

# 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 (平成 22 年度)

大藤 升美 大脇 成義 松本 洋亘 茶谷 祐行

The Market Basket Survey on the Daily Intake of Pesticide Residues in Food and Drink in Kyoto Prefecture, 2010

Masumi OHFUJI Shigeyoshi OWAKI Hironobu MATSUMOTO Yoshiyuki CHATANI

京都府内に流通する食品及び飲料水 213 品目を 14 の食品群ごとに試料調製し、ガスクロマトグラフ・タンデム型質量分析計により 28 農薬について測定した。その結果、Ⅵ群 (果実類) からメチダチオン 0.005  $\mu\text{g/g}$ 、トルフェンピラド 0.008  $\mu\text{g/g}$ 、Ⅶ群 (緑黄色野菜) からイプロジオン 0.03  $\mu\text{g/g}$ 、Ⅷ群 (淡色野菜、きのこ類、海藻類) からクロルフェナピル 0.004  $\mu\text{g/g}$  が検出された。各農薬の摂取量を算出し対 ADI 比を求めたところ、0.06 ~ 0.99% となり安全上問題のない量であると考えられた。

キーワード：マーケットバスケット方式、一日摂取量、GC-MS/MS、残留農薬、メチダチオン、トルフェンピラド、イプロジオン、クロルフェナピル

key words: Market basket method, Daily intake, GC-MS/MS, Pesticide residues, Methidathion, Tolfenpyrad, Iprodione, Chlorphenapyr

## 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 年度から実施しており、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ている。京都府では平成 21 年度から本調査に参画し、平成 22 年度は計 28 農薬について GC-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。

## 方法

### 1. 調査期間

平成 22 年 12 月～平成 23 年 3 月

### 2. 調査対象農薬

Table 1 には調査対象農薬を示した。「平成 22 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、「GC/MS による農薬等の一斉試験法 I (農産物)」\*1 (以下「通知法」という) が適用可能な 28 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 19 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

(平成 23 年 7 月 31 日 受理)

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

Acaricides (2)	Bromopropylate	Insecticide (15)	Chlorphenapyr
	Propargite		Deltamethrin
Fungicide (9)	Bitertanol		Endosulfan
	Bupirimate		Etofenprox
	Dicloran		Fenthion
	Fthalide		Fipronil
	Hexaconazole		Heptachlor
	Iprodione		Methacrifos
	Tebuconazole		Methidathion
	Triadimenol		Methoxychlor
	Tricyclazole		Monochlotophos
Herbicide (2)	Alachlor		Propoxur
	Atrazine		Pyridaben
			Tolfenpyrad
			Triazophos
			Total 28

Values in parentheses indicate the number of pesticide.

参考に分類した飲料水を含む I ~ XIV の食品群から選び、京都府内流通の食品及び飲料水 213 品目を調査対象食品として用いた。

### 4. 試料の調製

試料は既報<sup>1)</sup>と同様に簡単な調理を行い調製した。Table 2 には各群の一日摂取量及び購入品目数を示した。

### 5. 試薬等

農薬標準品は Dr. Ehrenstorfer 製、Riedel-de Haën 社製を用いた。農薬混合標準溶液 (PL-1-1、PL-2-1、PL-3-1、PL-4-1、PL-5-1、PL-6-2、PL-9-1、PL-13-1) は和光純薬工業 (株) 製を用いた。

ポリエチレングリコール 300 (PEG300) はナカライテスク社製を用いた。その他の試薬は既報<sup>1)</sup>に準じた。

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

Food group number	Food group	Number of the diet samples	Daily intake (g)
I	Rice	5	313.3
II	Cereals, potatoes and nuts	23	168.4
III	Sugar and confectioneries	15	35.2
IV	Fat and oils	6	10.4
V	Pulses and its processed	16	52.4
VI	Fruits	15	99
VII	Colored vegetables	20	100
VIII	Vegetables, seaweeds and mushrooms	29	186
IX	Preference beverages	16	727.8
X	Fishes and sea foods	26	82.3
X I	Meat and eggs	12	127
X II	Milk and dairy products	8	120
X III	Spices	21	103.4
X IV	Drinking water	1	600
		213	

