

短報

福岡県における食品中残留農薬等の摂取量調査—2018年度—

佐藤環・小木曾俊孝・安武大輔・堀就英

福岡県における食品中残留農薬等の一日摂取量調査を実施した。2018年度の当該調査は15農薬16成分を対象として分析法の検討及び摂取量の推定を行った。摂取量推定に用いた分析法の定量下限は目標とする感度を十分に満足した。また、各食品群および成分の添加回収率は10-111%であった。摂取量調査の結果、9の食品群から1-5種類の農薬（のべ26農薬）が検出された。各農薬について算出した一日摂取量の対ADI比はいずれも1%未満となり、健康に影響を及ぼす量ではないと考えられた。

[キーワード：残留農薬等、一日摂取量調査]

1 はじめに

県民が日常の食事を介して食品中に残留する農薬等などの程度摂取しているかを把握することは、食の安全を確保する上で極めて重要である。その有効な手法の一つとして、厚生労働省が公表している“国民健康・栄養調査”に基づき地域ごとの食品摂取量を考慮したマーケットバスケット方式による残留農薬等の一日摂取量調査がある。今回、本調査方法を用いて福岡県における食品中残留農薬等の摂取量調査を実施した。2018年度は、15農薬16成分の農薬等を対象として分析法を検討し、摂取量の推定を行った。

表1 調査対象試料

| 食品群 | 食品分類 | 北部九州地域の食品群別摂取量 | 混合食品数 |
|------|----------------|----------------|-------|
| I | 米・米加工品 | 344.7 g | 6 |
| II | その他穀類・いも類・種実類 | 162.6 g | 21 |
| III | 砂糖・菓子類 | 32.8 g | 12 |
| IV | 油脂類 | 9.5 g | 5 |
| V | 豆・豆加工品 | 59.2 g | 11 |
| VI | 果実類 | 96.7 g | 15 |
| VII | 緑黄色野菜 | 89.1 g | 13 |
| VIII | その他の野菜・キノコ類・藻類 | 191.7 g | 19 |
| IX | 嗜好飲料類 | 678.8 g | 11 |
| X | 魚介類 | 71.1 g | 21 |
| XI | 肉類・卵類 | 126.9 g | 9 |
| XII | 乳・乳製品 | 113.0 g | 9 |
| XIII | 調味料類 | 89.0 g | 19 |
| XIV | 飲料水 | 600 mL | 1 |

2 方法

2・1 調査対象試料

“国民健康・栄養調査”における食品分類I-XIIIの各食品群に飲料水（XIV群）を加えた全14群のマーケットバスケット試料を調査対象とした。平成23-25年の“国民健康・栄養調査”を集計して得られた北部九州地域の食品群別摂取量に基づき、食品の構成及び重量を定めた。偏りのないように適宜選んだ食品（計172種類）から、必要量を分別し、必要に応じ調理し、食品群ごとに均一に混合して試料を調製した（表1）。I、II及びIII群については、適量の蒸留水を用いて加水して試料調製を行った。

表2 測定対象農薬の種類及びADI

| 農薬名 | 種類 | ADI ¹⁾ (µg/kg/day) |
|-----------|-----------------|----------------------------------|
| アセタミプリド | ネオニコチノイド系殺虫剤 | 71 |
| アゾキシストロビン | ストロビルリン系殺菌剤 | 180 |
| イマザリル | イミダゾール系殺菌剤 | 25 |
| イミダクロプリド | ネオニコチノイド系殺虫剤 | 57 |
| クロチアニジン | ネオニコチノイド系殺虫剤 | 97 |
| シアゾフファミド | シアノイミダゾール系殺菌剤 | 170 |
| ジノテフラン | ネオニコチノイド系殺虫剤 | 220 |
| シプロジニル | アニリノピリミジン系殺菌剤 | 27 |
| チアクロプリド | ネオニコチノイド系殺虫剤 | 12 |
| チアベンダゾール | ベンゾイミダゾール系殺菌剤 | 100 |
| チアトキサム | ネオニコチノイド系殺虫剤 | 18 |
| ピラクロストロビン | ストロビルリン系殺菌剤 | 34 |
| フルフェノクスロン | ベンゾイルフェニル尿素系殺虫剤 | 37 |
| ボスカリド | アニリド系殺菌剤 | 44 |
| ルフエスロン | ベンゾイルフェニル尿素系殺虫剤 | 14 |

