

京都府におけるマーケットバスケット調査方式による 食品残留農薬等一日摂取量実態調査

大藤 升美 茶谷 祐行 土田 貴正 太田 浩子

The Market Basket Survey on the Daily Intake of Pesticide Residues in Food and Drink in Kyoto Prefecture, 2009

Masumi OHFUJI Yoshiyuki CHATANI Takamasa TSUCHIDA Hiroko OHTA

Abstract

We prepared 244 foods and drinks of 14 food groups by the market basket method, and analyzed them for 70 pesticides, using a high-performance liquid chromatograph with a tandem mass spectrometer. Four fungicides (boscalid, cyazofamid, imazalil, and thiabendazole) and an insecticide (indoxacarb) were identified from the samples of three food groups: fruits; colored vegetables; other vegetables, seaweeds, and mushrooms. The concentrations of these pesticides ranged from 0.003 to 0.016 $\mu\text{g/g}$, and were estimated at only 0.004 - 0.23% of the acceptable daily intake values of the pesticides. As far as the daily intake values are concerned, the pesticide residues detected at such low levels do not seem to exert harmful effects on human health.

キーワード：マーケットバスケット方式、一日摂取量、LC-MS/MS、残留農薬
key words : Market basket method, Daily intake, LC-MS/MS, Pesticide residues

はじめに

食品残留農薬等一日摂取量実態調査は、国民が日常の食事を介してどの程度の量の農薬等を摂取しているかを把握し食品の安全性を確認する目的で、厚生労働省が全国の自治体に参加を呼びかけ平成3年度から実施している。本調査は国民栄養調査を基礎としたマーケットバスケット調査方式により実施されるもので、各自治体は流通している食品を購入し、通常の食事の状態に調理し、地域ブロック別の食品群別摂取量をもとに食品群ごとに試料を調製し、調査対象農薬について調査し実際の摂取量を把握しようとするものである。

本調査手法は、ヒトの健康に与えるリスクを考え、化学物質の安全性評価を行う際に広く用いられており、食品のリスク評価の基本となる。本調査の結果は、食品健康影響評価における重要な基礎データの一つとなる。

食品の農薬残留については、農産物をそのまま検査を行った結果で基準の適否を判断しているが、皮を剥く、煮るなどの加熱調理を行うことで残留農薬が減少することも報告¹⁾されている。消費者の食への不安に応えるためには、日常の食事を介しての農薬の摂取量を調べ情報提供していくことも重要である。

京都府では平成21年度に本調査に初めて参画し、計70農薬についてLC-MS/MSにより測定した。検出した農薬については、その食品群の摂取量及び一日摂取許容量(ADI)をもとに安全性評価を行った。これらの調査結果を報告する。

(平成22年9月1日受理)

方法

1. 調査期間

平成22年1月～4月

2. 調査対象農薬

Table 1には調査対象農薬を示した。「平成21年度食品残留農薬等一日摂取量実態調査実施要領」(以下「実施要領」という)に基づいて、「LC/MSによる農薬等の一斉試験法I(農産物)」²⁾(以下「通知法」という)が適用可能な40農薬及び京都府の食品衛生監視指導計画に基づき当所が実施している残留農薬検査のLC-MS/MS測定項目の30農薬から併せて70農薬を対象とした。

3. 調査対象食品

調査対象食品は、実施要領で示された「平成18年国民栄養調査における地域ブロック別の食品群別摂取量」を参考に分類した飲料水を含めたI～XIVの食品群から選び、京都府内流通の食品及び飲料水244品目を調査対象食品として用いた。

4. 試料の調製

試料の調製は、一般的に生で食べるものは水洗い、皮剥きを行い、調理後喫食される食品は日本食品標準成分表の調理方法の概要³⁾を参考に簡単な調理を行った後、国民栄養調査の近畿Iブロック(京都府、大阪府、兵庫県)の食品群別摂取量に基づきI～XIIIの食品群ごとに秤量

Table 1. The list of pesticides examined in this study.

Fungicides	19	Acibenzolar-S-methyl		Herbicide Safeners	1	Cloquintocet-mexyl	
		Azoxystrobin					
		Boscalid		Insecticides	32	Abamectin	
		Carpropamid				Aldicarb	
		Cyazofamid	*			Aldoxycarb	*
		Cyflufenamid				Aramite	*
		Cyprodinil				Azamethiphos	*
		Dimethirimol				Azinphos-methyl	*
		Dimethomorph	*			Bendiocarb	
		Epoxiconazole				Carbaryl	*
		Ferimzone	*			Carbofuran	*
		Imazalil	*			Chromafenozide	*
		Iprodione	*			Clothianidin	*
		Iprovalicarb				Cycloprothrin	*
		Mepanipyrim	*			Diflubenzuron	*
		Pencycuron				Fenoxycarb	*
		Simeconazole	*			Fenpyroximate	*
		Thiabendazole	*			Flufenoxuron	*
		Tridemorph	*			Hexaflumuron	*
						Hexythiazox	
Herbicides	18	Anilofos	*			Imidacloprid	
		Benzofenap	*			Indoxacarb	*
		Butafenacil	*			Lufenuron	
		Chloridazon	*			Methiocarb	*
		Cumyluron	*			Methomyl	
		Cycloate				Milbemectin	*
		Daimuron				Oxycarboxin	*
		Fluridone	*			Pirimicarb	
		Indanofan				Spinosad	*
		Linuron	*			Tebufenozide	
		Methabenzthiazuron				Teflubenzuron	*
		Naproanilide	*			Thiacloprid	
		Oryzalin				Thiamethoxam	
		Oxaziclomefone	*			Thiodicarb	*
		Pyrazolynate	*				
		Pyrifthalid					
		Quizalofop-ethyl					
		Tebuthiuron	*				
Total 70 Pesticides							

* Forty pesticides except iprodion metabolites were also selected in the research by the Japan Ministry of Health, Labor, and Welfare in 2009.

し、必要であれば加水して均一に混合したものを試料とした。Table 2には各群の一日摂取量及び購入品目数を示した。また、X IV群の水道水は残留塩素をアスコルビン酸で中和して試料とした。

5. 試薬等

農薬標準品は和光純薬工業（株）、林純薬工業（株）、関東化学（株）、Sigma-ALDRICH（Fluka）社、Riedel-deHaën社製の農薬標準品を用いた。

アセトニトリルは関東化学（株）製残留農薬試験・PCB試験用、アセトン、ヘキサン、トルエン、酢酸エチルは和光純薬工業（株）製残留農薬PCB試験用、その他は試薬特級を用いた。

HPLC移動相は、和光純薬工業（株）製LCMS用のメタノール、超純水及びギ酸を用いた。

グラファイトカーボン/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）はSigma-ALDRICH（株）

Supelclean™ Envi-carb/LC-NH2（500 mg/500 mg）を用いた。

オクタデシルシリル化シリカゲルミニカラム（1,000 mg）はバリアン社製メガボンドエルート® C18（1 g）を用いた。

6. 試験方法

I群、II群、V群の各農薬等の試験方法は、通知法²⁾の「穀類、豆類及び種実類の場合」に準じて実施した。VI群、VII群、VIII群及びX IV群は通知法の「果実、野菜、ハーブ、茶及びホップの場合」に準じた。

また、農産物以外の食品群すなわちIII群、IV群、IX群、X群、XI群、XII群及びXIII群については、井原ら⁴⁾の方法に従って実施した。

試験は3併行で行った。なお、IV群油脂類は、脱脂操作のアセトニトリル・ヘキサン分配で、アセトニトリル飽和ヘキサン、アセトニトリルをいずれも50 mLから200 mLに変更した。

Table 2. Basic information on the diet samples used in this study.

