

I. 総括研究報告書

加工食品の輸出拡大に向けた規格基準設定手法の確立のための研究

研究代表者	中村 公亮	国立医薬品食品衛生研究所食品部
研究分担者	吉池 信男	青森県立保健大学大学院健康科学研究科
研究分担者	佐々木 敏	東京大学大学院医学系研究科
研究分担者	山崎 由貴	国立医薬品食品衛生研究所食品部

研究要旨

本研究では、最新の全国食事調査データを用いて加工食品からの有害な化学物質の摂取量(特に残留農薬の摂取量)を精密に推定できる新たな手法の開発を目的とする。食品中の残留農薬は、科学的根拠と国際整合性を踏まえ、リスク分析がなされ、残留基準が設けられ厳しく規制されている。そのような中で、人が日々の食事から残留農薬の摂取量を精密に推計し、人へのリスク分析に生かすことは健康を護るための安全な食品を確保する上で極めて重要である。食は時代によって常に変化しているため、我が国の喫食の実態に合わせて最新の情報を取り入れ推計することが求められる。食の安全に対する関心は国内のみならず、海外でも高い。したがって、我が国の最新の食事調査データを用いて、残留農薬の摂取量の推定を行い、科学的エビデンスに基づいた精密なばく露評価を行うことは、安心安全な日本産食品の輸出拡大にもつながる。本研究では、①わが国の食品の摂取量、②調理加工係数、③国際機関で残留農薬の評価に用いられる加工係数を調査し、それらのデータを統合することで、わが国の実態に合致した食事を通じた残留農薬の摂取量を精密に推計する手法を開発した。

A. 研究目的

本研究では、近年行われた全国食事調査データを活用し、加工食品からの化学物質の摂取量を精密に推定できる新たな手法の開発を目的とする。食の安全を確保していく上では、日々の食事を通じて、残留農薬、動物用医薬品、放射性物質等の有害な化学物質の摂取量を精密に推計し、人へのリスク分析に生かし、食の安全性を確保することが求められる。現在、加工

食品からの化学物質の摂取量を推計する際には、平成 17~19 年度に行われた食品摂取頻度・摂取量調査データを基に平成 22 年度に集計されたデータが考慮された手法が用いられている。しかしながら、食は時代によって変化するため、我が国の加工食品の喫食の実態に合わせて推計する必要がある。食の安全に対する関心は国内のみならず海外でも高い。有害な化学物質の摂取量を推定し安全性を確認す

ることは、日本の食の安全性に関する輸出先国の評価、ひいては輸出拡大につながることを期待される。本研究では、わが国の輸出重点品目とされる作物と加工食品に対して、輸出先国の残留農薬の規格基準の設定に関する調査、ならびに、これまでに未対応であった①わが国の最新の食品の摂取量、②調理加工係数、③加工係数に関する調査を実施し得られたデータを取り纏めデータベース化し、さらにはこれまでに作物に検出された残留農薬を例に取り上げ、残留農薬の摂取量を精密に算出して、食事による短期ならびに長期ばく露量を推計するツールを開発する。令和2年度は、わが国の最新の食品の摂取量、調理加工係数、加工係数に関する調査に必要な情報の調査、データの収集、整理ならびに解析を行った。令和3年度は、1. 令和2年度厚生労働省委託事業「食品摂取頻度・摂取量調査」において取り纏められた食事調査データから、食事記録をもとに食品を加工レベルに応じて分類するシステムを構築し、日本人における加工食品の摂取状況、ならびに、国内外の食事調査法の相違点を調査、2. 日本食品標準成分表2015年版（七訂）に掲載されている加工食品について、原材料的食品の配合割合を推測する方法について整理、3. 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、これらの加工食品における加工係数の予測法の検討を行った。令和4年度は、1. 超加工食品の摂取量と、食事の質、食品選択の価値観およびフードリテラシー、ならびに年齢、性別、喫煙状況等の個人的特性との関連を調査、2.

日本食品標準成分表2020年版（八訂）に掲載されている加工食品2,428食品について、原材料的作物への分解係数（調理加工係数）を推定し、データベース化、3. 生鮮食品から加工食品への加工過程における残留濃度の変化率（加工係数）の予測モデルを開発した。本研究で収集した①～③の情報をもとに、残留農薬等の長期ならびに短期ばく露量を推計可能なツールを開発し、算出されたばく露量と国内外の基準値と比較して考察した。

B. 研究方法

①加工食品の摂取状況を把握するための全国食事調査のデータ解析（佐々木分担報告）

（研究1）全国食事調査の実施とデータ集計

平成30年度までの全国食事調査（食品摂取頻度・摂取量調査）では1歳以上79歳以下の日本人4032人の調査をすることとし、2016～17年に参加者の約6割の食事記録調査を行い（第1ラウンド）、2017～18年に残りの参加者の調査を行った（第2ラウンド）。さらに、幼児の食事データを収集するため、2019年11月から2020年8月にかけて1～6歳児を対象とした追加の食事調査を実施した（小児の追加調査）。参加者はほぼ健康と見なされる1歳以上6歳以下の日本人432人とした。予定参加者数は、平成28～30年度に実施した調査（東京大学倫理委員会 No. 11397）における参加者数（約400人）に推定脱落率（8%）を考慮して設定した。

第1・第2ラウンドと同様に、全国32都道府県（北海道、岩手県、宮城県、山形県、茨城県、群馬県、埼玉県、千葉県、東

京都、神奈川県、新潟県、富山県、山梨県、岐阜県、静岡県、愛知県、三重県、京都府、大阪府、兵庫県、奈良県、鳥取県、島根県、岡山県、広島県、山口県、徳島県、愛媛県、福岡県、熊本県、大分県、沖縄県）に在住する栄養士（以下、調査担当栄養士と呼ぶ：159人）が実施可能性を考慮して選んだ者（同僚、その近隣住民など）を対象とした。なお、調査担当栄養士からは事前に文書による承諾を得た。参加者に対しては調査担当栄養士から本調査の目的を説明し、文書による調査参加への同意を得た。

2019年10～11月に、属性ならびに通常の食事習慣を含む生活習慣ならびに健康状態等に関する基本質問票、簡易型自記式食事歴法質問票（BDHQ3y）による調査を実施した。また、身長と体重を測定した。

半秤量式食事記録は、2019年11月（秋季）、2020年2月（冬季）、6月（春季）、8月（夏季）に不連続の2日間ずつ、合計8日間にわたって実施した（以下、食事記録と呼ぶ）。砂糖および甘味類・油・調味料・副材料として用いる小麦粉（揚げ衣など）は、1回の摂取量が少ない割に摂取頻度が高く、秤量に伴う負担が大きい。これらの食品の秤量を義務化すると、食事記録全体の丁寧さに悪影響を及ぼすと考えられるため、秤量せずに名称だけを記録すればよいこととした。参加者は記録が終了し次第、調査担当栄養士に食事記録用紙を提出し、その後、調査担当栄養士、または、調査事務局にて、記録内容の確認を行い、記録内容に不明な点などがあれば、調査担当栄養士を通じて、参加者に記

録内容に関する質問を口頭・電話・メールなどにより行い、参加者の可能な範囲で、不明確な記録内容についてはより具体的な回答をしていただくよう再調査を行った。砂糖および甘味類・油・調味料・小麦粉の摂取重量が記録されていない場合には、調査事務局にて一般的なレシピや各種資料をもとに摂取量を推定した。

この方法で収集した小児の追加調査のデータを第1・第2ラウンドのデータと統合し、摂取量の集計を行った。食事データ集計から電子データ化までの概要を図1に示す。集計の参加者は食事調査の第1ラウンド・第2ラウンド・小児の追加調査の各8日間の食事記録調査のうち、少なくとも1日に参加した者とした。年齢区分ごと（1～6歳、7～64歳、65歳以上、14～50歳の妊娠可能年齢の女性）と参加者全体（1歳以上）における全2228食品の摂取状況について、参加者全体の摂取量（g/人・日）の分布（平均値と標準偏差）、各食品の登場回数（人・日）、摂取者内における摂取量（g/人・日）の分布（平均値と標準偏差、および0・50・95・97.5・99・100パーセンタイル値）、摂取者の平均体重（kg/人・日）を集計し、表にまとめた。同様の集計を128食品群に対しても実施した。食品群摂取量の算出にあたっては、重量換算係数を用いて各食品を生重量に変換してから食品群の摂取量に合算した。

（研究2）加工食品の定義と分類に関する先行研究のレビュー

食事調査のデータから加工食品の摂取量を算出するためには、何を加工食品とするか定義・分類する必要がある。そこで、

諸外国における加工食品の分類システムについて PubMed と Web of Science を用いた先行研究の調査を行った。検索語には processed food、classification、definition、およびそれらに関連する用語を組み合わせて使用した。その結果、分類システムとして最も広く用いられていることが明らかになった NOVA の食品分類を和訳した。また、先行研究で示された NOVA の食品分類では、加工レベルごとに食品の例がまとめて羅列されていたため、各食品が加工レベルに応じてどのように分類されているのかわかりにくかった。そこで、NOVA で例示された各加工レベルに属する食品を日本標準食品成分表に記載されている食品群ごとに分けて分類し整理した。