2・2 調査対象農薬

自治体及び検疫所等におけるモニタリング検査において検出事例のある農薬等のうち比較的検出頻度の高い成分の中から15農薬16成分を選択し調査対象とした。対象農薬の種類及び一日摂取許容量（ADI）（µg/kg/day）¹⁾を表2に示した。

2・3 標準品

各農薬の標準品（残留農薬試験用）は以下に示すものを用いた。アセタミプリド、アゾキシストロビン、イマザリル、イミダクロプリド、シアゾフファミド、ジノテフラン、シプロジニル、5-ヒドロキシチアベンダゾール、チアベンダゾール、ピラクロストロビン、フルフェノクスロン、ボ

福岡県保健環境研究所（〒818-0135 太宰府市大字向佐野39）

スカリドは富士フィルム和光純薬社製、クロチアニジン、チアクロプリド、チアメトキサム、ルフェヌロンはDr.Ehrenstofer社製を用いた。各標準品10 mgを精秤後、メタノールで100 mLに定容し標準原液(100 µg/mL)とした。この標準原液を適宜混合希釈し、標準物質の添加及び検量線の作成に用いた。

2・4 試薬

アセトニトリル(残留農薬・PCB試験用)、アセトン(ダイオキシン分析用)、塩化ナトリウム(残留農薬・PCB試験用)、蒸留水(LC/MS用)、蒸留水(ヘキサシ洗浄品、残留農薬・PCB試験用)、ヘキサシ(ダイオキシン分析用)、メタノール(LC/MS用)は関東化学社製を用いた。1 mol/L塩酸、1 mol/L酢酸アンモニウム水溶液、ギ酸(LC/MS用)、クエン酸三ナトリウム2水和物(特級)、クエン酸水素二ナトリウム1.5水和物(特級)、無水硫酸マグネシウム(特級)は富士フィルム和光純薬社製を用いた。

Oasis HLB(60 mg)固相カラムはWaters社製、Smart-SPE C18(30 mg)、Smart-SPE C18(50 mg)、Smart-SPE PSA(30 mg)はアイスティサイエンス社製、フィルター付きバイアル(PTFE、0.45 µm)はGEヘルスケア社製を用いた。

2・5 装置及び測定条件

装置及び測定条件は既報²⁾に従った。なお、新たに測定項目として追加したジノテフランの保持時間は3.3分、MRM条件はコーン電圧18V、定量イオン203.2>129.1(コリジョンエネルギー:12eV)、定性イオン203.2>113.4(10eV)に設定した。

2・6 分析法

各食品群及び各農薬成分の分析法を以下に示した。各食品群について3試行で行った。また、定量に用いる検量線用標準溶液の溶媒組成は試験溶液に合わせた。

2・6・1 I群—XIII群分析法

試料10 gにアセトニトリル10 mLを加え1分間ホモジナイズした。続いて、塩化ナトリウム1 g、クエン酸三ナトリウム2水和物1 g、クエン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、1分間手振りで振とうした。遠心分離(3000rpm、10分間)後、アセトニトリル層1 mLを分取し、Smart-SPE C18(30 mg)とSmart-SPE PSA(30 mg)固相ミニカラムの連結カラムに通液し、0.4%ギ酸含有メタノール1 mLで溶出した。溶出液に蒸留水0.5 mLを加え混合した後、Smart-SPE C18(50 mg)固相ミニカラムに通液し、メタノール/蒸留水(4/1)混液1 mLで溶出した。溶出液を蒸留水で4 mLに定容し試験溶液とした。

2・6・2 XIV群分析法

試料20 mLを採取後、1 mol/L塩酸を20 µL添加しpHを4.0に調整した。続いて、試料全量をOasis HLB(60 mg)固相カラムに流速約10 mL/minで通液した。蒸留水0.5 mLでカラムを洗浄後5分間乾燥した。最後に、メタノール4 mLで溶出し定容したものをアセトニトリル/0.4%ギ酸含有メタノール/蒸留水(1/1/1)で4倍希釈し試験溶液とした。

2・7 定量下限の算出

空試験の測定で得られたクロマトグラム上における農薬等に由来するピークの近傍(ピークの半値幅の10倍の範囲)のノイズを計測し、その最大値と最小値の差の5分の2をノイズの標準偏差とした。ノイズの標準偏差の10倍に等しいピーク高さに相当する農薬等の試料中濃度を定量下限(µg/g、XIV群はµg/mL)とした。I、II及びIII群については、加水した重量を差し引いて算出した。