Food group number	Food group	Representative food	Number of the diet samples	Daily intake (g)
I	Rice	Rice, rice cake, <i>sekihan</i>	6	329.6
II	Cereals, potatoes and nuts	Bread, <i>udon</i> , potato, spaghetti, <i>ebiimo</i>	33	178.7
III	Sugar and confectioneries	Sugar, traditional semi-dry and dry confectionaries, cake, chocolate	15	35.6
IV	Fat and oils	Butter, margarine, vegetable oils	7	10.9
V	Pulses and its processed	Tofu, <i>abura-age</i> , natto, <i>yuba</i>	15	51.3
VI	Fruits	Apple, orange, banana, fruit juice beverage, dried <i>kaki</i>	19	116.8
VII	Colored vegetables	Carrot, spinach, tomato, welsh onion, <i>kyona</i>	22	107.3
VIII	Vegetables, seaweeds and mushrooms	<i>Daikon</i> , onion, cabbage, Chinese cabbage, turnip, pickles	33	197.9
IX	Preference beverages	Green tea, coffee, beer, carbonated drink, <i>umeshu</i> , Japanese sake	20	687.3
X	Fishes and sea foods	Horse mackerel, sea bream, shrimp, conger pike, <i>shirasuboshi</i>	29	81.3
X I	Meat and eggs	Egg, pork, chicken, beef, ham	13	124
X II	Milk and dairy products	Milk, yogurt, cheese	9	126
X III	Spices	Soy sauce, miso, Worcester sauces, mayonnaise, vinegar, curry roux	22	102.2
X IV	Drinking water	Tap water	1	600
			244	

7. マトリックス添加標準溶液の調製

LC-MS/MS の測定にはマトリックス添加標準溶液を用いた。食品群ごとに本法により調製した試験溶液の溶媒を窒素気流下で留去し、標準溶液を加え試料マトリックスを溶解して、マトリックス添加標準溶液を調製した。

8. 分析装置及び測定条件

8-1. 分析装置

LC-MS/MS 装置は既報⁵⁾と同じである。

8-2. 測定条件

実施要領に基づいて調査した調査対象農薬については、下記の条件で実施した。なお、当所で追加した農薬については既報⁵⁾に準じた。

8-2-1.LC 部

通知法²⁾の分析条件に準じた。

8-2-2.MS/MS 部

ポジティブイオン化は、イオン化法：ESI (+)、イオンスプレー電圧：5000 V、ターボガス温度：300℃、分析モード：Scheduled MRM™、また、ネガティブイオン化は、

イオン化法：ESI (-)、イオンスプレー電圧：4500 V、ターボガス温度：500℃、分析モード：MRM、Dwell Time：100 msec で行った。測定条件は Table 3 に記した。

なお、LC-MS/MS システムのコントロール及びデータ解析には、Applied Biosystems 社製 Analyst® ソフトウェア 1.5 を用いた。

9. 定量法

試験溶液及びマトリックス添加標準溶液を LC-MS/MS に注入し、得られた MRM クロマトグラムからのピーク面積から、絶対検量線法により試料中の濃度を定量した。

10. 添加回収試験

各農薬を各食品群試料に濃度が 0.1 µg/g となるよう添加し、本法に従い操作し添加回収試験を行った。代表的な食品群として VII 群、X I 群、X IV 群については試行数 3 で行い、その他の食品群については試行数 1 で行った。

実施した試験方法ごとに残留農薬分析法検討会にて検討された判定基準（厚生労働省：農作物対象の GC/MS 一斉分析法及び LC/MS 一斉分析法、並びに畜水産物対象の GC/MS 一斉分析法の検討結果 (<http://www.mhlw.go.jp/topics/bukyoku/iyaku/syoku-anzen/positivelist/>)

dl/040806-111.pdf) を用いて添加回収試験の I ~ X IV 群の回収率の中央値から評価した。加工食品試験法の開発においては、A、B-1 判定を適用可能とされている(厚生労働省医薬食品局食品安全部、2009、平成 21 年度食品安全行政講習会、111)。

A 判定：平均回収率の中央値が 70%以上 120%以下

B-1 判定：平均回収率の中央値が 120%より大きい

B-2 判定：平均回収率の中央値が 50%以上、70%未満

C 判定：平均回収率の中央値が 50%未満

結果

1. 測定条件の検討

測定条件は既報⁵⁾に準じた。ただし、アザメチホス、アニコホス、アラマイト、アルドキシカルブ、オキサジクロメホン、オキシカルボキシ、シクロプロトリン、ジフルベンズロン、テブチウロン、テフルベンズロン、トリデモルフ、ピラゾリネート、フルリドン、ヘキサフルムロン、ミルベメクチン A3、ミルベメクチン A4、リニューロンについては、それぞれ MRM で感度が最大となるようインフュージョンにより最適化し測定条件を設定した。また、実施要領に基づいて実施した調査対象農薬の 40 農薬については、ポジティブイオン化でのターボガス温度は既報⁵⁾の 500℃と 400℃、300℃を比較した。ミルベメクチン A3 及びミルベメクチン A4 は 500℃よりも 300℃の方が S/N 比は約 3 ~ 5 倍高く、その他の農薬では大きな違いが見られなかったため 300℃を採用することとした。

定量下限値は、食品群ごとにマトリックス添加標準溶液を LC-MS/MS で測定し MRM クロマトグラムシグナル/ノイズ比 >10 となる濃度から算出し、Table 4 に示した。アシベンゾラル-S-メチル、イプロジオン代謝物、オリザリン、トリデモルフ以外は各食品群、各農薬とも目標である 0.01 µg/g を満足することができた。また、0.01 µg/g よりも低い定量下限値を設定できる場合は 0.002 µg/g とした。

また、すべての食品群において測定に支障となる妨害ピークは認められなかったため、本法は調査に適用できた。

2. 添加回収試験

Table 5 には添加回収試験の回収率を示した。I ~ X IV 群の回収率の中央値は 52 ~ 104% の範囲であった。

回収率が 50% 未満となった農薬と食品群は、試験方法別に次のとおりである。通知法²⁾では、アルジカルブ (I 群)、アザメチホス (V 群)、シクロエート (I 群、X IV 群)、ピラゾリネート (V 群)、チオジカルブ (I 群、II 群、VI 群) であった。井原ら⁴⁾の方法では、アルジカルブ (X 群)、シクロエート (IX 群)、ジメチリモール (IX 群)、フェリムゾン (X 群)、イプロジオン (III 群、IV 群、IX 群、X 群、X I 群、X II 群、X III 群)、イプロジオン代謝物 (IV 群、IX 群、X 群、X I 群、X III 群)、ピリミカール (X 群)、