また、近年、食品加工の程度が高い ultra-processed foods (超加工食品) の摂取量と健康影響について注目が高まっているため、研究状況を把握することを目的とした先行研究のレビューを行った。2021年3月2日に PubMed を用いて以下の検索語で検索を行った：(ultra-process*[TIAB] or ultra process*[TIAB] or ultraprocess*[TIAB]) AND (food[TIAB] OR foods[TIAB]) AND NOVA。検索フィルターを用いて、対象論文の言語を英語と日本語に限定した。得られた論文について、タイトル、著者名、雑誌や発行年などの書誌情報に加え、研究が実施された国、研究デザイン、参加者(子供、大人など)、調査名、食事アセスメント方法、解析における ultra-processed foods の変数としての取り扱い(総エネルギー摂取量に対するエネルギー寄与率や

総食品摂取重量に対する重量寄与率など)、加工食品との関連をみた因子などについて表にまとめ、考察した。

(研究 3) 日本人の食事記録に基づく加工食品の摂取状況の把握

日本人の加工食品の摂取状況を把握するためには、食品を加工レベルに応じて分類するシステムを構築する必要がある。そのため、まずは過去に行われた比較的小規模かつ詳細な食事記録調査のデータを用いて、分類システムの構築を試みることにした。調査は 2013 年 2~3 月にかけて 23 都道府県で実施された。参加者は 20~69 歳の健康な女性 196 人と男性 196 人である。参加者の中に管理栄養士や医療従事者、医師や管理栄養士による食事療法を受けたことがある人、糖尿病による教育入院歴がある人、妊娠中・授乳中の人は含まれなかった。参加者は非連続の 4 日間(夜勤の日とその前後の日を除く勤務日 3 日および非勤務日 1 日)に、摂取したすべての食品と飲料を食事記録用紙に記録した。各地域の調査担当管理栄養士が食事記録のつけ方とデジタルスケール(KD-812WH、タニタ)の使い方を説明した。食事記録用紙は 4 つの食事場面(朝食・昼食・夕食・間食)に分かれており、各場面で以下の項目を記録するよう求めた：①料理名、②食品名(飲み物や料理に含まれる食材を含む)、③料理が手作りか、既製品か、あるいはその他(新鮮な野菜や果物など生の状態で食べる食品)か、④食べた食品のおおよその量または測定重量、⑤食事をとった場所。また、市販の商品については商品名とメーカー名、外食につ

いてはメニュー名と店舗名を記録してもらった。包装食品については、パッケージをとっておくようお願いした。

食事記録用紙とパッケージは、記録後すぐに各施設の調査担当栄養士に提出された。調査担当栄養士はできるだけ早く記録用紙を確認し、必要に応じて参加者に問い合わせを行った。各施設の管理栄養士は、日本食品標準成分表を用いて、統一された手順で各食品に食品番号を付与した。包装食品と惣菜に含まれる食材の摂取重量は、おおよその分量、レストランやメーカーのホームページ、料理本、原材料表示、栄養成分表示などから、できるだけ正確に推定した。

食事記録用紙の食品名の欄に記録されたすべての食品を、調査担当栄養士が以下の3つに分類した。(1) 自家製食品：家庭で調理された食品(例：炊いた飯、家庭で焼いたパン)、(2) 市販食品：惣菜に含まれる食材や、製造業者によって加工された食品(例：レトルトカレー、加工肉、チョコレート)、(3) その他の食品：家庭で調理する前の未加工の食材(新鮮な野菜、肉、魚、牛乳など)や、家庭での調理時や食卓で加える調味料(サンドイッチを作るときに使うマヨネーズなど)。これらの食品分類と食品番号、重量は、研究事務局の2人の管理栄養士が再確認した。

体重(0.1 kg 単位)と身長(0.1 cm 単位)は、軽装かつ裸足の状態で調査担当栄養士または医療従事者が標準的な手順で測定した。BMI (body mass index) は体重(kg)÷身長(m)の二乗として算出した。また、性、年齢、喫煙状況に関する情報を自記式質問票により収集した。

次に、食事記録用紙の料理名の欄に登場する、サプリメントを除く延べ 25,989 個の料理を、ノースカロライナ大学チャペルヒル校(UNC)の研究者が開発した分類システムに基づき、食品の工業的加工のレベルに応じて分類した。

ステップ1：加工されていない食品や自家製の作られた料理は、各食材に対して分類を行う(例：家庭で作る味噌汁の味噌、水、ほうれん草、卵など)。

ステップ2：単一の食材から構成される既製の料理(例：インスタントラーメン)については、食材に対して分類を行う。

ステップ3：複数の食材を使用し、パッケージ食品の商品名、ブランド名、メーカー名、ファーストフード店のチェーン名などがある既成の料理は、料理に対して分類を行う。(マクドナルドで買ったハンバーガーは、その食品成分に分解せず、1つの商品として分類する)

ステップ4：その他、ブランドやメーカーを特定する情報がない既製の料理(例：ブランド名のわからない調理済みのハンバーガー)については、以下の2つの方法で分類する。[方法A] 全品目を工業的に製造された食品とみなす(すなわち、料理を食材に分解せず、料理ごと分類する)、または[方法B] 全品目を職人によって手作りされた食品とみなす(よって、料理を食材まで分解し、食材ごとに分類を適用する)。ステップ1と2、およびステップ4の方法Bでは、日本食品標準成分表の食品番号をもとに、各食品が市販食品か否かを

考慮して分類を行った。例えば、食品コード 16042「ウーロン茶／浸出液」の場合、自家製の食品は「未加工、最小限の加工」の категорияに、市販の食品は「基本的な加工」の categoriaに分類した。既製品に「自家製」または「その他」の食品が含まれている場合（例：市販の中華餃子に家庭で調味料を加えて食べた場合）、「自家製」または「その他」の食品を市販品から分離し、食品番号に基づいて個別に分類した。ステップ 4 の方法 A では、すべての料理が、UNC の分類体系において、冷凍食品や保存食品ではなく、調理済み食品や加熱食品であると仮定して分類した。

参加者一人一人の食品摂取量を 4 日間の平均として算出し、参加者の特性ごとに、UNC 分類に従って、(1) 未加工／最小限の加工、(2) 基本的な加工、(3) 中程度の加工、(4) 高度に加工された食品、の 4 つの加工レベルごとに摂取量を示した。摂取量は、食品の総摂取重量(g/日)と総エネルギー摂取量 (kcal/日) に加え、総摂取重量に対する各カテゴリーの食品の重量寄与率(%）、総エネルギー摂取量に対する各カテゴリーの食品のエネルギー寄与率 (%)として示した。参加者特性のカテゴリーによって「高度な加工」に分類される食品の重量寄与率とエネルギー寄与率が異なるかどうかを検討するため、対応のない t 検定または一元配置分散分析を行った。カテゴリー間に有意差がみられた場合には Tukey の多重比較検定を行った。P<0.05 の場合に有意差ありとした。統計解析には SAS 9.4 を用いた。

(研究 4) 各国の食事調査法のレビュー

各国の食事調査法の違いを明らかにするため、世界各国の国を代表する規模の食事調査に関するレビュー論文から、各調査に関する情報を抽出した。抽出した情報は、各レビュー論文に重複する調査項目、すなわち国名、調査名、調査年、参加者数、調査参加者の年齢層、食事調査法とした。一つの国に対して複数の調査（異なる年に行われた同一の調査など）の情報がある場合、調査年が最新の情報のみを抽出した。ただし、異なる調査で調査参加者の年齢が全く異なる場合には、それぞれの調査を分けて表にまとめた。必要な情報に応じて食事調査に関する文献を参照し、情報を補足した。

(研究 5) 超加工食品の摂取量と食事の質との関連の検討

2013 年に日本の 20 地域（23 道府県）に住む 20～69 歳の日本人成人 388 人から得られた食事記録のデータを使用した。参加者は、4 日間にわたって食べたり飲んだりしたものを全て計量して記録した。記録されたすべての食品を、UNC の研究者らが開発した食品分類の枠組みを用いて、加工レベルが低い順に「未加工／最小限の加工」「基本的な加工」「中程度の加工」「高度な加工（超加工食品）」の 4 段階に分類した。食事の質は、Healthy Eating Index-2015（アメリカ人のための食事ガイドラインの順守の程度を測る指標）と Nutrient-Rich Food Index 9.3（食事全体を栄養素密度の観点から評価する指標）の 2 つを使って評価した。また、外食や惣菜など家庭外で調理された料理を、①食材に分解せずに料理ごと加工レベル別に分類す

る場合（料理レベルでの分類）と、②料理に含まれる食材を個別に分類する場合（食品レベルでの分類）で、超加工食品の推定摂取量や、食事の質との関連が異なるかどうかを調べた。

（研究 6）超加工食品の摂取量と尿中リン・カリウム・ナトリウム排泄量との関連の検討

研究 1 と同じ食事記録データを用いた。ただし、参加者のうち正しい手順で 2 回の 24 時間蓄尿データが得られた 322 人のみを対象とした。尿中リン・ナトリウム・カリウム排泄量は 2 日間の 24 時間蓄尿の平均値として算出した。尿中リン・ナトリウム・カリウム排泄量と超加工食品の関連は重回帰分析で調べた。食事記録から推定した各尿中排泄量（mg/日）を従属変数とし、独立変数を超加工食品の摂取重量（g/日）、エネルギー摂取量（kcal/日）、食品の総摂取重量に対する重量寄与割合（%グラム）、総エネルギー摂取量に対するエネルギー寄与割合（%エネルギー）の 4 通りで検討した。調整変数は性（男性・女性）、BMI（kg/m²）、年齢（歳）、身体活動レベル（MET s・時）、喫煙状況（非喫煙者、過去喫煙者、現在喫煙者）、教育歴（中学または高校、専門学校または短大、大学または大学院）、総エネルギー摂取量（kcal/日）とした。