2・8 添加回収試験

添加回収試験は1試行(再現性の確認のため、VII群、XI群およびXIV群については3試行)で実施した。採取した各群試料に、試料中濃度として0.01 µg/gとなるように混合標準溶液を添加後、上記の分析方法に従い試験溶液を調製し測定を行った。各農薬成分の添加量(µg)に対する試料中の測定絶対量(µg)を回収率として算出した。試料から検出された場合は、試料中濃度を差し引いた後に算出した。

2・9 摂取量の推定

算出した試料中濃度(µg/g)から、各農薬の一日摂取量を推定した。また、推定した一日摂取量(µg/kg/day)のADI(µg/kg/day)に占める割合(対ADI比)を算出した。

3 結果及び考察

3・1 定量下限の算出

算出した定量下限を表3に示した。全ての分析法及び成分において、定量下限は目標とする感度(0.01 µg/g)を十分に満たしていた。

3・2 添加回収試験

各食品群に対する添加回収試験結果を表4のa)に示した。全食品群における全成分の回収率は10—111%であった。

また、既報の方法²⁾を用いてマトリックスの影響を確認し回収率の補正を試みた(表4のb)。その結果、農薬成分の90%以上が目標値である70—120%を満足した。このことから、測定時の試料マトリックスの影響が真度の目標値を満たさなかった主な原因であると考えられた。

表3 測定対象農薬の食品群ごとの定量下限(μg/g XIV群はμg/mL)

| 農薬名(成分名) | 食品群 | | | | |
|---------------------------|-----------|----------|----------|----------|----------|
| | I | II | III | IV-XIII | XIV |
| アセタミプリド | 0.00003 | 0.00003 | 0.00004 | 0.00004 | 0.00005 |
| アゾキシストロビン | 0.00007 | 0.00007 | 0.00008 | 0.00009 | 0.00001 |
| イマザリル | 0.0002 | 0.0002 | 0.0002 | 0.0003 | 0.00006 |
| イミダクロプリド | 0.00004 | 0.00004 | 0.00004 | 0.00005 | 0.00001 |
| クロチアニジン | 0.00002 | 0.00002 | 0.00003 | 0.00003 | 0.00001 |
| シアゾファミド | 0.000003 | 0.000003 | 0.000004 | 0.000004 | 0.000005 |
| ジノテフラン | 0.0003 | 0.0003 | 0.0003 | 0.0003 | 0.0001 |
| シプロジニル | 0.00007 | 0.00007 | 0.00008 | 0.00008 | 0.00002 |
| チアクロプリド | 0.0000008 | 0.000001 | 0.000001 | 0.000001 | 0.000003 |
| チアベンダゾール(5-ヒドロキシチアベンダゾール) | 0.00003 | 0.00003 | 0.00003 | 0.00003 | 0.00007 |
| チアベンダゾール(チアベンダゾール) | 0.0000009 | 0.000001 | 0.000001 | 0.000001 | 0.000001 |
| チアメトキサム | 0.000004 | 0.000004 | 0.000005 | 0.000005 | 0.000001 |
| ピラクロストロビン | 0.0001 | 0.0001 | 0.0001 | 0.0001 | 0.00002 |
| フルフェノクスロン | 0.00006 | 0.00006 | 0.00007 | 0.00007 | 0.000001 |
| ボスカリド | 0.0001 | 0.0001 | 0.0002 | 0.0002 | 0.00001 |
| ルフェヌロン | 0.0006 | 0.0006 | 0.0007 | 0.0008 | 0.0002 |