チアベンダゾール (X II 群)、チアクロプリド (X 群)、チオジカルブ (X 群、X I 群)、トリデモルフ (III 群、IV 群、IX 群、X 群、X I 群、X II 群、X III 群) であった。

3. 調査結果

I ~ X IV 群の試料について 70 農薬を測定した結果、VI 群からイマザリル 0.005 µg/g、チアベンダゾール 0.005 µg/g、VII 群からシアゾファミド 0.003 µg/g、ボスカリド 0.016 µg/g、VIII 群からインドキサカルブ 0.003 µg/g が検出された。その他の食品群では農薬は定量下限値を超えて検出されなかった。検出された農薬については結果を Table 6 に示した。

考察

1. 添加回収試験

試験溶液の調製は、農産物が主たる試料には通知法²⁾を用い、畜水産物や加工食品等の油脂を多く含む試料には井原ら⁴⁾の方法を用いたので、試験方法ごとに評価した。

1-1. 通知法

通知法²⁾で実施した食品群では、アシベンゾラル-S-メチル、アルジカルブ、アザメチホス、シクロエート、ピラゾリネート、チオジカルブが B-2 判定で、その他の農薬については A 判定であった。残留農薬分析法検討会が農産物を対象に検討した結果(平成 15・16 年度農作物対象の GC/MS 一斉分析法及び LC/MS 一斉分析法、並びに畜水産物対象の GC/MS 一斉分析法の検討結果 (<http://www.mhlw.go.jp/topics/bukyoku/iyaku/syoku-anzen/positivelist/dl/040806-112.pdf>))、農産物対象の GC/MS 一斉分析法及び LC/MS 一斉分析法、並びに畜水産物対象の GC/MS 一斉分析法及び LC/MS 一斉分析法の平成 17 年度検討結果 (<http://www.mhlw.go.jp/topics/bukyoku/iyaku/syoku-anzen/zanryu3/dl/061227-3.pdf>)) ではチオジカルブは B-2 判定、アシベンゾラル-S-メチル、アルジカルブ、アザメチホス、シクロエート、ピラゾリネートは A 判定であった。本調査の結果では、アシベンゾラル-S-メチル 67%、アルジカルブ 69%、アザメチホス 59%、シクロエート 66%、ピラゾリネート 63% と回収率がわずかに低く、本調査では複数の農産物を調理後、混合して試料としており、試料マトリックスの影響が原因と考えられた。

1-2. 井原らの方法

井原ら⁴⁾の方法で実施した食品群では、チオジカルブは B-2 判定、イプロジオン、トリデモルフは C 判定、その他の農薬については A 判定であった。井原ら⁴⁾の報告によればチオジカルブ、イプロジオン、トリデモルフは B-2 判定であったため、本調査試料についてはイプロジオン、トリデモルフの測定が困難であった。逆に、井原ら⁴⁾

Table 3. Operational parameters of the tandem mass spectrometer for the identification of the 70 pesticides.

Compounds	Rt ^{a)} (min.)	Transition, m/z Q1>Q3 ^{b)}	DP ^{c)} (volts)	FP ^{d)} (volts)	EP ^{e)} (volts)	CE ^{f)} (volts)	CXP ^{g)} (volts)
Abamectin	29.3	890.5 → 567.3	41	340	10	19	32
Acibenzolar-S-methyl	23.8	211.0 → 135.9	46	320	10	35	20
Aldicarb	20.4	208.1 → 116.1	6	160	10	11	8
Aldoxycarb	11.9	223.0 → 148.0	41	370	10	13	8
Anilofos	20.3	367.9 → 199.0	41	370	10	21	10
Aramite	21.7	353.6 → 191.3	31	330	10	19	10
Azametiphos	16.3	324.8 → 182.9	41	370	10	25	8
Azinphos-methyl	18.4	318.1 → 159.9	36	290	10	11	10
Azoxystrobin	23.1	404.1 → 371.9	11	160	10	19	10
Bendiocarb	21.4	224.1 → 166.9	31	210	10	15	14
Benzofenap	21.3	431.1 → 105.2	46	340	10	49	8
Boscalid	23.6	342.9 → 307.0	76	370	10	31	12
Butafenacil	19.4	492.2 → 330.9	36	280	10	31	20
Carbaryl	17.1	219.1 → 145.1	16	220	10	17	8
Carbofuran	16.6	222.0 → 164.8	36	300	10	17	10
Carpropamid	25.0	336.1 → 139.0	46	350	10	25	10
Chloridazon	14.5	222.0 → 77.1	41	310	10	49	6
Chromafenozide	19.5	395.3 → 175.1	26	230	10	19	12
Cloquintocet-mexyl	26.6	336.2 → 238.0	36	310	10	21	16
Clothianidin	13.8	250.0 → 168.9	21	180	10	17	12
Cumyluron	19.4	303.1 → 184.9	31	260	10	17	12
Cyazofamid	19.8	325.0 → 108.0	26	240	10	19	8
Cycloate	25.9	216.0 → 83.0	26	310	10	23	6
Cycloprothrin	22.4	499.3 → 257.1	36	370	10	23	14
Cyflufenamid	25.1	413.2 → 295.1	26	220	10	21	18
Cyprodinil	24.2	226.2 → 93.4	26	240	10	51	6
Daimuron	23.9	269.0 → 151.0	26	220	10	17	10
Diflubenzuron	20.0	311.0 → 157.9	46	360	10	19	8
Dimethirimol	18.4	210.1 → 71.2	46	170	10	45	6
Dimethomorph-E	18.8	388.2 → 301.1	46	370	10	33	14
Dimethomorph-Z	19.1	388.2 → 301.1	46	370	10	33	14
Epoxiconazole	24.3	330.1 → 121.1	36	370	10	29	8
Fenoxycarb	20.1	302.1 → 88.1	36	280	10	29	6
Fenpyroximate-E	21.9	422.3 → 366.0	36	280	10	19	24
Fenpyroximate-Z	22.7	422.3 → 366.1	36	280	10	19	24
Ferimzone-E	19.1	255.2 → 132.0	41	290	10	29	8
Ferimzone-Z	20.2	255.2 → 132.0	41	290	10	29	8
Flufenoxuron	27.4	489.1 → 157.9	51	340	10	27	10
Fluridone	18.4	329.8 → 309.1	41	340	10	51	50