## 6. 試験方法

IV群を除く食品群の各農薬等の試験方法は、通知法の穀類、豆類及び種実類の場合に準じて実施した。IV群は既報<sup>1)</sup>により実施した。試験溶液はアセトン及びヘキサン(1:1)混液で1mLとし、そのうち0.5mLを分取し、PEG300が1注入あたり500ngとなるよう、2.5%PEGアセトン溶液10 $\mu$ Lを加えアセトン及びヘキサン(1:1)混液で1mLとし、PEG入り試験溶液とした。

試験は3併行で行った。

## 7. 標準溶液の調製

ヘプタクロル、ヘプタクロルエポキシドA及びヘプタクロルエポキシドBの各標準品はヘキササンで1000  $\mu$ g/mLとなるように溶解し、各々20  $\mu$ g/mLとなるよう混合、調製し、ヘプタクロル混合標準溶液とした。

各農薬混合標準溶液及びヘプタクロル混合標準溶液は混合しアセトンで1 $\mu$ g/mLの混合標準溶液を調製した。

混合標準溶液はアセトン及びヘキサン(1:1)混液で希釈し0.002~0.1  $\mu$ g/mLの濃度に調製した。

混合標準溶液に2.5%PEG300アセトン溶液を1mLあたり10  $\mu$ L添加し、0.002~0.1  $\mu$ g/mLの測定用標準溶液とした。

## 8. マトリックス添加標準溶液の調製

本法により調製した食品群ごとの試験溶液の溶媒を窒素気流下で留去し、測定用標準溶液及び1注入あたりPEG300が500ngとなるように添加し、試料マトリックスを溶解した。0.002~0.05  $\mu$ g/mLのマトリックス添加標準溶液を調製した。

## 9. 分析装置及び測定条件

### 9-1. 分析装置

ガスクロマトグラフ・タンデム型質量分析計(GC-MS/MS): Agilent Technologies 製 GC/MS Triple quad 7000B

### 9-2. 測定条件

調査対象農薬については、下記の条件で実施した。

#### 9-2-1.GC部

通知法<sup>\*1</sup>の分析条件に準じた。

注入口: スプリット/スプリットレス、注入口温度: 250 $^{\circ}$ C、注入量: 2 $\mu$ L、カラム: バリアンテクノロジー社製 VF-5ms 30m  $\times$  0.25mm  $\times$  0.25 $\mu$ m、ガードカラム: VF-5ms 1m  $\times$  0.25mm  $\times$  0.25 $\mu$ m、リストラクタ: Agilent Technologies 社製 DB-5MS UI Restrictor (1.1m  $\times$  0.150mm  $\times$  0.15 $\mu$ m)、キャリアーガス: ヘリウム、リテンションタイムロッキング: クロロピリホスメチルの保持時間を14.011分に設定、カラムオープン温度: 50 $^{\circ}$ C (1分) - 25 $^{\circ}$ C / 分 - 125 $^{\circ}$ C (0分) - 10 $^{\circ}$ C / 分 - 300 $^{\circ}$ C (10分)、バックフラッシュ機能を用いて300 $^{\circ}$ C、6.6397分間のポストランを実施、トランスファーライン: 280 $^{\circ}$ C

バックフラッシュ装置: 3ウェイスプリッタ、アウトレット: AUX EPC、カラム出口圧: 2 psi (ポストラン中は60 psi)、注入口圧力: 2 psi (ポストラン)

#### 9-2-2.MS/MS部

イオン源: EI、イオン源温度: 280 $^{\circ}$ C、四重極温度: 150 $^{\circ}$ C、コリジョンセル: 窒素ガス、測定モード: マルチブルリアクションモニタリング(MRM)モード

測定条件はTable 3に記した。

なお、GC-MS/MSシステムのコントロール及びデータ解析には、Agilent Mass Hunter ソフトウェアを用いた。

## 10. 定量法

PEG入り試験溶液、測定用標準溶液又はマトリックス添加標準溶液をGC-MS/MSに注入し、得られたMRMクロマトグラムのピーク面積から、絶対検量線法により試料中の濃度を定量した。

定量下限値は、食品群ごとに標準溶液またはマトリックス添加標準溶液をGC-MS/MSで測定し、MRMクロマトグラムのシグナル/ノイズ $\geq$ 10となる濃度から算出した。

\*1 厚生労働省医薬食品局食品安全部長通知、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。食安発第0124001号(2005)。

Table 3. Operational parameters of the tandem mass spectrometer for the identification of the 28 pesticides.