（研究 7）超加工食品の摂取量と、食品選択の価値観およびフードリテラシーとの関連の検討

2018年に日本の32都道府県に住む18～80歳の日本人成人2232人を対象に実施した全国規模の質問紙調査のデータを用いた。8つの食品選択の価値観（入手しやす

さ、便利さ、健康、伝統、感覚的魅力、オーガニック、快適さ、安全性）に加え、栄養知識、料理技術、食全般に関わる技能、8つの食行動（空腹感、食物反応性、感情的な過食、食物の楽しみ、満腹感反応性、感情的な食欲不振、食べものの好き嫌い、食事の遅さ）によって特徴づけられるフードリテラシーを評価した。超加工食品の摂取量は、簡易型食事歴法質問票（BDHQ）を使用して推定した。解析は男女別に行った。超加工食品の摂取量（g/1000kcal）と年齢（歳）、BMI（kg/m²）、総エネルギー摂取量（kJ/日）、食品選択の価値観およびフードリテラシーの各スコアとの関連を、重回帰分析により評価した。

（研究 8）超加工食品の摂取量と、年齢、性別、喫煙状況等の個人的特性との関連の検討

2016～2018年に日本の32都道府県に住む18～79歳の日本人成人2742人から得られた食事記録のデータを使用した。参加者は、8日間にわたって食べたり飲んだりしたものを全て計量して記録した。そして、記録されたすべての食品を研究者が加工レベル別に分類した。また、外食や惣菜などの家庭外で調理された料理を、①料理に含まれる個々の食材をそれぞれ加工レベル別に分類する場合（超加工食品をより少なく見積もるシナリオ）と、②すべて超加工食品に分類する場合（超加工食品をより多く見積もるシナリオ）の2通りで食品分類を行なった。各推定シナリオにおいて超加工食品の摂取量を推定し、個人的特性（年齢、性別、BMI、世帯

収入、教育歴、雇用形態、喫煙状況、身体活動量)との間に関連があるかどうかを調べた。

(研究 9) 残留農薬等の基準値が設定されている食品分類名への食品番号の付与

残留農薬等の基準値が設定されている食品リストに記載された 313 個の食品分類名のそれぞれに日本標準食品成分表(七訂)の食品番号を付与した。まず各食品分類名について、該当する食品名が食品成分表にあるかどうかを検討した。しかし、食品リストと成分表では食品の名称や分類の仕方が異なるため、リストに記載されたすべての食品を成分表の食品番号に一对一で紐づけることが困難であった。そのため、ある食品分類名に該当する食品が食品成分表に 1 つ以上ある場合には、それらの食品番号を以下のいずれかに分類した:(食品リストの食品分類名に)①完全に当てはまる、②部分的にあてはまる、③判断できない。たとえば食品リストの「あひるの筋肉(食品分類コード 004002)」については、成分表の「かも・あひる・肉・皮つき・生(食品番号 11203)」と「かも・あひる・肉・皮なし・生(食品番号 11247)」を紐付けた。「かも・あひる・肉・皮つき・生(食品番号 11203)」の一部分(皮を除いた部分)は「あひるの筋肉」であるため「②部分的にあてはまる」とした。一方、「かも・あひる・肉・皮なし・生(食品番号 11247)」はまさに「あひるの筋肉」であるとみなし、「①完全に当てはまる」とした。また、たとえば食品リストの「コーヒー豆(食品分類コード 050000)」に抽出液を含めるべきかどうか

(部分的にあてはまると考えてよいかも含めて)判断が困難であったため、食品成分表に記載されている 6 つの食品、すなわち豆乳・豆乳飲料・麦芽コーヒー(食品番号 4054)、乳飲料・コーヒー(食品番号 13007)、ゼリー・コーヒー(食品番号 15088)、コーヒー・浸出液(食品番号 16045)、コーヒー・インスタントコーヒー(食品番号 16046)、コーヒー・コーヒー飲料・乳成分入り・加糖(食品番号 16047)を、③判断できない、とした。

(各研究における倫理面への配慮)

研究 2・4・9 については人を対象としたデータを利用していないため倫理面での問題がない。それ以外の研究は、ヘルシンキ宣言のガイドラインに従って実施され、東京大学医学部倫理委員会の承認を得ている。承認番号は以下の通りである。研究 3・5・6:10005 番、研究 7:12031 番、研究 1・8:11397 番。これらの研究では参加者全員から(研究 7 においては参加者が 20 歳未満の場合のみさらに参加者の親から)、書面によるインフォームド・コンセントを得た。

②調理加工係数の問題点の把握(吉池分担報告)

1) 初年度(令和 2 年度)

日本食品標準成分表 2015 年版に掲載されている食品を対象に、調理加工係数を推定する上での課題を検討した。成分表に掲載されている食品は、原材料的食品と加工食品に分けられる。原材料的食品の調理食品は、日本食品標準成分表 2015 年版で示された重量変化率を用いて、原

材料的食品の「生」や「乾」などの未調理食品の重量を決定した。一方、加工食品は、2通りの方法で、原材料的食品の「生」や「乾」などの未調理食品の重量を推定した。

① 日本食品標準成分表の成分値が、計算値で示されている加工食品

原材料配合割合は、日本食品標準成分表の食品群別留意点に記載されていることから、そのまま用いた。

② 日本食品標準成分表の成分値が、計算値以外の加工食品

加工食品の原材料を、日本食品標準成分表の食品群別留意点や関連書籍から加工食品の原材料を把握した。次に、その原材料の成分値と加工食品の成分値から方程式などを用い、加工食品 100g を作るのに必要な原材料の重量を推定した。

2) 第2年度（令和3年度）

日本食品標準成分表 2015 年版に掲載されている食品を対象に、加工食品を製造するための原材料的食品の重量の推定方法を検討した。まず、今回の作業のために食品を以下のように類型化した。

調理後の食品、それ以外の方法（物理的、化学的、生物学的方法）で加工された食品を加工食品とし、調理後の食品、加工食品いずれでもない食品を原材料的食品（食材）とした。

日本食品標準成分表に掲載されている食品の成分値の決定根拠は、「分析値」、「文献値」、「計算値」、「類推値」、「借用値」、「推定値」のいずれかとした。調理加工係数の計算値は、日本食品標準成分表に収載されている食品の成分値と、食品群別

留意点または備考欄に記載されている標準的な原材料配合割合を用いた。

原材料配合割合が掲載されていない食品の原材料は、食品群別留意点及び関連書籍から特定した。原材料配合割合の推定は、①乾燥品、②塩蔵品、③アルコール発酵、酢酸発酵によって製造する食品、④その他の加工食品に分け、検討した。

乾燥食品は、原材料的食品を乾燥させただけの加工食品である。そこで、原材料的食品の水分量と加工食品の水分量から、加工食品を製造するために必要な原材料的食品の重量を算出した。

塩蔵食品は、主な原材料的食品 1 つと食塩から製造される食品とした。塩蔵の過程で水分とともに多くの成分が流出したり、発酵により化学変化が起こる。そこで食塩には水分がないことから、原材料的食品の水分量と加工食品の水分量から、加工食品を得るための原材料的食品の重量を算出した。塩蔵品に含まれる食塩の量から塩蔵品を製造するために必要な食塩の量を求めた。

アルコール発酵、酢酸発酵によって製造する食品は、アルコール発酵、酢酸発酵の化学反応式と量的関係を用いて、加工食品中の利用可能炭水化物、アルコール、酢酸の量から原材料的食品の重量を推定した。

3) 最終年度（令和4年度）

3) -1 対象食品

日本食品標準成分表 2020 年版（八訂）に掲載されている食品のうち、「18 群：調理済み流通食品群」（50 食品）を除く 2428 食品を対象とした。

対象とした食品は、①未調理・未加工の食品、②調理後食品 (cooked foods)、③加工食品 (raw primary commodity (RPC) derivatives) に分類した。ここでの調理は、水煮、ゆで、炊き、蒸し、電子レンジ調理、焼き、油いため、ソテー、素揚げ、天ぷら、フライおよびグラッセの加熱調理と、水さらし、水戻しの非加熱調理とした。

3) -2 調理後食品における調理加工係数の推定方法

調理後食品の調理加工係数は、日本食品標準成分表に掲載されている調理による重量変化率、揚げ物における衣の割合及び脂質量の増減、いため物における脂質量の増減をもとに推定した。

3) -3 加工食品における調理加工係数の推定方法

加工食品の成分変化から、乾燥食品 (dried foods)、塩蔵品 (salted foods)、発酵食品 (fermented foods)、原材料を組み合わせることができる食品 (mixed foods (other foods that multiple ingredients are mixed, excluding dried, salted and fermented ones)) に分けて、調理加工係数を推定した。

乾燥食品 (43 食品)

原材料が1つの食品で、乾燥する前と乾燥した後のいずれも日本食品標準成分表に掲載されている食品を「乾燥食品」に分類した。乾燥前後の水分の重量に着目し、乾燥により水分が減少すると考え、乾燥前の食品の水分量と乾燥後の食品 (=乾燥食品) の水分量から、乾燥食品の原材料 (=乾燥前の食品) の重量、すなわち調理加工係数を推定した。

塩蔵品 (32 食品)