Compounds	Rt ^{a)} (min.)	Transition, m/z Q1>Q3 ^{b)}	DP ^{c)} (volts)	FP ^{d)} (volts)	EP ^{e)} (volts)	CE ^{f)} (volts)	CXP ^{g)} (volts)
Hexaflumuron	24.5	458.9 → 438.9	-31	-210	-10	-16	-23
Hexythiazox	27.1	353.1 → 228.1	41	310	10	21	16
Imazalil	20.4	297.0 → 158.9	36	260	10	33	24
Imidacloprid	18.1	256.2 → 209.0	21	190	10	19	12
Indanofan	24.3	341.2 → 175.1	31	270	10	17	10
Indoxacarb	20.9	528.2 → 150.0	41	320	10	33	10
Iprodione	23.5	328.0 → 141.0	-21	-250	-10	-18	-9
Iprodione metabolite	26.1	329.9 → 101.1	46	350	10	31	8
Iprovalicarb	24.1	321.2 → 119.0	21	180	10	23	8
Linuron	18.9	250.8 → 161.7	46	360	10	27	8
Lufenuron	26.5	511.0 → 158.0	66	370	10	29	26
Mepanipyrim	19.7	224.0 → 106.1	46	370	10	37	8
Methabenzthiazuron	22.6	221.9 → 164.9	26	230	10	21	10
Methiocarb	18.9	226.0 → 169.0	31	260	10	13	10
Methomyl	16.2	162.9 → 88.2	11	160	10	13	6
Milbemectin A3	23.4	546.3 → 511.4	36	370	10	11	28
Milbemectin A4	24.0	561.6 → 526.4	26	340	10	11	30
Naproanilide	20.0	292.1 → 171.2	46	170	10	19	14
Oryzalin	24.3	347.1 → 305.2	31	240	10	19	24
Oxaziclonetone	21.4	377.7 → 189.9	56	370	10	21	10
Oxycarboxin	14.9	267.7 → 175.0	41	370	10	21	10
Pencycuron	25.4	329.2 → 125.3	46	340	10	31	10
Pirimicarb	19.1	239.3 → 182.2	36	260	10	23	12
Pyrazolynate	20.8	441.1 → 174.9	81	370	10	29	8
Pyrifluthin	23.1	319.0 → 139.1	51	370	10	39	12
Quizalofop-ethyl	26.3	373.1 → 298.9	51	370	10	25	18
Simeconazole	19.7	294.1 → 70.2	36	310	10	39	4
Spinosyn(A)	23.7	732.6 → 142.0	36	370	10	49	8
Spinosyn(D)	24.3	746.6 → 142.1	46	370	10	51	6
Tebufenozide	24.5	353.2 → 296.8	16	170	10	11	18
Teflubenzuron	16.9	229.0 → 172.1	36	360	10	25	6
Thiabendazole	16.2	202.0 → 175.1	41	120	10	35	10
Thiacloprid	19.6	253.0 → 126.0	46	270	10	27	6
Thiamethoxam	16.7	292.1 → 210.9	31	210	10	17	14
Thiodicarb	17.2	355.0 → 88.2	31	250	10	25	6
Tridemorph(Isomer-1)	25.3	298.1 → 298.1	46	370	10	12	12
Tridemorph(Isomer-2)	26.3	298.2 → 298.2	46	370	10	12	12

- a) Retention time
- b) Q1,precursor ion; Q3,product ion
- c) Declustering Potential
- d) Focusing Potential
- e) Entrance Potential
- f) Collision Energy
- g) Collision cell exit Potential

Table 4. Minimum limits of determination for the 70 pesticides in the aliquot from the diet samples through the high-performance liquid chromatograph-tandem mass spectrometric analysis.

