.000581
③	4.165	0.000566	0.000511	0.691	0.000600	0.000574
④	4.207	-	-	-	-	-
⑤	4.182	-	-	-	-	-
⑥	4.210	-	-	-	-	-
平均	4.131	0.000586	0.000504	0.671	0.000616	0.000563
RSD	2.47	4.4	1.2	3.5	2.5	4.5

表 12-1 茶加工試験のチアクロプリドのマスバランス

試料名	試行1				試行2			
	収量(g)	測定値 (mg/kg)	マスバランス (mg)	マスバランス	収量(g)	測定値 (mg/kg)	マスバランス (mg)	マスバランス
荒茶	5.01	10.997	0.0551		5.02	10.997	0.055	
飲料茶1	222.95	0.0680	0.0152	0.28	226.71	0.0637	0.0144	0.26
飲料茶2	237.49	0.0530	0.0126	0.23	241.21	0.0522	0.0126	0.23
茶殻	24.65	1.15	0.0283	0.51	24.34	-	-	-

表 12-2 茶加工試験のピフルブミドのマスバランス

試料名	試行1				試行2			
	収量(g)	測定値 (mg/kg)	マスバランス (mg)	マスバランス	収量(g)	測定値 (mg/kg)	マスバランス (mg)	マスバランス
荒茶	5.01	2.053	0.0103		5.01	2.053	0.0103	
飲料茶1	220.68	0.000163	0.0000360	0.0035	226.54	0.000156	0.0000353	0.0034
飲料茶2	236.03	0.000111	0.0000262	0.0025	242.67	0.000117	0.0000284	0.0028
茶殻	24.41	0.330	0.00806	0.78	24.10	-	-	-

表 12-3 茶加工試験のピフルブミド代謝物 B のマスバランス

試料名	試行1				試行2			
	収量(g)	測定値 (mg/kg)	マスバランス (mg)	マスバランス	収量(g)	測定値 (mg/kg)	マスバランス (mg)	マスバランス
荒茶	5.01	4.131	0.021		5.01	4.131	0.021	
飲料茶1	220.68	0.000586	0.00013	0.006	226.54	0.000616	0.00014	0.007
飲料茶2	236.03	0.000504	0.00012	0.006	242.67	0.000563	0.00014	0.007
茶殻	24.41	0.671	0.016	0.79	24.10	-	-	-

表 13-1 茶加工試験のチアクロプリドの加工係数

試料名	試行1		試行2	
	測定値 (mg/kg)	加工係数	測定値 (mg/kg)	加工係数
荒茶	10.997		10.997	
飲料茶1	0.0680	0.0062	0.0637	0.0058
飲料茶2	0.0530	0.0048	0.0522	0.0047
茶殻	1.15	0.105	-	-

表 13-2 茶加工試験のピフルブミドの加工係数

試料名	試行1		試行2	
	測定値 (mg/kg)	加工係数	測定値 (mg/kg)	加工係数
荒茶	2.053		2.053	
飲料茶1	0.000163	0.000079	0.000156	0.000076
飲料茶2	0.000111	0.000054	0.000117	0.000057
茶殻	0.330	0.16	-	-

表 13-3 茶加工試験のピフルブミド代謝物 B の加工係数

試料名	試行1		試行2	
	測定値 (mg/kg)	加工係数	測定値 (mg/kg)	加工係数
荒茶	4.131		4.131	
飲料茶1	0.000586	0.00014	0.000616	0.00015
飲料茶2	0.000504	0.00012	0.000563	0.00014
茶殻	0.671	0.16	-	-