調理加工係数の算定方法に関して、以下の様に分類した。

- a) 原材料が1つと食塩からなる食品 (22 食品)
- b) 原材料が1つで食塩と米ぬかから作られる「ぬかみそ漬」 (6 食品)
- c) 原材料が1つで食塩とみそから作られる「みそ漬」、原材料が1つで食塩と酢から作られる「酢漬」 (1 食品)
- d) 原材料が1つで食塩と酢、砂糖から作られる「甘酢漬」 (4 食品)

上記の a)~e) について、以下のように調理加工係数を推定した。

- a) 塩蔵前後の水分の重量と食塩の重量をもとに推定した。すなわち、塩蔵の過程で脱水し、水分が減少し、食塩が添加されると考えた。
- b) ぬかみそ漬：原材料と食塩の重量は、原材料が1つで食塩からなる塩蔵品と同様に推定し、米ぬかの重量はぬかみそ漬のビタミン B₁ の重量から推定した。
- c) みそ漬：原材料と食塩の重量は、原材料が1つで食塩からなる塩蔵品と同様に推定し、みその重量はみそ漬のたんぱく質の重量から推定した。
- d) 酢漬：原材料と食塩の重量は、原材料が1つで食塩からなる塩蔵品と同様に推定し、酢の重量は酢漬の炭水化物の重量から推定した。

発酵食品 (30 食品)

ここでの発酵食品は、アルコール発酵や酢酸発酵により作られ、日本食品標準成分表にアルコールの重量や酢酸の重量が掲載されている食品である。これらの発

酵により、原材料中の炭水化物の一部は、アルコール(エタノール)や酢酸に変化するが、アルコールや酢酸を作るのに必要なブドウ糖の量は知られているため、その値と原材料および発酵食品の炭水化物の重量を用いて調理加工係数を推定した。

原材料を組み合わせてできる食品(897食品)

原材料を組み合わせてできる食品には、日本食品標準成分表に原材料配合比が掲載されている食品(258食品)と掲載されていない食品(639食品)とがある。日本食品標準成分表に原材料配合比が掲載されている食品は、その配合比を用いて調理加工係数を推定した。

原材料配合比が掲載されていない食品は、一部の栄養成分は加工により変化しないと仮定し、(連立)方程式により調理加工係数を推定した。(連立)方程式に用いる栄養素は、加工によって変化しないと考えられること、原材料の成分含有率が多い栄養成分を中心に選定した。

③海外の残留農薬の規格基準の設定の際に議論されたデータの情報解析と残留農薬の摂取量の推定への応用(中村・山崎分担報告)

PF データの収集

WHO/FAOのホームページより、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

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。

トマト加工試験

トマトに農薬を散布し、商業的な加工を模した加工方法でトマトの juice, wet pomace 及び dry pomace を調製した。なお、本試験は加工試験に関する経済協力開発機構 (Organization for Economic Cooperation and Development, OECD) ガイドラインに準じて行った。

1) 農薬の選定

本加工試験の対象農薬として、我が国においてトマトに基準値が設定されており、かつ LC/MS による農薬等の一斉試験法I(農産物)の対象化合物のうち、 $\log K_{ow}$ が -0.13 から 5.55 、 W_s が 0.0015 から $26,000$ mg/L と幅広い物性を示す農薬 23 品目を選定した。次いで、選定した 23 品目について、 $\log K_{ow}$ が 2 未満を示すもの (7 品目)、2 以上 4 未満を示すもの (8 品目)、4 以上を示すもの (8 品目) の 3 群に分類し、各群から 1 品目を無作為に選出した。選出した boscalid, clothianidin 及び

fenpyroximate の 3 品目をテストデータ用の農薬とし、その他の 20 品目を訓練データ用の農薬とした。

2) トマトの栽培及び農薬散布

圃場におけるトマトの栽培及び農薬の散布は、一般社団法人日本植物防疫協会に委託した。試験には、対象農薬の防除履歴のないトマト (CF ハウス桃太郎) を用いた。定植後、週に 1~2 回程度、点滴灌水用チューブを用いて $4,000\sim 6,000$ L/10 a 灌水した。

1 区画あたり $1.5\text{ m} \times 10.0\text{ m} \times 2$ 畝の試験区を 4 区画用意し、それぞれ無処理区、処理区 A、B 及び C とした。各試験区におけるトマトの株数は 80 株であった。また、散布時の作物ステージは草丈 170 cm の収穫期であった。各処理区に散布機 (MSB1100Li, 丸山製作所) 及びノズル (狭角コーンノズル, 丸山製作所) を用いて農薬を散布した。散布回数はいずれも 2 回、散布間隔は 7 日とした。加工試験においては、加工食品で定量可能な残留濃度を得るために、農薬使用基準よりも多量の農薬を適用することが推奨されている。このことから本試験では、農薬使用基準の最小希釈倍数の $1/3$ の倍数、すなわち農薬使用基準の 3 倍の濃度の薬液を散布することとした。また、各農薬の使用基準における散布液量は、metalaxyl-M では $100\sim 400$ L/10 a、その他の農薬では $100\sim 300$ L/10 a 又は $150\sim 300$ L/10 a と定められていることから、多くの農薬の最大散布液量とほぼ同等の 280 L/10 a とした。すなわち、本試験においては、metalaxyl-M については農薬使用基準の 2.1 倍量を、その他の農薬については農薬使用基準の 2.8

倍量を散布した。

本試験では、複数の農薬を同時に、かつ農薬使用基準よりも高濃度で散布することにより、作物に毒性が現れる可能性が考えられた。そこで、選定した農薬 23 品目を 3 つのグループに分割し、処理区 A、B 及び C にそれぞれ散布した。処理区 A には、アクタラ顆粒水溶剤 [10.0% thiamethoxam 水溶剤、シンジェンタジャパン (東京)]、アドマイヤー水和剤 [10.0% imidacloprid 水和剤、バイエルクロップサイエンス (東京)]、バリアード顆粒水和剤 (30.0% thiacloprid 水和剤、バイエルクロップサイエンス)、アミスター20フロアブル (20.0% azoxystrobin 水和剤、シンジェンタジャパン)、シグナム WDG (6.7% pyraclostrobin / 26.7% boscalid 水和剤、BASF アグロ)、カスケード乳剤 [10.0% flufenoxuron 乳剤、BASF アグロ (東京)]、フェニックス顆粒水和剤 [20.0% flubendiamide 水和剤、日本農薬 (東京)] を、処理区 B にはアフェットフロアブル [20.0% penthiopyrad 水和剤、三井化学アグロ (東京)]、ベトファイター顆粒水和剤 [24.0% cymoxanil / 10.0% benthiavalicarb-isopropyl 水和剤、日本曹達 (東京)]、ダントツ水溶剤 [16.0% clothianidin 水溶剤、住友化学 (東京)]、モスピラン顆粒水溶剤 (20.0% acetamiprid 水溶剤、日本農薬)、ライメイフロアブル [17.7% amisulbrom 水和剤、日産化学 (東京)]、プレバソンフロアブル 5 [5.0% chlorantraniliprole 水和剤、エフエムシー・ケミカルズ (東京)]、マッチ乳剤 (5.0% lufenuron 乳剤、シンジェンタジャパン) を、処理区 C にはトリフミン水和剤 (30.0% triflumizole 水和剤、日本

曹達)、レーバスフロアブル (23.3% mandipropamid 水和剤、シンジェンタジャパン)、アグロスリン水和剤 (6.0% cypermethrin 水和剤、住友化学)、ニマイバー水和剤 (25.0% diethofencarb 水和剤、住友化学)、ランマンフロアブル [9.4% cyazofamid 水和剤、石原バイオサイエンス (東京)]、ダニトロンフロアブル (5.0% fenpyroximate 水和剤、日本農薬)、フォリオゴールド (3.3% metalaxyl-M 水和剤、シンジェンタジャパン) を散布した。分析対象の 23 品目以外にも、ニマイバー水和剤には 25.0% benomyl が、フォリオゴールドには 32.0% chlorothalonil が含まれていたが、両化合物は LC/MS による農薬等の一斉試験法I (農産物) の分析対象化合物でないことから、本試験では分析対象外とした。

農薬の最終散布から 3 日後に、各処理区より 20~22 個、重量として 3.2~3.3 kg のトマト検体を収穫した。検体の輸送及び保管は 4°C で行った。

3) トマトの加工

各処理区より収穫した検体のうち、2.6~2.7 kg (17~18 個) のトマトを加工に供した。いずれの処理区の検体も、収穫の 2 日後に加工を行った。RAC からの juice, wet pomace 及び dry pomace の調製方法は、German Federal Institute for Risk Assessment (BfR), National Institute for Public Health and the Environment (RIVM) 及び Benaki Phytopathological Institute (BPI) が示している代表的な加工方法に従った。

トマト果実よりへたを除去し、25°C に調整したトマト重量の 2 倍の水道水で 2 分間洗浄した。グラインドミックス GM

300 (Retsch GmbH, Haan, Germany) の逆回転モードを用いて 1000 rpm で 15 秒間磨砕した後、得られたマッシュをステンレス小型密閉容器に入れ、90~95°C で 3 分間加熱して hot break した。直径 0.8 及び 2.0 mm のメッシュフィルターを有するジュースャー (低速ジュースャーMJ-L600, パナソニック、大阪) で搾汁し、85~90°C で 3 分間低温殺菌して juice を得た。搾汁して得られた wet pomace の一部を分析用に採取した後、70°C で 24 時間乾燥させることにより dry pomace を得た。Dry pomace の水分含有量は、水分計 (MOC63u, 島津製作所、京都) により測定した。