Pesticides	Compounds	Minimum determination limit (µg/g)													
		I	II	III	IV	V	VI	VII	VIII	IX	X	X I	X II	X III	X IV
Abamectin	Abamectin	0.01	0.01	0.01	0.01	0.01	0.01	0.01	0.01	0.01	0.01	0.01	0.01	0.01	0.01
Acibenzolar-S-methyl	Acibenzolar-S-methyl	0.05	0.03	0.05	0.03	0.1	0.02	0.03	0.02	0.02	0.03	0.02	0.05	0.03	0.03
Aldicarb	Aldicarb	0.01	0.002	0.01	0.01	0.01	0.01	0.01	0.01	0.01	0.01	0.01	0.01	0.01	0.01
Aldoxycarb	Aldoxycarb	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002
Anilofos	Anilofos	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002
Aramite	Aramite	0.01	0.01	0.01	0.01	0.01	0.01	0.01	0.01	0.002	0.01	0.01	0.002	0.01	0.01
Azamethiphos	Azamethiphos	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002
Azinphos-methyl	Azinphos-methyl	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002
Azoxystrobin	Azoxystrobin	0.01	0.002	0.002	0.01	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002	0.01	0.002
Bendiocarb	Bendiocarb	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002
Benzofenap	Benzofenap	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002	0.010	0.002
Boscalid	Boscalid	0.01	0.01	0.01	0.01	0.01	0.01	0.002	0.01	0.01	0.01	0.01	0.01	0.01	0.01
Butafenacil	Butafenacil	0.002	0.01	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002	0.01	0.002	0.002	0.002	0.002
Carbaryl	Carbaryl	0.002	0.002	0.01	0.01	0.002	0.01	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002	0.01	0.002
Carbofuran	Carbofuran	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002
Carpropamid	Carpropamid	0.01	0.01	0.002	0.01	0.01	0.01	0.002	0.01	0.002	0.01	0.01	0.01	0.01	0.01
Chloridazon	Chloridazon	0.01	0.01	0.01	0.01	0.01	0.01	0.01	0.01	0.01	0.01	0.01	0.01	0.01	0.01
Chromafenozide	Chromafenozide	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002
Cloquintocet-mexyl	Cloquintocet-mexyl	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002
Clothianidin	Clothianidin	0.01	0.002	0.002	0.01	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002	0.01	0.002
Cumyluron	Cumyluron	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002
Cyazofamid	Cyazofamid	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002
Cycloate	Cycloate	0.01	0.01	0.01	0.01	0.01	0.01	0.01	0.01	0.01	0.01	0.01	0.01	0.01	0.01
Cycloprothrin	Cycloprothrin	0.01	0.01	0.01	0.01	0.01	0.01	0.01	0.01	0.01	0.01	0.002	0.01	0.01	0.01
Cyflufenamid	Cyflufenamid	0.01	0.01	0.01	0.01	0.01	0.01	0.01	0.01	0.01	0.01	0.01	0.01	0.01	0.01
Cyprodinil	Cyprodinil	0.01	0.01	0.01	0.02	0.01	0.01	0.01	0.01	0.01	0.01	0.01	0.01	0.01	0.01
Daimuron	Daimuron	0.01	0.01	0.002	0.002	0.01	0.002	0.002	0.01	0.002	0.01	0.01	0.01	0.002	0.01
Diflubenzuron	Diflubenzuron	0.002	0.002	0.002	0.01	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002
Dimethirimol	Dimethirimol	0.002	0.002	0.002	0.01	0.01	0.002	0.002	0.002	0.01	0.01	0.01	0.01	0.01	0.002
Dimethomorph	Dimethomorph	0.002	0.01	0.002	0.01	0.002	0.002	0.002	0.01	0.002	0.002	0.002	0.002	0.01	0.002
Epoxiconazole	Epoxiconazole	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002
Fenoxycarb	Fenoxycarb	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002
Fenpyroximate	Fenpyroximate	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002
Ferimzone	Ferimzone-E,Z	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002
Flufenoxuron	Flufenoxuron	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002
Fluridone	Fluridone	0.01	0.01	0.002	0.002	0.002	0.01	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002
Hexaflumuron	Hexaflumuron	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002
Hexythiazox	Hexythiazox	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002
Imazalil	Imazalil	0.002	0.002	0.01	0.01	0.002	0.01	0.002	0.01	0.002	0.002	0.002	0.002	0.01	0.002
Imidacloprid	Imidacloprid	0.002	0.01	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002	0.01	0.002	0.002	0.002	0.01	0.01
Indanofan	Indanofan	0.01	0.01	0.01	0.03	0.01	0.01	0.01	0.01	0.01	0.01	0.02	0.01	0.02	0.01
Indoxacarb	Indoxacarb	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002	0.01	0.002	0.002	0.002	0.002	0.01	0.002	0.01	0.01
Iprodione	Iprodione	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002
Iprodione	Iprodione metabolite	0.03	0.05	0.02	0.05	0.1	0.03	0.03	0.05	0.05	0.03	0.03	0.02	0.03	0.03
Iprovalicarb	Iprovalicarb	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002	0.01	0.002
Linuron	Linuron	0.002	0.002	0.01	0.01	0.01	0.01	0.002	0.01	0.01	0.01	0.01	0.002	0.01	0.01
Lufenuron	Lufenuron	0.01	0.01	0.01	0.01	0.01	0.01	0.01	0.01	0.01	0.01	0.01	0.01	0.01	0.01
Mepanipyrim	Mepanipyrim	0.01	0.01	0.01	0.01	0.002	0.01	0.01	0.002	0.002	0.002	0.01	0.002	0.01	0.01
Methabenzthiazuron	Methabenzthiazuron	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002
Methiocarb	Methiocarb	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002
Milbemectin	Milbemectin	0.01	0.01	0.01	0.01	0.01	0.01	0.01	0.01	0.01	0.01	0.01	0.01	0.01	0.002
Naproanilide	Naproanilide	0.002	0.002	0.002	0.010	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002
Oryzalin	Oryzalin	0.03	0.03	0.02	0.02	0.02	0.02	0.02	0.02	0.01	0.02	0.03	0.02	0.02	0.03
Oxaziclomefone	Oxaziclomefone	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002
Oxycarboxin	Oxycarboxin	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002
Pencycuron	Pencycuron	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002
Pirimicarb	Pirimicarb	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002
Pyrazolynate	Pyrazolynate	0.01	0.002	0.01	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002	0.01	0.002	0.01	0.002
Pyrifthalid	Pyrifthalid	0.01	0.01	0.01	0.01	0.01	0.01	0.01	0.01	0.01	0.01	0.01	0.01	0.01	0.01
Quizalofop-ethyl	Quizalofop-ethyl	0.01	0.01	0.002	0.002	0.01	0.002	0.01	0.002	0.002	0.01	0.01	0.002	0.002	0.01
Simeconazole	Simeconazole	0.002	0.002	0.002	0.01	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002	0.01	0.002
Spinosad	Spinosad	0.01	0.01	0.01	0.01	0.002	0.01	0.002	0.002	0.01	0.01	0.002	0.002	0.01	0.01
Tebufenozide	Tebufenozide	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002
Tebuthiuron	Tebuthiuron	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002
Teflubenzuron	Teflubenzuron	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002
Thiabendazole	Thiabendazole	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002
Thiacloprid	Thiacloprid	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002
Thiamethoxam	Thiamethoxam	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002
Thiodicarb & Methomyl	Thiodicarb	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002
Thiodicarb & Methomyl	Methomyl	0.002	0.01	0.01	0.01	0.002	0.002	0.01	0.002	0.01	0.01	0.01	0.01	0.01	0.01
Tridemorph	Tridemorph	0.02	0.02	0.03	0.02	0.02	0.02	0.02	0.02	0.03	0.02	0.02	0.03	0.02	0.02

Table 5. Recoveries of the 70 pesticides from the diet sample in each food group.