Compounds	t <sub>R</sub> <sup>a)</sup> (min.)	Transition, m/z MS <sub>1</sub> >MS <sub>2</sub> <sup>b)</sup>		CE <sup>c)</sup> (eV)
Monochlorophos	8.93	192	127	4
Methacrifos	9.75	208	180	4
Propoxur	11.03	110	64	18
Dicloran	12.47	206	176	12
Atrazine	12.59	215	173	4
Alachlor	14.13	237	160	8
Heptachlor	14.37	272	237	18
Fenthion	15.01	278	109	22
Fthalide	15.41	243	215	16
Fipronil	15.63	351	255	16
Heptachlor epoxide B	15.86	183	155	12
Heptachlor epoxide A	15.95	353	263	16
Triadimenol I	15.97	128	65	22
Triadimenol II	16.12	128	65	22
Methidathion	16.23	145	85	4
Endosulfan (α)	16.60	205	170	16
Hexaconazole	16.74	175	111	16
Bupirimate	16.96	273	193	4
Tricyclazole	17.01	189	162	10
Chlorphenapyr	17.16	328	247	22
Endosulfan sulfate	17.75	270	235	10
Endosulfan (β)	17.75	205	170	16
Triazophos	17.96	257	162	8
Propargite	18.64	135	107	10
Tebuconazole	18.71	250	125	30
Iprodione	19.12	314	245	8
Bromopropylate	19.36	341	183	16
Methoxychlor	19.45	227	169	26
Bitertanol I	21.03	170	115	36
Bitertanol II	21.14	170	115	36
Pyridaben	21.26	147	117	22
Etofenprox	22.28	163	107	20
Deltamethrin I	23.76	253	174	8
Deltamethrin II	24.06	253	93	16
Tolfenpyrad	24.76	383	171	32

a) Retention time

b) MS<sub>1</sub>,precursor ion; MS<sub>2</sub>,product ion

c) Collision Energy

### 11. 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。

## 結果

### 1. 定量法

定量下限値はTable 4に示した。定量下限値は目標とする0.01 µg/gを概ね満足したが、農薬と食品群の組み合わせにより、イプロジオン0.1µg/g、デルタメトリン0.04 µg/gと高くなった。

### 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

群における各農薬の回収率の中央値は91～170%の範囲であった。

## 3. 調査結果

I～X IV群の試料について28農薬を測定した結果、Ⅵ群からメチダチオン0.005 µg/g、トルフェンピラド0.008 µg/g、Ⅶ群からイプロジオン0.03 µg/g、Ⅷ群からクロルフェナピル0.004 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

測定は測定用標準溶液を用い、添加回収試験の回収率が120%より大きい場合はマトリックスの影響があると考えられたので、試験溶液を4倍希釈して測定を行った。それでも、マトリックスの影響が低減されない場合はマトリックス添加標準溶液を用いて測定した。

I群(穀類)、Ⅶ群(緑黄色野菜)、Ⅷ群(緑黄色野菜以外の野菜類、きのこ類、海藻類)及びX IV群(飲料水)は測定用標準溶液で測定したところ、回収率が120%を超えた農薬は28農薬中0～6農薬であった。回収率の中央値が120%を超えた農薬はイプロジオン、デルタメトリン、プロボクスルで、メタクリホスは68%であった。その他の農薬は中央値が70%以上、120%以下の範囲内であった。残留農薬分析法検討会が農産物を対象に検討した結果<sup>\*2</sup>によると、デルタメトリンは中央値が70%以上、120%以下の範囲内であるという判定であるものの玄米では144%とやや高め、メタクリホスは中央値が50%以上、70%未満と判定されているので、I群、Ⅶ群、Ⅷ群、X IV群の試料では農産物とほぼ同様の結果であった。イプロジオンは、通知法ではLC/MSによる農薬等の一斉試験法I(農産物)の対象となっているので、適用がやや難しい農薬であるといえる。