なお、RAC は、我が国の残留農薬分析においてトマトの検体部位として定められている「へたを除去したもの」とした。得られた RAC, juice, wet pomace 及び dry pomace は、分析まで-30°C で保管した。

4) 残留濃度分析

RAC, juice, wet pomace 及び dry pomace における各農薬の残留農薬分析は、LC/MS による農薬等の一斉試験法I (農産物) を一部改変して行った。

① 試薬・試液

Acetamiprid 標準品、benthiavalicarb-isopropyl 標準品、cymoxanil 標準品及び triflumizole 標準品、試験溶液の調製に用いた残留農薬試験用アセトニトリル、トルエン及びメタノール、及び LC-MS 用蒸留水及びメタノールは関東化学 (東京) より購入した。Amisulbrom 標準品、azoxystrobin 標準品、boscalid 標準品、chlorantraniliprole 標準品、clothianidin 標準品、cyazofamid 標準品、cypermethrin 標準

品、diethofencarb 標準品、fenpyroximate 標準品、flubendiamide 標準品、flufenoxuron 標準品、imidacloprid 標準品、lufenuron 標準品、mandipropamid 標準品、metalaxyl-M 標準品、penthioopyrad 標準品、pyraclostrobin 標準品、thiacloprid 標準品、thiamethoxam 標準品、残留農薬試験用塩化ナトリウム及びケイソウ土 (No. 545) は富士フィルム和光純薬 (大阪) より購入した。その他の試薬については、市販のものを使用した。

各農薬 10 mg を精秤し、アセトニトリル 10 mL に溶解して 1 mg/mL 標準原液を調製した。アセトニトリルへの溶解性が低い場合には、メタノール又はアセトンに溶解して調製した。添加回収試験用の混合標準溶液は、各農薬の標準原液を混合し、濃縮又はアセトニトリルで適宜希釈して調製した。

② 試料の調製

RAC は、包丁で果実を 2 等分した後、GM 300 の正回転モードを用いて 4,000 rpm で 30 秒間磨砕した。Wet pomace 及び dry pomace は、液体窒素で凍結させた後、マルチビーズショッカー (安井器械、大阪) を用いて 2,000 rpm で 30 秒間凍結粉砕した。

③ 試験溶液の調製

A. 抽出

RAC 及び juice においては、試料 20.0 g にアセトニトリル 50 mL を加え、1 分間ホモジナイズした後、ケイソウ土をろ過助剤として吸引ろ過した。残留物を採り、アセトニトリル 20 mL を加えて 1 分間ホモジナイズした後、吸引ろ過した。得られたろ液を合わせ、アセトニトリルを加え

で正確に 100 mL とした。Wet pomace 及 dry pomace においては、試料 2.00 g に水 5 mL を加え、30 分間静置した。これにアセトニトリル 50 mL を加え、1 分間ホモジナイズした後、ケイソウ土をろ過助剤として吸引ろ過した。残留物を採り、アセトニトリル 20 mL を加えて 1 分間ホモジナイズした後、吸引ろ過した。得られたろ液を合わせ、アセトニトリルを加えて正確に 100 mL とした。

RAC においては抽出液 10 mL、juice 及び wet pomace においては抽出液 20 mL、及び dry pomace においては抽出液 5 mL を分取した。次いで、RAC 及び dry pomace のみ、10 及び 15 mL のアセトニトリルを加えた。これに塩化ナトリウム 10 g 及び 0.5 M リン酸緩衝液 (pH7.0) 20 mL を加えて 10 分間振とうした後、3,000 rpm で 5 分間遠心した。得られたアセトニトリル層を 40°C 以下で濃縮して溶媒を除去した後、残留物をアセトニトリル及びトルエン (3:1) 混液 2 mL に溶解した。

アセトニトリル及びトルエン (3:1) 混液 10 mL でコンディショニングしたグラフィートカーボン/アミノプロピルシリル化シリカゲル積層ミニカラム (500 mg/500 mg、ジーエルサイエンス、東京) に上記の溶解液を注入した後、アセトニトリル及びトルエン (3:1) 混液 20 mL を注入した。全溶出液を 40°C 以下で濃縮して溶媒を除去した後、残留物をメタノールで溶解し、RAC, juice 及び wet pomace においては正確に 10 mL としたものを、及び dry pomace においては正確に 5 mL としたものを試験溶液とした。各試験溶液は、定量範囲を考慮して適宜希釈した上

で測定に供した。

④ LC-MS/MS 分析

各農薬の分析は、LC-MS/MS により行った。LC-MS は、Nexera X3 / LC400D X3 送液ユニット (島津製作所)、SIL-40CX3 オートサンプラー (島津製作所) 及び LCMS-8060NX (島津製作所) を用いた。得られたデータは LabSolutions (島津製作所、ver. 5.113) 及び LabSolutions Insight LCMS (島津製作所、ver. 3.8.351.3) を用いて解析した。メタノールで調製した検量線用試料の各濃度に対するピーク面積値をプロットして検量線を作成し、絶対検量線法により濃度を求めた。

ガードカラム及び分析カラムは ACQUITY UPLC BEH C18 VanGuard Pre-Column (1.7 μ m, 2.1 mm x 5 mm, Waters, Milford, USA) 及び ACQUITY UPLC BEH C18 Column (1.7 μ m, 2.1 mm x 100 mm, Waters) を用い、注入量は 3 μ L とした。カラムオープンの温度は 40°C、流速は 0.3 mL/分とした。移動相は溶離液 A (5 mM 酢酸アンモニウム水溶液) 及び溶離液 B (5 mM 酢酸アンモニウムメタノール溶液) の混合溶媒を用いた。グラジエント条件は 0~0.5 分を 15~40%溶離液 B の直線グラジエント、0.5~1.75 分を 40%溶離液 B、1.75~3 分を 40~50%溶離液 B の直線グラジエント、3~4 分を 50~55%溶離液 B の直線グラジエント、4~8.75 分を 55~95%溶離液 B の直線グラジエント、8.75~15 分を 95%溶離液 B とした。

イオン化モードはエレクトロスプレーイオン化 (electrospray ionization, ESI) positive 又は negative モードとし、selected reaction monitoring (SRM) モードで測定を

行った。各農薬の検出及び定量は、Table 2 に示した定量イオン及び確認イオンをモニターすることにより行った。ESI positive モードにおけるキャピラリー電圧は、cypermethrin においては 1.5 kV、その他の農薬においては 1 kV とした。また、ESI negative モードにおけるキャピラリー電圧は、flubendiamide 及び lufenuron においてそれぞれ-1 及び-2 kV とした。インターフェイス温度及び脱溶媒温度は 250°C、ヒートブロック温度は 350°C、ネブライザーガス流量は 3 L/分、ドライイングガス流量は 10 L/分、及びヒーティングガス流量は 15 L/分とした。

⑤ PF の計算

Juice, wet pomace 及び dry pomace における各農薬の残留濃度を RAC における残留濃度で除すことにより、各加工食品における PF を算出した。

農薬の物性値の収集

The Pesticide Manual Online 及び JMPR の評価書及び報告書より、各農薬の分子量 (molecular weight, Mw)、 K_{ow} 、 W_s (mg/L, 20~25°C)、比重 (specific gravity, Sg)、融点 (melting point, Mp, °C)、ヘンリー定数 [Henry's constant (Hc, Pa·m³/mol)] 及び蒸気圧 (vapor pressure, Vp, mPa) を収集した。

データ解析

データ解析は、R ソフトウェア及び JMP ソフトウェア (SAS Institute Japan, 東京) を用いて行った。JMPR の PF データ解析において、1 品目の農薬について複数の PF が得られている場合には、PF の中央値を解析に供した。また、各農薬の Mp はケ

ルビン温度に変換した上で解析に供した。

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。

PF 予測モデルの構築は、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及び正則化回帰法 elastic net により行った。Elastic net 回帰においては、平均二乗誤差を最小にする最適な α 及び λ をクロスバリデーションにより決定した後に回帰式の推定を行った。得られた回帰式における多重共線性は、各説明変数の variance inflation factor (VIF) を求めることにより評価した。

確立した PF 予測モデルの性能は、PF の実測値及び予測値を比較することにより評価した。実測値に対する予測値の比が 0.50~2.00 を示した農薬の割合、すなわち予測値が実測値の 2 倍以内の値を示した農薬の割合を、%inside 2-fold として算出した。

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, ggplot2, ggpubr, tidyr, tidyverse, glmnet, useful 及び car を使用した。

C. 研究結果、考察、および結論

①加工食品の摂取状況を把握するための全国食事調査のデータ解析 (佐々木分担報告)

研究 1 では、全国食事調査の結果をもとに、食品と食品群摂取量の分布を明らか

にした。食事記録調査の結果に関しては、砂糖および甘味類・油・調味料・小麦粉を摂取した場合、参加者は原則として秤量をせず名称のみを記入し、調査事務局にて摂取量の推定を行った。そのため、これらの食材に関しては秤量が行われた他の食材と比べて推定精度が低い可能性がある。

研究 2 の結果より、加工食品の分類方法に関しては、NOVA 分類は栄養政策の決定や疫学研究に広く用いられている一方で、食品の定義や分類に一貫性がないという問題点があることを認識した。