Pesticides	Compounds	Recovery (%)														Median of recovery (%)		Category ^{a)}	
		Food group														Method		Method	
		I	II	III	IV	V	VI	VII ^{a)}	VIII	IX	X	XI ^{a)}	XII	XIII	XIV ^{a)}	Tuuti ^{b)}	Ihara ^{c)}	Tuuti ^{b)}	Ihara ^{c)}
Abamectin	Abamectin	65	72	122	83	86	84	92	93	70	66	95	112	108	72	84	95	A	A
Acibenzolar-S-methyl	Acibenzolar-S-methyl	67	82	166	102	50	62	86	85	81	76	109	94	88	65	67	102	B-2	A
Aldicarb	Aldicarb	45	69	109	95	93	65	97	97	84	44	99	101	98	69	69	99	B-2	A
Aldoxycarb	Aldoxycarb	76	87	58	107	99	88	95	97	106	80	91	100	97	76	88	91	A	A
Anilofos	Anilofos	86	94	105	100	102	92	97	97	106	93	108	101	101	84	94	105	A	A
Aramite	Aramite	78	80	105	91	98	97	105	102	91	97	110	96	90	86	97	97	A	A
Azamethiphos	Azamethiphos	59	72	90	82	10	51	62	82	75	77	90	86	71	51	59	86	B-2	A
Azinphos-methyl	Azinphos-methyl	87	95	89	98	96	86	96	98	100	97	100	101	99	83	95	100	A	A
Azoxystrobin	Azoxystrobin	90	92	108	97	96	87	95	91	100	101	100	104	106	87	91	100	A	A
Bendiocarb	Bendiocarb	83	80	105	97	87	88	92	92	95	86	104	100	96	80	87	100	A	A
Benzofenap	Benzofenap	86	92	104	107	105	93	99	99	122	105	104	108	106	91	93	105	A	A
Boscalid	Boscalid	88	86	117	87	89	88	90	99	103	79	96	110	113	86	88	96	A	A
Butafenacil	Butafenacil	94	95	98	106	101	92	102	101	113	100	105	108	101	87	95	105	A	A
Carbaryl	Carbaryl	84	97	98	106	95	94	98	103	106	93	99	106	101	87	95	99	A	A
Carbofuran	Carbofuran	88	91	98	107	104	96	102	101	108	97	111	105	96	86	96	107	A	A
Carpropamid	Carpropamid	91	84	115	108	95	90	93	93	108	90	100	104	93	84	91	100	A	A
Chloridazon	Chloridazon	82	93	81	107	103	90	105	98	113	79	91	96	101	89	93	91	A	A
Chromafenozide	Chromafenozide	100	94	100	104	102	92	103	102	117	96	107	108	101	90	100	107	A	A
Cloquintocet-mexyl	Cloquintocet-mexyl	82	77	101	98	96	84	91	92	102	104	102	102	93	82	84	102	A	A
Clothianidin	Clothianidin	90	84	72	101	102	96	98	95	115	80	88	96	92	91	95	88	A	A
Cumyluron	Cumyluron	102	87	102	100	102	93	105	100	111	103	107	99	97	92	100	103	A	A
Cyazofamid	Cyazofamid	95	86	83	92	74	85	97	100	107	92	100	91	96	84	86	96	A	A
Cycloate	Cycloate	45	52	97	78	82	66	78	75	45	84	77	87	79	42	66	78	B-2	A
Cycloprothrin	Cycloprothrin	84	78	97	127	84	89	93	99	106	92	103	103	101	84	84	103	A	A
Cyflufenamid	Cyflufenamid	91	85	124	88	96	92	95	92	110	99	103	102	98	87	92	103	A	A
Cyprodinil	Cyprodinil	89	83	112	89	94	87	90	92	96	96	97	105	97	83	89	97	A	A
Daimuron	Daimuron	88	79	107	84	90	83	89	87	100	92	96	102	98	89	88	96	A	A
Diflubenzuron	Diflubenzuron	94	86	98	96	100	95	99	97	98	97	107	98	94	88	95	98	A	A
Dimethirimol	Dimethirimol	80	76	87	91	88	82	79	57	31	76	93	89	69	74	79	89	A	A
Dimethomorph ^{e)}		90	92	98	96	104	91	103	102	118	94	96	101	102	89	92	96	A	A
Dimethomorph	Dimethomorph-E	81	83	88	91	98	86	97	97	104	79	87	83	95	75	86	87	A	A
Dimethomorph	Dimethomorph-Z	100	100	108	101	110	97	108	108	131	108	106	119	110	102	102	108	A	A
Epoxiconazole	Epoxiconazole	89	78	115	92	98	91	95	93	103	96	101	103	91	83	91	101	A	A
Fenoxycarb	Fenoxycarb	90	89	91	97	100	91	98	99	102	99	106	99	98	86	91	99	A	A
Fenpyroximate ^{e)}		84	80	104	115	99	93	97	100	117	94	102	103	99	91	93	102	A	A
Fenpyroximate	Fenpyroximate-E	84	78	103	111	99	94	101	103	116	93	103	114	99	92	94	103	A	A
Fenpyroximate	Fenpyroximate-Z	84	82	105	119	99	92	93	97	118	95	102	91	99	91	92	102	A	A
Ferimzone	Ferimzone-E,Z	96	83	88	83	104	96	98	98	65	7	104	69	84	58	96	84	A	A
Flufenoxuron	Flufenoxuron	85	82	120	135	96	87	92	96	70	98	96	100	134	83	87	98	A	A
Fluridone	Fluridone	86	102	108	106	103	98	106	97	100	92	126	103	99	95	98	106	A	A
Hexaflumuron	Hexaflumuron	90	91	111	98	101	101	99	97	84	96	91	90	98	89	97	91	A	A
Hexythiazox	Hexythiazox	80	86	84	96	92	90	90	97	74	96	102	90	115	89	90	96	A	A
Imazalil	Imazalil	87	95	91	95	102	92	75	71	71	81	88	92	79	85	87	88	A	A
Imidacloprid	Imidacloprid	82	84	79	91	90	82	94	66	98	73	84	89	98	83	83	84	A	A
Indanofan	Indanofan	93	81	133	87	93	91	97	94	105	80	106	99	100	87	93	105	A	A
Indoxacarb	Indoxacarb	92	93	96	103	103	92	95	98	112	100	105	107	109	92	93	105	A	A
Iprodione	Iprodione	113	95	39	8	112	123	135	128	22	10	30	31	15	88	113	30	A	C
Iprodione	Iprodione metabolite	87	74	68	24	115	90	105	92	25	4	49	62	22	90	90	49	A	C
Iprovalicarb	Iprovalicarb	90	85	117	94	93	83	91	90	101	96	100	102	102	87	90	100	A	A
Linuron	Linuron	80	89	137	71	97	98	102	105	107	100	121	106	96	86	97	107	A	A
Lufenuron	Lufenuron	86	89	182	173	86	85	96	105	66	97	99	134	108	72	86	99	A	A
Mepanipyrim	Mepanipyrim	86	103	115	108	101	91	100	105	111	79	111	116	113	84	100	111	A	A
Methabenzthiazuron	Methabenzthiazuron	89	86	113	96	93	85	94	90	98	93	101	99	97	82	89	99	A	A
Methiocarb	Methiocarb	83	88	104	108	102	99	102	101	107	98	110	110	103	87	99	108	A	A
Milbemectin ^{e)}		72	90	91	118	93	88	99	93	100	86	100	100	101	82	90	100	A	A
Milbemectin	MilbemectinA3	72	93	91	115	93	88	96	92	97	84	103	104	100	82	92	103	A	A
Milbemectin	MilbemectinA4	72	87	91	120	92	87	103	94	103	87	98	96	102	83	87	98	A	A
Naproanilide	Naproanilide	97	89	93	96	99	92	101	95	100	96	106	96	98	86	95	98	A	A
Oryzalin	Oryzalin	94	87	109	90	82	84	88	97	80	92	85	120	109	87	87	90	A	A
Oxaziclomefone	Oxaziclomefone	81	98	109	109	103	101	108	104	105	98	123	102	96	87	101	109	A	A
Oxycarboxin	Oxycarboxin	66	87	87	96	86	88	81	88	89	67	94	87	85	77	86	89	A	A
Pencycuron	Pencycuron	88	85	102	66	91	84	93	83	113	90	99	96	91	88	88	99	A	A
Pirimicarb	Pirimicarb	87	94	98	85	94	98	79	88	86	42	106	96	100	82	88	98	A	A
Pyrazolynate	Pyrazolynate	67	73	95	57	27	56	63	78	75	77	89	93	74	55	63	89	B-2	A
Pyrifthalid	Pyrifthalid	92	86	102	87	91	86	92	92	93	93	100	104	102	88	91	100	A	A
Quizalofop-ethyl	Quizalofop-ethyl	88	86	103	82	91	86	94	93	109	95	104	101	102	86	88	103	A	A
Simeconazole	Simeconazole	96	84	99	99	99	91	99	98	102	92	104	100	98	87	96	100	A	A
Spinosad ^{e)}		92	100	83	104	90	90	124	81	96	85	108	90	90	84	90	96	A	A
Spinosad	Spinosyn(A)	91	101	84	104	89	89	118	80	94	87	112	88	94	83	89	94	A	A
Spinosad	Spinosyn(D)	93	100	82	103	92	91	131	83	98	84	104	91	86	85	92	98	A	A
Tebufenozide	Tebufenozide	90	84	112	105	100	95	93	96	102	96	105	97	93	83	93	105	A	A

Table 5. Continued.