Ⅱ群(穀類、種実類、いも類)、Ⅲ群(砂糖類、菓子類)、Ⅴ群(豆類)、Ⅵ群(果実類)、Ⅸ群(調味料・嗜好飲料)、X群(魚介類)及びX II群(乳類)は、測定用標準溶液で測定すると28農薬中11～27農薬が回収率120%を超えたので、試験溶液を4倍希釈して測定した。回収率が120%を超えた農薬は5～12農薬となり、マトリックスの影響は低減された。イプロジオン、デルタメトリン、トリアゾホス、トルフェンピラド、ピテルタノール、フィプロニル、メトキシクロールを除く農薬は、中央値が70%以上、120%以下の範囲内であった。トルフェンピラド、ピテルタノールは残留農薬分析法検討会が農産物を対象に検討した結果<sup>\*2</sup>によると平均回収率の中央値が

\*2 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>) (2011.6.13現在)。

Table 4. Minimum limits of determination for the 28 pesticides in the diet samples through the gas chromatograph-tandem mass spectrometric analysis.

Pesticides	Compounds	Minimum determination limit (µg/g)													
		Food group													
		I	II	III	IV	V	VI	VII	VIII	IX	X	X I	X II	X III	X IV
Alachlor	Alachlor	0.002	0.005	0.005	0.005	0.005	0.005	0.002	0.002	0.005	0.005	0.01	0.005	0.02	0.002
Atrazine	Atrazine	0.002	0.002	0.002	0.005	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002	0.005	0.002	0.01	0.002
Bitertanol	Bitertanol I	0.001	0.001	0.001	0.003	0.001	0.001	0.001	0.001	0.002	0.001	0.003	0.001	0.004	0.001
	Bitertanol II	0.004	0.006	0.006	0.02	0.006	0.006	0.002	0.001	0.008	0.006	0.02	0.005	0.02	0.002
Bromopropylate	Bromopropylate	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
Bupirimate	Bupirimate	0.002	0.002	0.002	0.005	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002
Chlorphenapyr	Chlorphenapyr	0.002	0.01	0.005	0.002	0.002	0.005	0.002	0.002	0.01	0.005	0.002	0.002	0.005	0.005
Deltamethrin	Deltamethrin I	0.02	0.03	0.03	0.02	0.02	0.04	0.006	0.01	0.04	0.02	0.02	0.02	0.02	0.01
	Deltamethrin II	0.02	0.03	0.04	0.02	0.04	0.03	0.01	0.005	0.03	0.03	0.02	0.04	0.02	0.01
Dicloran	Dicloran	0.01	0.03	0.005	0.01	0.002	0.02	0.002	0.002	0.03	0.01	0.005	0.02	0.005	0.01
	Endosulfan	Endosulfan (α)	0.002	0.002	0.002	0.005	0.005	0.005	0.002	0.002	0.002	0.005	0.002	0.005	0.005
Endosulfan	Endosulfan (β)	0.002	0.005	0.005	0.005	0.005	0.01	0.002	0.002	0.005	0.005	0.005	0.01	0.01	0.002
	Endosulfan sulfate	0.002	0.01	0.005	0.02	0.005	0.005	0.002	0.002	0.01	0.01	0.002	0.01	0.002	0.002
	Etofenprox	Etofenprox	0.002	0.002	0.002	0.005	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002	0.01
Fenthion	Fenthion	0.002	0.002	0.005	0.005	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002	0.005	0.005	0.002	0.002	0.002
Fipronil	Fipronil	0.002	0.005	0.01	0.002	0.005	0.002	0.002	0.002	0.01	0.01	0.005	0.005	0.005	0.002
Fthalide	Fthalide	0.002	0.01	0.002	0.002	0.005	0.01	0.002	0.002	0.01	0.005	0.002	0.01	0.002	0.002
Heptachlor	Heptachlor	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
	Heptachlor epoxide A	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
	Heptachlor epoxide B	0.005	0.02	0.02	0.02	0.02	0.02	0.005	0.002	0.01	0.01	0.02	0.01	0.04	0.002
Hexaconazole	Hexaconazole	0.002	0.005	0.01	0.01	0.01	0.005	0.002	0.002	0.005	0.005	0.005	0.005	0.002	0.002
Iprodione	Iprodione	0.02	0.1	0.04	0.03	0.03	0.03	0.02	0.01	0.04	0.04	0.04	0.05	0.02	0.02
Methacrifos	Methacrifos	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
Methidathion	Methidathion	0.002	0.01	0.01	0.002	0.01	0.002	0.002	0.002	0.005	0.005	0.005	0.005	0.002	0.002
Methoxychlor	Methoxychlor	0.002	0.002	0.002	0.005	0.002	0.002	0.002	0.002	0.01	0.005	0.005	0.005	0.005	0.002
Monochlotophos	Monochlotophos	0.002	0.01	0.005	0.005	0.01	0.01	0.002	0.002	0.005	0.005	0.002	0.005	0.005	0.002
Propargite	Propargite	0.002	0.01	0.01	0.05	0.02	0.02	0.002	0.005	0.01	0.01	0.02	0.02	0.01	0.002
Propoxur	Propoxur	0.005	0.02	0.02	0.01	0.02	0.02	0.005	0.002	0.02	0.01	0.01	0.02	0.01	0.005
Pyridaben	Pyridaben	0.002	0.002	0.005	0.01	0.005	0.005	0.002	0.002	0.002	0.002	0.005	0.002	0.01	0.002
Tebuconazole	Tebuconazole	0.002	0.002	0.002	0.005	0.002	0.005	0.002	0.002	0.005	0.005	0.005	0.005	0.005	0.002
Tolfenpyrad	Tolfenpyrad	0.002	0.005	0.01	0.005	0.01	0.005	0.002	0.01	0.01	0.005	0.01	0.01	0.005	0.002
Triadimenol	Triadimenol I	0.001	0.003	0.003	0.01	0.003	0.003	0.001	0.001	0.004	0.003	0.008	0.002	0.008	0.001
	Triadimenol II	0.001	0.001	0.001	0.02	0.001	0.001	0.001	0.001	0.002	0.001	0.003	0.001	0.003	0.001
Triazophos	Triazophos	0.002	0.005	0.002	0.01	0.002	0.005	0.002	0.002	0.005	0.005	0.005	0.005	0.005	0.002
Tricyclazole	Tricyclazole	0.005	0.01	0.01	0.06	0.01	0.01	0.002	0.002	0.02	0.02	0.02	0.02	0.01	0.005