また、日本人の **ultra-processed foods** の摂取状況に関する研究は 2 つしかなく、その調査集団の人数と居住地域が限定的であることから、より代表性の高い集団における大規模な食事調査の結果に基づいて日本人における加工食品の摂取量を明らかにすること、またそれらと健康関連指標との関連を検討することは喫緊の課題であると考えられた。また、NOVA の分類では日本でよく食べられるような食品の分類は例示されておらず、日本における先行研究はいずれも同じ研究グループによるものである。したがって、日本人の食事に登場する食品を加工の程度に応じてどのように分類するか、何を加工食品として分類するかという点は今後の研究課題であると考えられた。

研究 3 では、本研究では食品を加工レベルに応じて分類するためのシステムを構築し、その方法について記述するとともに、日本人集団における加工食品の重量・エネルギー寄与率を調べた。加工食品の分類方法による違いをみると「高度な

加工」食品のエネルギー寄与率は方法 A で 48%、方法 B で 33%であり、方法 A において高かった。方法 A では商品情報がない既製の料理を分解せずそのまま「高度な加工」に分類する一方、方法 B では食品レベルまで分解して分類するため、この結果は当然といえる。どちらの方法がよいかどうかは現時点では不明だが、方法により「高度な加工」食品の摂取量の見積もりに 15%の差が出る点は、加工食品の摂取量を推定したり、異なる調査間でデータを比較したりする際に考慮する必要がある。

本研究と同じ UNC の分類システムを使用した先行研究（2012 年に米国で行われた世帯を対象とした食品購入状況調査 (4)）では、高度な加工食品のエネルギー寄与率は 61%であった。よって、方法によらず、日本人における「高度な加工」食品のエネルギー寄与率はかなり米国に比べて低いレベルであることが明らかになった。

性別間で比較すると、「高度な加工」食品の重量寄与率は男性のほうが高い一方で、エネルギー寄与率は女性のほうが高かった。これは、女性のほうがエネルギー密度の高い「高度な加工」食品をより多く摂取しているためと考えられる。

また、60 歳以上の高齢なグループは、より年齢の若いグループと比べて「高度な加工」食品の重量・エネルギー寄与率が低かった。さらに、喫煙歴のないグループは現在喫煙しているグループに比べて「高度な加工」食品の重量・エネルギー寄与率が低かった。我々の知る限り、日本人集団において、こうした参加者の特性による

加工食品の摂取量の違いはこれまで報告されていない。加工食品による健康影響や、添加物や農薬の摂取量は属性によって異なると考えられるため、今後検討が必要であると考えられた。

研究 4 では、海外の食事調査法について調査を行った。その結果、詳細な食事データを得られる方法である 24 時間思い出し法と食事記録法が広く用いられていることが示唆された。

複数の食事調査法を組み合わせで使用している調査が全体の 4 割程度存在した。これらの調査ではそれぞれの調査法からの推定摂取量を比較することで、精度向上につなげていた。日本では食事記録法のみを使用し、一日のみの調査のため、食事の日間変動や調査方法による推定摂取量の差異が考慮されていない。日本の国民健康・栄養調査が世帯対象で 1 日のみの調査であることは、データを各国の食事調査との直接的な比較を困難にするだけでなく、科学的に不十分とみなされ国際学術誌に論文を掲載するにあたってのハードルになる可能性があり、今後の検討課題であると考えられた。

2016 年から 2019 年にかけて実施された食品摂取頻度・摂取量調査は、詳細な食事記録調査を 4692 人に対して各季節 2 日間、合計 8 日間行った大規模な全国食事調査である。この食品摂取頻度・摂取量調査と、今回レビューに含めた食事調査のなかで 24 時間思い出し法と食事記録法を行っていた 47 の調査（国民健康・栄養調査を含む）について、参加者数と調査日数を解析した。その結果、食品摂取頻度・摂取量調査の参加者数・調査実施期間は、各

国の調査の中でも参加者数と調査日数ともに上位にあった。これは、全国から参加者を募っているために代表性が高く、全国の管理栄養士の協力の下、標準的かつ丁寧な手法で食事記録とデータ整理を行ったという方法的利点のためであることが考えられた。これらのことから、食品摂取頻度・摂取量調査から得られたデータは、基礎データとして世界の食事調査に比肩するものであり、食事中の化学物質に関する政策決定にとどまらず、様々な目的の健康・栄養行政に広く資するものであると考えられた。

研究 5 と研究 9 では、日本人成人において 1 日の総摂取エネルギー量のうち超加工食品から摂取するエネルギーの割合は、少なく見積もると 28%、多く見積もると 48%であることが明らかになった。諸外国における超加工食品からのエネルギー寄与割合は、食生活の違いだけでなく超加工食品の分類方法や食事調査方法の違いによりばらつきがあるが、本研究で得られた値はイタリアより高く (17%)、英国 (53%) やカナダ (54%)、米国 (59%) より低い一方で、日本の小規模な先行研究 (38%) や、ブラジル (24%)、韓国 (26%)、チリ (29%)、メキシコ (30%)、フランス (36%)、オーストラリア (39%) などで行われた研究と同程度であった。

また、研究 1 において観察された、超加工食品の摂取量と食事の質との負の関連は、他の多くの国でも一貫して観察されている。さらに超加工食品の摂取過多は、過体重や肥満、心血管疾患や脳血管疾患、メタボリックシンドローム、うつ病、死亡率などの健康上の不利益につながる可能

性があるため、注意を要する。

研究7および8では、超加工食品の摂取に関わる個々人の内的・外的要因を明らかにした。研究7では、食品選択の価値観や食品リテラシーに関するいくつかの因子が超加工食品の摂取と関連するとともに、関連する因子は男女で異なることが示唆された。これらの知見は、超加工食品の摂取に関する栄養政策を検討する際に重要であると考えられる。また、研究8の結果より、超加工食品の摂取量を減らすための介入戦略において、若年層と現在喫煙している人々をターゲットにすることが有効であるかもしれない。

研究5では、残留農薬等の基準値が設定されている食品リストに記載された食品分類名のうちおよそ6分の1が、食品成分表に記載された食品番号のいずれに当てはまらなかった。また、約7割の食品が2つ以上の食品番号と紐付けられた。1対1対応にならないのは、残留農薬等の基準値が設定されている食品リストと成分表で、食品の分類や名称が大きく異なるためと考えられる。ある食品番号を付与すべきか判断の難しい食品分類名も多かったため、食事データから残留農薬の摂取量を解析できるようにするためには今後さらなる検討が必要であると考えられる。

②調理加工係数の問題点の把握（吉池分担報告）

1) 初年度（令和2年度）

①日本食品標準成分表の成分値が、計算値で示されている加工食品

「くし団子・みたらし」(食品番号 15019)

を例として説明する。食品群別留意点に、「製品部分割合：団子9、たれ2、原材料配合割合：団子〔上新粉100〕、たれ〔砂糖（上白糖）95、こいくちしょうゆ54、じゃがいもでん粉14〕」と示されている。したがって、製品部分割合、原材料配合割合を用いた場合、くし団子・みたらし100gを作るのに必要な上新粉は

$$\frac{9}{9+2} \times 100 = 81.8\text{g}$$

砂糖（上白糖）は

$$\frac{2}{9+2} \times \frac{100}{100+54+14} \times 100 = 10.8\text{g}$$

こいくちしょうゆは

$$\frac{2}{9+2} \times \frac{54}{100+54+14} \times 100 = 5.8\text{g}$$

じゃがいもでん粉は

$$\frac{2}{9+2} \times \frac{14}{100+54+14} \times 100 = 1.5\text{g}$$

と求められた。

② 日本食品標準成分表の成分値が、計算値で示されていない加工食品

②—1 加工食品の主な原材料が1つであり、加工により成分値が大きく変化しないと仮定できる成分値がある場合

たとえば、「豆乳」（食品番号 04052）の主な原材料は、大豆である。豆乳類の日本農林規格は、大豆たんぱく質含有率により定められている。豆乳100gのたんぱく質3.6gであり、大豆100gのたんぱく質33.8gであることから、豆乳100gを作るのに必要な大豆は $3.6 \times 100 / 33.8 = 10.7\text{g}$ と推定された。

②—2 加工食品の主な原材料が複数の食品であり、加工により成分値が大きく

変化しないと仮定できる成分値がある場合

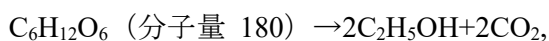
たとえば、ぶどう豆の主な原材料は、大豆、砂糖（上白糖）、こいくちしょうゆである。ぶどう豆 100g の原材料を大豆 x (g)、砂糖 y (g)、しょうゆ z (g) とすると、ぶどう豆 100g のたんぱく質 14.1g、炭水化物 37.0g、食塩相当量 1.6g であり、大豆 100g のたんぱく質 33.8g、炭水化物 29.5g、食塩相当量 0.0g であり、砂糖 100g のたんぱく質 0.0g、炭水化物 99.3g、食塩相当量 0.0g であり、しょうゆ 100g のたんぱく質 7.7g、炭水化物 7.9g、食塩相当量 14.5g であるから

$$\frac{1}{100} \begin{bmatrix} 33.8 & 0.0 & 7.7 \\ 29.5 & 99.3 & 7.9 \\ 0.0 & 0.0 & 14.5 \end{bmatrix} \begin{bmatrix} x \\ y \\ z \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} 14.1 \\ 37.0 \\ 1.6 \end{bmatrix}$$