Pesticides	Compounds	Recovery (%)														Median of recovery (%)		Category ^{a)}	
		Food group														Method		Method	
		I	II	III	IV	V	VI	VII ^{a)}	VIII	IX	X	XI ^{a)}	XII	XIII	XIV ^{a)}	Tuuti ^{b)}	Ihara ^{c)}	Tuuti ^{b)}	Ihara ^{c)}
Tebuthiuron	Tebuthiuron	87	93	102	109	102	99	106	108	112	81	111	106	102	89	99	109	A	A
Teflubenzuron	Teflubenzuron	98	95	115	86	99	94	102	116	88	86	96	88	97	88	98	96	A	A
Thiabendazole	Thiabendazole	67	72	79	82	95	92	98	80	80	69	58	48	75	62	80	69	A	B-2
Thiacloprid	Thiacloprid	68	99	90	89	106	77	88	90	99	38	89	94	104	87	88	89	A	A
Thiamethoxam	Thiamethoxam	83	79	58	86	88	77	89	84	99	72	79	89	89	80	83	79	A	A
Thiodicarb & Methomyl	Thiodicarb	0	21	68	89	88	12	101	95	61	0	0	89	92	56	56	61	B-2	B-2
Thiodicarb & Methomyl	Methomyl	83	79	97	104	95	95	95	84	109	145	131	94	94	84	84	109	A	A
Tridemorph ^{d)}		78	78	12	5	83	77	98	92	20	16	20	26	15	84	83	20	A	C
Tridemorph	Tridemorph(Isomer-1)	83	71	24	11	95	76	95	97	26	14	20	19	20	83	83	20	A	C
Tridemorph	Tridemorph(Isomer-2)	73	86	0	0	71	78	100	87	14	19	20	34	10	85	85	19	A	C

- a) Each recovery is represented as the mean of three trials.
- b) The food groups I, II, V, VI, VII, VIII and XIV food groups were determined by tuuti method.
- c) The food groups III, IV, IX, X, XI, XII and XIII food groups were determined by Ihara method.
- d) category A: Recovery 70-120%, category B-1:>121%, category B-2:50-69%, category C:<49%
- e) The recovery of tridemorph is represented as the mean of its isomers.

の報告ではスピノシン A は B-2 判定であったが、本調査の結果では A 判定であったので、試料の違いによるものと考えられた。

2. 残留農薬の一日摂取量

本調査で検出された農薬については、国民栄養調査の近畿 I ブロックにおける各食品群の一日摂取量を基に農薬一日摂取量を算出した。さらに、農薬の ADI (国立医薬品食品衛生研究所農薬等 ADI 関連情報データベース (http://www.nihs.go.jp/hse/food-info/pest_res/index.html) から平均体重 50 kg とした場合の一日当たりの量を算出し、農薬一日摂取量の対 ADI 比を求めたところ、0.004 ~ 0.23% であった。結果を Table 6 に示した。このことから、調査した農薬の一日摂取量は、ADI 比から見ても十分低く、いずれも安全上問題はないと考えられた。

3. 他の調査結果との比較

検出された農薬について、他府県での残留農薬の一日摂取量調査の結果と比較した。VI 群果実類からイマザリル 0.005 µg/g、チアベンダゾール 0.005 µg/g を検出したが、兵庫県においても 2005 年度に VI 群からイマザリル 0.022 µg/g、チアベンダゾール 0.019 µg/g を検出している⁶⁾。広島県の 2007 年度の調査では定量下限値 0.01 µg/g でいずれも検出されていない⁴⁾。

VII 群緑黄色野菜からはシアゾファミド 0.003 µg/g、ボスカリド 0.016 µg/g を検出したが、兵庫県における 2003 ~ 2006 年度の調査⁶⁾、広島県の 2007 年度の調査⁴⁾ ではシアゾファミドは検出されていない。ボスカリドは北九州市の平成 19 年度の調査⁷⁾ で IV 群、VI 群、VII 群から検出され、農薬一日摂取量で 0.11 µg と報告しているが、兵庫県の 2003 ~ 2006 年度の調査⁶⁾、福岡市の 2008 年の調査⁸⁾ では検出されていない。本調査結果のボスカリドの農薬一日摂取量は 1.7 µg と北九州の調査よりも高かった。

VIII 群からはインドキサカルブを 0.003 µg/g 検出したが、兵庫県の調査では 2005 年度に VIII 群から 0.012 µg/g を検出している⁶⁾。広島県の 2007 年度の調査では定量下限値

0.01 µg/g で検出されていない⁴⁾。本調査結果のインドキサカルブは兵庫県の調査よりも低かった。

また、厚生労働省の平成 16 年度食品中の残留農薬の一日摂取量調査結果 (<http://www.mhlw.go.jp/topics/bukyoku/iyaku/syoku-anzen/zanryu2/dl/081027-1a.pdf>) によれば、農薬一日摂取量としてはイマザリルが VI 群から 3.72 µg、チアベンダゾールが VIII 群から 1.49 µg 検出されている。本調査ではイマザリルが 0.58 µg、チアベンダゾールが 0.58 µg であり、検出レベルは低かった。

本調査で農薬の検出されなかった食品群は I ~ V、IX ~ XIV 群であった。厚生労働省の調査項目については、広島県の 2007 年度の調査では定量下限値を 0.01 µg/g とした結果、同食品群からは検出されていない。兵庫県の 2003 ~ 2006 年度の調査では、本調査項目のうち 65 項目を含む 326 ~ 457 の農薬について定量下限値を 0.01 µg/g とした結果、I、III、IV、V、IX、X、XII、XIII、XIV 群からは検出されていない。II 群からクロロプロファム、XI 群からエトキシキンを検出しているが、本調査ではこれらの農薬を対象としていない。

4. 検出農薬

4-1. イマザリル、チアベンダゾール

VI 群 (果実類) から検出されたイマザリル、チアベンダゾールは農薬としては国内登録が無く、国内では使用されていないが、輸送貯蔵中に柑橘類などにカビが発生するのを防ぐために防かび剤として使用されている。また、海外ではイマザリル、チアベンダゾールは殺菌剤として使用されている。本調査で購入した VI 群の中では、グレープフルーツ、バナナ、パイナップル、アボカドが輸入品であったが、果汁飲料 (果実ミックスジュース (濃縮還元) : 原材料 オレンジ、うんしゅうみかん、30% りんご果汁入り飲料 : 原材料 りんご) の原産国は分からなかった。

国は 2002 ~ 2007 年度の輸入食品監視指導結果をもとに輸入食品中の残留農薬の検出状況について調査しており (国立医薬品食品衛生研究所安全情報部 : 「平成 20 年

Table 6. Estimation of the daily intake of five pesticides identified from the diet samples. The ratio to the acceptable daily intake (ADI) is also included.