120%より大きいと判定されていることから、通知法の適用がやや難しい農薬であるといえる。

X I 群（肉類・卵類）及びX III 群（その他の食品）は測定用標準溶液を用い試験溶液を希釈して測定したところ、28 農薬中 22 農薬の回収率が 120%を超え、マトリックスの影響を低減することができなかったため、マトリックス添加標準溶液を用いて測定した。その結果、すべての農薬について中央値が 70%以上、120%以下の範囲内となり、マトリックス添加標準溶液を用いることで測定できた。

IV 群（油脂類）は他の食品群と同様に試験溶液を調製し、マトリックス添加標準溶液を用いて測定したところ 28 農薬中 19 農薬が回収率 120%を超えたので、既報<sup>1)</sup>により試験溶液を調製し、マトリックス添加標準溶液で測定した。回収率が 120%を超えたのはイプロジオンのみであった。ジクロラン、トリシクラゾールの回収率は 50%以上、70%未満、ヘキサコナゾール、ブピリメート、テブコナゾールは 50%未満であった。

農薬ごとに見ると食品群ごとに回収率が異なり、50%未満となった農薬と食品群は、ヘキサコナゾール（IV 群）、ブピリメート（IV 群）、テブコナゾール（IV 群）、ジクロラン（X IV 群）、メタクリホス（X IV 群）、プロパルギット（X IV 群）、トリシクラゾール（X IV 群）であった。

## 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<sup>\*3</sup> 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、0.06 ~ 0.99%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. 検出農薬

本調査で検出された農薬の一日摂取量調査での検出状況は、厚生労働省から発表された平成 17 年度～20 年度食品中の残留農薬の一日摂取量調査結果<sup>\*4</sup>によれば、トルフェンピラドが VII 群から 0.037ppm 検出されているが、その他の農薬は検出されていない。

\* 3 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](http://www.nihs.go.jp/hse/food-info/pest_res/index.html)) (2011.6.13 現在)。

\* 4 平成 17 年度～20 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/stf/shingi/2r9852000000dxfatt/2r9852000000ilqt.pdf>) (2011.6.13 現在)。

Table 5. Recoveries of the 28 pesticides from the diet sample in each food group.