が成り立ち、 $x=27.1$ 、 $y=28.6$ 、 $z=8.3$ と求められた。

②-3 加工により成分が化学変化する場合、その化学変化が化学反応式として表される場合

たとえば米酢の主な原材料は水稻穀粒・精白米・うるち米である。



から、酢酸 60g を作るのに必要なブドウ糖は $180 \div 2 = 90g$ であることから、米酢 100g 中の米に由来する炭水化物は

$$7.4 + 4.4 \times \frac{90}{60} = 14.0g$$

となる。したがって、米 100g の利用可能炭水化物は 83.1g であるので、米酢 100g を作るのに必要な米は

$$14.0 \times \frac{100}{83.1} = 16.8g$$

と推定された。

2) 第2年度（令和3年度）

①日本食品標準成分表に原材料配合割合が記載されている食品

日本食品標準成分表に原材料配合割合が記載されている食品は、穀類で 18 食品、卵類で 3 食品、菓子類で 114 食品、調味料及び香辛料類で 33 食品であった。

②乾燥食品

日本食品標準成分表に、乾燥させる前の食品、すなわち生の食品と乾燥させた後の食品の両方が掲載されている食品は、いも類で 1 食品、野菜類で 5 食品、果実類で 5 食品、きのこ類で 2 食品、藻類で 1 食品、魚介類で 13 食品であった。

干物では、製造過程でたんぱく質や脂質が変化することが知られている。そこで、乾燥食品と原材料的食品の水分に着目して、乾燥食品を製造するのに必要な原材料的食品の重量を推定した。水分 a (%)の原材料的食品が w (g)脱水し、水分 b (%)の乾燥食品 100g になったとすると

$$\frac{a}{100} = \frac{b + w}{100 + w}$$

から

$$w = \frac{100(a - b)}{100 - a}$$

となり、乾燥食品 100g を製造するのに必要な原材料的食品は

$$100 + w = \frac{100(100 - b)}{100 - a} \text{ (g)}$$

と求められた。

③塩蔵食品

塩蔵食品の計算手順は以下のようにな

る。水分 $a(\%)$ の原材料的食品が、 $w(\text{g})$ 脱水し、食塩 $s(\text{g})$ 移行し、水分 $b(\%)$ の塩蔵食品 100 g になったとすると

$$\frac{a}{100} = \frac{b + w}{100 + w - s}$$

から

$$w = \frac{100(a - b) - as}{100 - a}$$

となり、したがって、塩蔵食品 100 g を製造するのに必要な原材料的食品は

$$100 + w - s = \frac{100(100 - s - b)}{100 - a} (\text{g})$$

と求められた。

日本食品標準成分表に掲載されている食品で、塩蔵食品に該当する食品は、野菜類で 16 食品、果実類で 3 食品、魚介類で 29 食品、肉類で 4 食品であった。

塩蔵食品における推定方法を応用できる、ぬかみそ漬は 7 食品、酢漬は 1 食品、粕漬は 2 食品、こうじ漬は 2 食品、甘酢漬は 4 食品、しょうゆ漬は 1 食品、みそ漬は 1 食品があり、いずれも野菜類であった。

ぬかみそ漬の主な原材料は野菜、食塩、米ぬかであり、酢漬は主な原材料は野菜、食塩、酢であり、粕漬の主な原材料は野菜、食塩、酒かすであり、こうじ漬は主な原材料は野菜、食塩、米こうじである。ぬかみそ漬の野菜と食塩の重量は塩蔵食品と同様に計算し、米ぬかの重量は増加したビタミン B_1 の量、酢漬、粕漬、こうじ漬の野菜と食塩量は塩蔵食品と同様に計算し、酢、酒かす、米こうじの重量は増加した炭水化物の量から推定した。

甘酢漬の主な原材料は野菜、食塩、食酢、砂糖である。甘酢漬の野菜と食塩量は塩

蔵食品と同様に計算し、砂糖の重量は増加したしょ糖の量から推定し、食酢の重量は増加した炭水化物が食酢と砂糖に由来すると仮定の下、推定した。

しょうゆ漬の主な原材料は野菜、食塩、しょうゆ、砂糖であり、みそ漬の主な原材料は野菜、食塩、みそ、砂糖である。しょうゆ漬、みそ漬の野菜の重量は塩蔵食品と同様に計算し、しょうゆ、みその重量は増加したたんぱく質の量から推定し、食塩の重量は増加した食塩相当量がしょうゆまたはみそと食塩に由来するとして推定し、砂糖の重量は増加した炭水化物がしょうゆまたはみそと砂糖に由来するとして推定した。

④アルコール発酵、酢酸発酵によって製造する食品

アルコール発酵、酢酸発酵によって製造する食品に該当する食品は、嗜好飲料類で 11 食品、調味料及び香辛料類で 6 食品であった。

アルコール発酵の主反応は $\text{C}_6\text{H}_{12}\text{O}_6 \rightarrow 2\text{C}_2\text{H}_5\text{OH} + 2\text{CO}_2$ 、酢酸発酵の主反応は $\text{C}_2\text{H}_5\text{OH} + \text{O}_2 \rightarrow \text{CH}_3\text{COOH} + \text{H}_2\text{O}$ であり、ブドウ糖、エタノール、酢酸の分子量はそれぞれ 180、46、60 であるので、加工食品 100 g に含まれるエタノールが $a(\text{g})$ のとき、原材料的食品に由来するブドウ糖は $a/46 \times 1/2 \times 180 = 45/23 a(\text{g})$ となる。また、加工食品 100 g に含まれる酢酸が $b(\text{g})$ のとき、原材料的食品に由来するブドウ糖は $b/60 \times 1/2 \times 180 = 3/2 b(\text{g})$ となる。その後の計算は、5. その他の加工食品と同様である。

しかし実際には、アルコール発酵中に酵母菌が増殖するためにブドウ糖が約 20%消

費され、ブドウ糖 1 kg から得られるエタノールは約 0.42 kg であるとされる。また、酢酸発酵でも、発酵中に酢酸菌が消費する他エタノールとして残存する分もあり、1 kg のエタノールから約 1 kg の酢酸が生成されるとされる。加工食品 100 g に含まれるエタノールが a(g) のとき、原材料的食品に含まれるブドウ糖は 2.38a(g) となる。また、加工食品 100 g に含まれる酢酸が b(g) のとき、原材料的食品に含まれるブドウ糖は 2.38b(g) となる。

⑤その他の加工食品

うどんの原材料は、中力粉と食塩である。うどん 100 g の中力粉、食塩の重量をそれぞれ x(g)、y(g) とすると、うどん 100 g の炭水化物は 56.8 g、食塩相当量 2.5 g であり、中力粉 100 g の炭水化物 75.1g、食塩相当量 0.0g であり、食塩 100 g の炭水化物は 0.0 g、食塩相当量 99.5 g であるから、連立方程式として

$$\frac{1}{100} \begin{bmatrix} 75.1 & 0.0 \\ 0.0 & 99.5 \end{bmatrix} \begin{bmatrix} x \\ y \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} 56.8 \\ 2.5 \end{bmatrix}$$

が成り立つ。これを解くと x=75.6 g, y=2.5 g と求まる。この方法では、原材料の数と同じ数だけ栄養素等の成分値が必要となる。

3) 最終年度 (令和 4 年度)

日本食品標準成分表 2020 年版 (八訂) に掲載されている 2478 食品のうち、調理済み流通食品群に該当する 50 食品を除外した 2428 食品について、調理加工係数の推定を試みた。928 食品 (38%) が未調理・未加工の食品、487 食品 (20%) が調理後食品、1013 食品が加工食品であった。

1013 の加工食品のうち、乾燥食品に該当する食品が 43 食品、塩蔵品に該当する食品が 35 食品、発酵食品に該当する食品が 40 食品であった。また、原材料を組み合わせることができる食品で日本食品標準成分表に原材料配合比が掲載されている食品が 258 食品、掲載されていない食品が 637 食品であった。

原材料を組み合わせることができる食品で日本食品標準成分表に原材料配合比が掲載されていない食品のうち、日本食品標準成分表に原材料が掲載されていない、原材料の食品が多すぎる、加工工程が複雑であることにより、105 食品は調理加工係数を推定することができなかった。

本研究で推定した調理加工係数の限界として、2 点考えられる。まず、日本食品標準成分表に掲載されている栄養成分値を用いて推定したことである。そのため、加工食品の原材料となる食品を日本食品標準成分表に掲載されている食品から選択したが、加工食品に用いられる品種とは異なっている可能性がある。品種が異なることで、栄養成分値が異なり、それに伴い調理加工係数の値が異なってくる可能性がある。また、組み合わせることができる食品で原材料配合比が掲載されていない食品は、加工により栄養成分値が変化しないと考えられる栄養成分を用いて計算していることである。計算に用いる栄養成分の選定についても検討する必要がある。

欧州食品安全機関 (European Food Safety Authority; EFSA) は raw primary commodity model を提唱し、加工食品の調理加工係数を示している。今後は、我々が推定した調理加工係数と欧州食品安全機関が提唱し

ている調理加工係数について、推定根拠も含め比較及び検証する必要がある。

③海外の残留農薬の規格基準の設定の際に議論されたデータの情報解析と残留農薬の摂取量の推定への応用(中村・山崎分担報告)

本分担研究では、JMPR ならびに JMPS から公開されている報告書や評価書を参照し、これまでに議論されてきた農薬(合計 407 種類)の PF 値のデータを文章と表中から収集し、データの解析を行った。PF 値に関しては、特に欧米の食品を中心に議論される傾向にあった。本研究では、海外への輸出が期待される日本産の果実(ブドウ、リンゴ、トマト)の加工食品に関するデータの解析を行った。ジュースならびに搾りかす中の PF については、農薬の水への溶解性を表すような溶解度や、生物への浸透率を示すような logKow(水/1-オクタノール分配係数)との比例関係が示唆され、各々の農薬の物性値と PF 値の関係性を明らかにすることができた。