Pesticides	Food group number	Residue ($\mu\text{g/g}$) ^{a)}	Daily intake of each food group (g) ^{b)}	Daily intake of the pesticide remaining in each food group (μg) ^{c)}	ADI (mg/kg/day) ^{d)}	ADI ratio (%) ^{e)}
Boscalid	VII	0.016	107.3	1.72	0.044	0.078
Cyazofamid	VII	0.003	107.3	0.32	0.17	0.004
Imazalil	VI	0.005	116.8	0.58	0.03	0.039
Indoxacarb	VIII	0.003	197.9	0.59	0.0052	0.23
Thiabendazole	VI	0.005	116.8	0.58	0.100	0.012

a) Each value is the mean of three trials.

b) Daily intake of each food group is based on the data in the Japanese Dietetic Investigation in 2006.

c) Daily intake of the pesticide (μg) = residue ($\mu\text{g/g}$) \times daily intake of each food group (g)

d) The ADI values of the pesticides are presented by the Japan Ministry of Health, Labor, and Welfare (boscalid, cyazofamid, indoxacarb, and thiabendazole) and FAO/WHO (imazalil).

e) The ADI ratio was calculated using the body weight = 50 kg.

度輸出国における農薬等の使用状況等に関する調査 わが国における輸入農産物中の残留農薬検出状況の推移について」(http://www.nihs.go.jp/hse/food-info/chemical/pest_imp-fd/pdf3/report08.pdf) (以下「国の輸入農産物の調査」という)、チアベンダゾールについては検出例が比較的多かったのは米国の柑橘類としている。また、国の輸入農産物の調査によると、イマザリルは日本での検出事例は多くないが、米国や欧州でのモニタリング結果では米国ではバナナ、グレープフルーツに検出例が多いとしている。

また、東京都の平成 20 年度の輸入農産物中の残留農薬実態調査の結果⁹⁾によると、米国産グレープフルーツの果肉からイマザリルが 0.02 ~ 0.32 $\mu\text{g/g}$ 、チアベンダゾールが 0.02 ~ 0.07 $\mu\text{g/g}$ 検出されており、果肉にも残留していることが示されている。本調査は皮を剥いて果肉部分を用いて調製しているため、検出されたイマザリル、チアベンダゾールは果肉から由来している可能性がある。

4-2. シアゾファミド、ボスカリド

VII 群から検出されたシアゾファミド及びボスカリドは、本調査で購入した VII 群の食品の中では、シアゾファミドはトマト、ほうれん草、ピーマン、ブロッコリー、ねぎ、かぶに登録があり、ボスカリドはトマト、にんじん、ピーマンにいずれも国内で登録されている。これらに農薬が使用され残留していると考えられた。また、表示のなかった 1 品を除いて、輸入品はかぼちゃ、ミニアスパラガスであった。

厚生労働省がまとめた「平成 16 年度農産物中の残留農薬検査結果」(<http://www.mhlw.go.jp/topics/bukyoku/iyaku/syoku-zen/zanryu2/dl/081224-1a.pdf>) では、シアゾファミドは調査がされていないので検出事例は分からなかった。

東京都の平成 20 年度の国内産野菜の残留農薬実態調査の結果¹⁰⁾によると、トマトからボスカリドが 0.08 $\mu\text{g/g}$ 検出されている。また、東京都の平成 20 年度の輸入農産

物の残留農薬実態調査¹¹⁾では検出頻度が高い農薬として、国の輸入農産物の調査でも検出例は多いが、違反例は少ない農薬としている。

4-3. インドキサカルブ

VIII 群から検出されたインドキサカルブは国内登録されている。本調査で購入した VIII 群の食品は表示のなかった寒天 1 品を除いてすべて国産品である。そのうちキャベツ、はくさい、大根、なす、レタス、しょうがに登録がある。厚生労働省がまとめた「平成 16 年度農産物中の残留農薬検査結果」では、インドキサカルブは国産品の調査がされていないので検出事例は分からなかった。

シアゾファミド、ボスカリド、インドキサカルブは水洗またはゆでる、炒める、煮る、焼くといった調理をしても残存しているといえる。

本調査では日常の食事を介してどの程度の量の農薬等を摂取しているかを把握することができた。今後も継続的に調査を実施することが望まれる。

謝辞

本調査の一部は、厚生労働省の調査事業である「平成 21 年度食品残留農薬等一日摂取量実態調査」により実施したものであり、関係各位に深謝する。

引用文献

- 1) 永山敏廣. 2009. 食品中の残留農薬 - 残留農薬は調理加工により減少するか -. 日本調理科学会誌, 42 (2), 135-140.
- 2) 厚生労働省医薬食品局食品安全部長通知 食安発第 0124001 号「食品に残留する農薬、飼料添加物又は動物用医薬品の成分である物質の試験法」. 平成 17 年 1 月 24 日.
- 3) 科学技術庁資源調査会. 2000. 表 13 調理方法の概要. 五訂日本食品標準成分表, pp.531-545, 大蔵省印刷局, 東京.

- 4) 井原紗弥香, 杉村光永, 豊田安基江, 松尾健. 2008. 広島県における食品中の残留農薬の一日摂取量調査-平成19年度-. 広島県立総合技術研究所保健環境センター研究報告, 16, 31-40.
- 5) 中村昌子, 茶谷祐行, 北野隆一, 柳瀬杉夫, 大藤升美, 竹前道夫. 2004. GC/MS及びLC-MS/MSによる農産物中の残留農薬一斉分析法について(Ⅱ)-LC/MS/MS-. 京都府保健環境研究所年報, 49, 22-29.
- 6) 吉岡直樹, 秋山由美, 松岡智郁. 2007. 兵庫県民の残留農薬の一日摂取量調査研究-マーケットバスケット方式による2003~2006年度の結果-. 兵庫県立健康環境科学研究所年報, 4, 116-121.
- 7) 苗床江理, 布川徹, 花田喜文. 2009. LC-MS/MSを用いた食品中残留農薬一日摂取量実態調査. 北九州市環境科学研究所報, 第36号, 67-68.
- 8) 小西友彦, 中村正規, 内山賢二. 2008. 福岡市におけるマーケットバスケット調査方式による食品中の残留農薬の一日摂取量調査(2008). 福岡市保健環境研究所報, 34, 87-94.
- 9) 上條恭子, 小林麻紀, 大塚健治, 田村康宏, 富澤早苗, 岩越景子, 影山百合子, 高野伊知郎, 永山敏廣. 2009. 輸入農産物中の残留農薬実態調査(有機塩素系農薬, N-メチルカルバメート系農薬及びその他)-平成20年度-. 東京都健康安全研究センター研究年報, 60, 179-185.
- 10) 富澤早苗, 小林麻紀, 大塚健治, 田村康宏, 上條恭子, 岩越景子, 影山百合子, 高野伊知郎, 永山敏廣. 2009. 国内産野菜・果実類中の残留農薬実態調査-平成20年度-. 東京都健康安全研究センター研究年報, 60, 159-164.
- 11) 田村康宏, 小林麻紀, 大塚健治, 富澤早苗, 上條恭子, 岩越景子, 影山百合子, 高野伊知郎, 永山敏廣. 2009. 輸入農産物中の残留農薬実態調査(有機リン系農薬及び含窒素系農薬)-平成20年度-. 東京都健康安全研究センター研究年報, 60, 171-177.