Pesticides	Compounds	Recovery (%)														Median of recovery (%)
		Food group														
		I	II	III	IV	V	VI	VII <sup>a)</sup>	VIII	IX	X	XI <sup>a)</sup>	XII	XIII	XIV <sup>a)</sup>	
Alachlor	Alachlor	118	111	121	108	112	115	100	79	125	117	107	113	105	94	111
Atrazine	Atrazine	124	114	118	105	116	122	108	79	115	120	107	110	103	98	112
Bitertanol <sup>b)</sup>		114	123	128	104	166	117	98	97	116	148	107	126	97	89	115
Bitertanol	Bitertanol I	112	117	122	102	149	114	99	94	112	146	106	122	97	87	112
Bitertanol	Bitertanol II	116	128	135	105	183	121	98	100	121	150	108	130	98	91	118
Bromopropylate	Bromopropylate	118	108	121	109	129	112	102	87	111	144	103	111	101	92	110
Bupirimate	Bupirimate	113	108	111	25	109	109	98	72	108	105	102	103	101	89	104
Chlorphenapyr	Chlorphenapyr	115	115	103	109	117	121	102	70	116	109	112	109	92	96	109
Deltamethrin <sup>b)</sup>		118	170	181	115	258	192	134	183	226	376	113	169	104	91	170
Deltamethrin	Deltamethrin I	117	177	183	110	252	185	118	163	227	333	115	172	103	90	168
Deltamethrin	Deltamethrin II	120	163	179	120	263	198	151	203	224	420	112	167	104	93	165
Dicloran	Dicloran	108	84	105	56	79	87	103	74	109	90	98	102	98	45	94
Endosulfan	Endosulfan	109	110	114	105	110	115	94	73	111	117	108	103	101	91	108
Endosulfan (α)	Endosulfan (α)	103	111	109	105	105	112	89	69	109	116	110	99	100	88	105
Endosulfan (β)	Endosulfan (β)	114	108	118	105	114	119	98	76	113	119	106	106	103	94	107
Endosulfan sulfate	Endosulfan sulfate	111	114	116	112	115	121	95	71	109	118	105	107	107	92	110
Etofenprox	Etofenprox	107	116	119	102	123	113	102	95	108	139	107	116	102	92	108
Fenthion	Fenthion	112	107	110	103	105	111	87	67	111	105	105	104	105	83	105
Fipronil	Fipronil	121	132	139	117	133	134	101	55	135	142	104	115	100	103	119
Fthalide	Fthalide	118	107	112	106	111	115	97	79	116	109	104	105	106	86	107
Heptachlor <sup>b)</sup>		100	107	104	101	104	104	90	72	104	106	103	98	106	80	104
Heptachlor	Heptachlor	95	102	97	89	98	98	89	77	99	105	94	93	104	71	96
Heptachlor	Heptachlor epoxide A	103	112	108	106	104	106	89	69	105	106	108	99	105	84	105
Heptachlor	Heptachlor epoxide B	103	106	108	107	109	108	91	70	108	107	108	103	107	85	107
Hexaconazole	Hexaconazole	107	108	108	21	106	101	92	73	103	114	95	106	100	83	102
Iprodione	Iprodione	119	160	201	127	290	156	120	180	218	233	112	148	119	99	152
Methacrifos	Methacrifos	81	93	93	105	105	89	64	73	89	102	77	97	100	47	91
Methidathion	Methidathion	121	106	113	110	110	91	101	66	111	110	104	104	103	74	105
Methoxychlor	Methoxychlor	120	111	122	95	125	126	98	83	112	142	100	112	113	119	113
Monochlotophos	Monochlotophos	100	95	94	109	107	101	98	93	104	109	91	100	100	67	100
Propargite	Propargite	110	109	110	109	82	114	93	79	94	119	104	103	96	47	104
Propoxur	Propoxur	121	106	119	116	123	117	144	140	116	143	95	121	110	86	118
Pyridaben	Pyridaben	107	113	137	99	134	112	100	74	110	126	98	119	100	84	109
Tebuconazole	Tebuconazole	111	103	109	37	115	108	95	72	113	117	103	106	102	87	105
Tolfenpyrad	Tolfenpyrad	112	134	206	101	124	102	99	82	116	146	103	183	100	89	107
Triadimenol <sup>b)</sup>		116	109	116	107	111	113	101	78	109	112	106	115	102	93	109
Triadimenol	Triadimenol I	113	109	116	106	109	111	98	74	106	108	106	112	101	90	107
Triadimenol	Triadimenol II	118	109	117	108	114	116	104	81	112	117	105	118	104	96	110
Triazophos	Triazophos	135	111	121	109	132	117	112	97	123	146	98	128	107	103	115
Tricyclazole	Tricyclazole	89	96	112	59	101	110	75	72	121	100	92	99	106	49	98