残留農薬の PF 値に関しては、これまでに JMPR ならびに JMPS で議論された作物は約 140 種類であった。その中には、国内であまり食されないが、西洋で食されるような地中海北部原産のものや沿岸原産のもの(例えば、コールラビやリーキといった野菜)について多く議論がなされている一方で、日本国内で食されるような小豆、モチ米、白菜、水菜などの報告は少ない傾向であることが分かった。

加工形態に関しては、約 740 種類の加工形態が議論されていた。報告されていた加工形態としては、Tier2 に分類されるよ

うな簡単な熱などの急激な物理的加工や添加物を加えた状態の段階(例えばジュース、ジャム、ペーストなど)で、文化的な背景や調理法によって加工形態が複雑になるような Tier3 に属する加工食品(例えば、ピザ、ラザニア、スパゲティなど)に関する PF の報告は、圧倒的に少ないことが示唆された。Tier3 の加工食品は、PF 値が 1 以下になる傾向があるのに対して、加工・調理の過程が少ない加工食品(Tier1,2)は、PF 値が 1 以上になる農薬が多く報告される傾向にあることが判った。

PF 値は、作物残留試験のために試験農場での決まった農薬の散布方法・濃度・散布回数等のあらかじめ決められた手順に従って栽培され、その後、収穫、調理加工され、残留農薬が定性・定量的に分析後算出される。特に、農薬申請企業からは、PF 値が 1 以上になるような作物と調理・加工が選択され、実験的に数値を算出することが求められる。ブドウ、リンゴ、トマトなどの果実については、「juice」、「wet pomace」、「dry pomace」の 3 種類の食品に分類して、それぞれの作物と加工形態に属する PF の数値を収集し、データを解析した。その結果、「Dried pomace」と「Wet pomace」に関しては、PF と logKow に正の比例関係、「Juice」に関しては PF と logKow に負の比例関係にあることが判り、PF と溶解度は、逆に「Dried pomace」と「Wet pomace」に関しては、PF と logKow に負の比例関係、「Juice」に関しては PF と logKow に正の比例関係にあることが示唆された。

以上の結果から、特に調理・加工時の工

程が複雑でないような食品に関しては、各々の農薬について作物残留試験や残留濃度を分析・測定は必要なく、加工形態がシンプルであれば、各農薬の物性値から PF 値を予測可能であることが示唆された。

次に、JMPR 及び本研究で実施したトマト加工試験の PF データを詳細に解析することにより、トマトの juice, wet pomace 及び dry pomace における PF と農薬の物性値の関連性を明らかにした。また、PF を目的変数、PF と相関が認められた農薬の物性値を説明変数として、正則化回帰法 elastic net を用いた PF 予想モデルを確立した。さらに、トマト加工試験のデータを基に確立した PF 予測モデルについて、モデルの予測性能を評価した。

PF との間に有意な相関が認められた物性値を説明変数として、重回帰分析による PF 予測モデルの確立を試みた。しかし、重回帰分析により得られた回帰式においては、多重共線性が認められることが明らかとなった。そこで、正則化回帰法 elastic net による PF 予測モデルの構築を試みたところ、各説明変数の VIF が 5.3 以下を示す回帰式が得られた。これらの結果から、elastic net を用いることにより、多重共線性を回避した上で PF 予測モデルを構築できることが示唆された。過去の報告において、りんごの juice における農薬の PF を Kow 及び土壌吸着定数 (organic carbon partition coefficient, Koc) により説明する回帰式が確立されているが、この研究において、多重共線性は考慮されていない。したがって、本研究で開発した PF 予測モデルは、多重共線性を克服した上で、農薬の物性値に基づいて PF を予

測可能な初めてのモデルであると言える。

トマト加工試験の PF データから得られた PF 予測モデルについて、PF の実測値及び予測値を比較することにより、モデルの予測性能を評価した。juice, wet pomace 及び dry pomace のいずれにおいても、%inside 2-fold は訓練データ用の農薬 20 品目において 80~95%、テストデータ用の農薬 3 品目において 100%を示した。テストデータ用の農薬数が 3 品目と限られているため、予測性能の詳細については今後さらなる検証が必要ではあるものの、本研究で開発した PF 予測モデルは、一定の精度をもって PF を予測可能であると考えられた。本モデルを活用することにより、PF が未知の農薬についても、煩雑な加工試験を都度行うことなく、農薬の物性値に基づいて PF を予測できると期待される。

Elastic net により JMPR の PF データから得られた回帰式のうち、juice の回帰式における R^2 は 0.085 と低値を示し、JMPR のデータセットにおいては、juice について PF 予測モデルを構築することは困難であると考えられた。この原因として、各農薬間で①農薬の最終散布から収穫までの期間 (pre-harvest interval, PHI) が異なる、②加工の詳細な条件が異なる等の要因が考えられる。特に①について、果皮から果実内部への農薬の浸透は農薬の性質及び時間に依存することが報告されていることから、各データ間で PHI が異なることにより、主に果肉に由来する juice の残留濃度にはばらつきが生じると考えられる。また、②についても、加工試験における食品の加工方法はできる限り

「industrial or domestic practices」を模すこととされているが、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。JMPRのPFデータにおいては、同一の農薬及び加工形態内でもPF値にばらつきが認められる場合があり (data not shown)、この一因としても、試験間でPHI及び加工方法が統一されていないことが挙げられる。実際に、PHI及び加工方法が同一のトマト加工試験のデータにおけるjuiceの回帰式の R^2 は0.604を示し、wet pomace及びdry pomaceについても、回帰式の R^2 はJMPRのデータに比較して高値を示した。さらに、過去の報告において、りんごに複数の農薬を散布し、juiceにおける各農薬のPFを同一加工条件下で算出した結果、Kow及びKocを説明変数とした $R^2 = 0.702$ の重回帰モデルが得られることが示されている。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、pKowを説明変数とした $R^2 = 0.8522$ の単回帰モデルが得られることも示されている。以上より、PF予測モデルの構築においては、PHIや加工方法を統一、又は各条件の違いを考慮したデータを用いることが重要と考えられた。

本研究で行ったトマト加工試験の対象農薬は、我が国においてトマトに基準値が設定されており、かつLC/MSによる農薬等の一斉試験法I (農産物)の対象化合物から選定された。すなわち、一般的にGC/MSにより分析される農薬は解析に含まれていない。GC/MSで分析される農薬は揮発性が高いことから、加工過程に含

まれる加熱操作において揮散し、揮発性の低い農薬と異なる挙動を示す可能性が高い。揮発性の高い農薬についても本モデルのコンセプトを適用可能か否かについては、さらなる検討が必要である。また、本研究においては、解析に投入した農薬の物性値は、いずれもその値が一意に示されているパラメーターのみとした。過去の報告においてPF予測の説明変数として用いられているKoc及びPFとの関連性が報告されている加水分解性及び熱分解性については、一意の値が示されていない、又は一部の農薬でデータが欠損していたことから、解析に投入することができなかつた。今後、これらの物性値についても解析に含めることにより、PF予測モデルの予測性能はさらに向上するものと期待される。また、加工操作の試行回数や訓練データ用の農薬の数を増やすことも、モデルの改良に有効かもしれない。

本研究では、トマトのjuice, wet pomace及びdry pomaceを対象食品として解析を行った。他の作物及び加工食品についても同様のPF予測モデルを確立することができれば、「農薬の物性値に基づいてPFを予測する」コンセプトの有用性はさらに高まるものと考えられる。我が国では、MRLの設定にあたって、加工試験は要求されていない。この背景から、海外で加工試験の実施が少なく、かつ日本では主要な加工食品、すなわち米、茶等由来の加工食品については、PFに関する情報が限られているのが現状である。これらの加工食品におけるPF予測モデルの適用可能性を明らかにすることができれば、我が国における残留農薬のリスク管理及びリ

スク評価や、日本産の加工食品の輸出拡大の一助となると期待される。また、EUの PF データベース及び OECD ガイドラインにおいては、類似の作物及び加工方法への PF の外挿可能性について議論がなされている。本研究により確立されたトマトの juice, wet pomace 及び dry pomace おける PF 予測モデルの他の作物及び加工食品への外挿可能性についても、今後さらなる検証を行いたい。

本研究でその一部を示したように、加工試験に求められるデータは膨大であり、試験の実施には多大な費用、時間及び手間を要する。国際的には、PF を用いてより詳細な暴露評価を行うことがトレンドとなっているが、我が国の農薬使用基準に従って全ての作物、加工食品及び農薬について PF を取得し、新たに PF データベースを構築することは現実的ではない。我が国では、EU のデータベース等を活用することを念頭に、諸外国で広く PF データが得られている作物及び農薬については、加工方法及び作物間の外挿可能性の解明に注力すべきと考える。一方で、海外で加工試験の実施が少なく、かつ日本では主要な加工食品のうち、特に喫食量の多い加工食品又は PF が高値を示す加工食品については、我が国において加工試験の実施を考慮する必要がある。加工試験を行うにあたっては、EU のデータベースにおいて *representative processed techniques* が示されているように、加工方法の詳細について情報を収集及び整理することも重要と考えられる。

D. 健康危険情報

なし

E. 研究発表

各分担研究報告欄に記載した。

F. 知的財産権の出願・登録状況

なし