a) Each recovery is represented as the mean of three trials.

b) The recovery of bitertanol , deltamethrin , heptachlor , triadimenol are represented as the mean of their isomers.

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

Pesticides	Food group number	Residue (μg/g) <sup>a)</sup>	Daily intake of each food group (g) <sup>b)</sup>	Daily intake of the pesticide remaining in each food group (μg) <sup>c)</sup>	ADI (mg/kg/day) <sup>d)</sup>	ADI ratio (%) <sup>e)</sup>
Chlorphenapyr	VIII	0.004	186	0.74	0.026	0.06
Iprodione	VII	0.03	100	3.0	0.06	0.10
Methidathion	VI	0.005	98.96	0.49	0.001	0.99
Tolfenpyrad	VI	0.008	98.96	0.79	0.0056	0.28

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 2007.

c) Daily intake of the pesticide (μg)=residue(μg/g) × 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 .

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

検出農薬が調査対象食品のどの食品に由来しているかを国内登録の有無、国内での検出状況から推測すると、検出された農薬はいずれも国内で登録されていた。本調査で購入したⅥ群、Ⅶ群、Ⅷ群の食品は、Ⅵ群の2食品を除いてすべて国産品であり、その中では、Ⅵ群ではメチダチオンはみかん、かんきつ、りんご、かき、なしに、トルフェンピラドはかんきつ、なしに登録されている。イプロジオンはⅦ群の食品の中ではトマト、にんじん、ピーマン、ねぎ、とうがらし、みぶなに、クロルフェナピルは、Ⅷ群の食品のうちキャベツ、きゅうり、大根、はくさい、かぶに登録がある。食品中の残留農薬の検出状況は、東京都はトルフェンピラド以外のこれら3農薬を含む残留農薬調査を実施しており、平成21年度の国内産野菜・果実類中の残留農薬実態調査の結果<sup>2)</sup>によると、メチダチオン、イプロジオン、クロルフェナピルの検出事例が報告されている。また、1998年から2009年に全国から報告された残留農薬等のデータについて国立医薬品食品衛生研究所が解析した結果<sup>\*5)</sup>によると、最近、複数残留する農薬等のうちの1つにクロルフェナピルがあげられている。このことから、本調査で検出されたこれら農薬は食品での残留頻度が比較的高い農薬であったと考えられる。

加えて、Ⅶ群、Ⅷ群の食品ではすべて国産品であったことから、国内で使用された農薬が残留し検出されたと

推測される。Ⅵ群についても同様の可能性があるが、2食品、有機いちごジャムの原材料については原産地の表示がなく、グレープジュースは原材料が輸入品であり、これらの食品からの農薬の検出事例などのデータもないため、どの食品に由来しているのかまでは言及できない。

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

本調査は厚生労働省の調査事業である「平成22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) 大藤升美, 茶谷祐行, 土田貴正, 太田浩子. 2010. 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. 京都府保健環境研究所年報, 55, 52-61.
- 2) 上條恭子, 小林麻紀, 大塚健治, 田村康宏, 富澤早苗, 岩越景子, 佐藤千鶴子, 永山敏廣, 高野伊知郎. 2010. 国内産野菜・果実類中の残留農薬実態調査－平成21年度－. 東京都健康安全研究センター研究年報, 61, 281-287.

\* 5 松田りえ子, 五十嵐敦子, 渡邊敬浩. 2010. 食品から検出される残留農薬等の年次推移. 第47回全国衛生化学技術協議会年会講演集, 78-79.