表4 測定対象農薬の食品群ごとの添加回収試験結果

| 農薬名(成分名) | 食品群 | | | | | | | | | | | | | | |
|-------------------------------|-----|-----|-----|-----|-----|-----|-----|-----|------|-----|-----|-----|-----|------|-----|
| | | I | II | III | IV | V | VI | VII | VIII | IX | X | XI | XII | XIII | XIV |
| アセタミプリド | a) | 66 | 56 | 52 | 66 | 32 | 69 | 85 | 73 | 72 | 77 | 98 | 97 | 60 | 77 |
| | b) | 105 | 96 | 98 | 111 | 98 | 95 | 96 | 95 | 92 | 91 | 91 | 92 | 100 | 77 |
| アゾキシストロビン | a) | 56 | 52 | 51 | 58 | 78 | 89 | 102 | 94 | 88 | 80 | 98 | 97 | 84 | 77 |
| | b) | 105 | 106 | 101 | 115 | 119 | 100 | 102 | 93 | 94 | 96 | 95 | 97 | 98 | 78 |
| イマザリル | a) | 55 | 54 | 50 | 54 | 80 | 96 | 91 | 85 | 95 | 80 | 107 | 97 | 83 | 76 |
| | b) | 98 | 92 | 86 | 88 | 115 | 95 | 97 | 88 | 95 | 89 | 86 | 84 | 94 | 74 |
| イミダクロプリド | a) | 54 | 46 | 27 | 60 | 17 | 60 | 63 | 64 | 49 | 58 | 83 | 85 | 31 | 81 |
| | b) | 112 | 108 | 99 | 116 | 104 | 94 | 98 | 85 | 95 | 83 | 94 | 88 | 93 | 78 |
| クロチアニジン | a) | 50 | 32 | 19 | 57 | 14 | 45 | 42 | 41 | 33 | 38 | 82 | 75 | 25 | 84 |
| | b) | 97 | 92 | 90 | 113 | 119 | 90 | 85 | 89 | 88 | 85 | 88 | 86 | 101 | 78 |
| シアゾファミド | a) | 58 | 50 | 57 | 47 | 69 | 95 | 93 | 90 | 98 | 47 | 77 | 96 | 61 | 80 |
| | b) | 101 | 99 | 108 | 98 | 105 | 102 | 101 | 98 | 103 | 103 | 99 | 96 | 106 | 78 |
| ジノテフラン | a) | 51 | 46 | 21 | 69 | 29 | 48 | 44 | 61 | 29 | 50 | 79 | 59 | 16 | 76 |
| | b) | 95 | 97 | 88 | 120 | 114 | 91 | 73 | 90 | 89 | 81 | 88 | 88 | 95 | 73 |
| シプロジニル | a) | 62 | 56 | 46 | 21 | 69 | 98 | 101 | 100 | 97 | 79 | 78 | 103 | 93 | 77 |
| | b) | 103 | 92 | 75 | 34 | 93 | 103 | 118 | 96 | 99 | 74 | 70 | 90 | 84 | 78 |
| チアクロプリド | a) | 63 | 55 | 48 | 63 | 54 | 78 | 91 | 89 | 68 | 73 | 95 | 95 | 53 | 80 |
| | b) | 105 | 98 | 98 | 109 | 105 | 99 | 98 | 93 | 101 | 92 | 94 | 92 | 99 | 79 |
| チアベンダゾール (5-ヒドロキシチアベンダゾール) | a) | 42 | 34 | 27 | 53 | 40 | 61 | 70 | 74 | 83 | 30 | 64 | 78 | 49 | 77 |
| | b) | 72 | 57 | 49 | 90 | 70 | 69 | 68 | 72 | 90 | 33 | 61 | 74 | 80 | 80 |
| チアベンダゾール (チアベンダゾール) | a) | 56 | 49 | 45 | 41 | 46 | 76 | 91 | 87 | 90 | 59 | 87 | 94 | 73 | 79 |
| | b) | 95 | 85 | 74 | 69 | 98 | 95 | 91 | 92 | 93 | 74 | 77 | 84 | 94 | 79 |
| チアメトキサム | a) | 56 | 47 | 19 | 57 | 19 | 74 | 56 | 61 | 33 | 52 | 85 | 72 | 29 | 79 |
| | b) | 115 | 104 | 88 | 112 | 100 | 93 | 85 | 85 | 107 | 89 | 89 | 93 | 89 | 76 |
| ピラクロストロビン | a) | 61 | 57 | 58 | 46 | 74 | 100 | 84 | 97 | 92 | 68 | 78 | 92 | 55 | 76 |
| | b) | 108 | 105 | 102 | 84 | 102 | 103 | 94 | 97 | 93 | 93 | 88 | 91 | 96 | 74 |
| フルフェノクスロン | a) | 45 | 29 | 30 | 18 | 35 | 53 | 52 | 53 | 86 | 10 | 65 | 102 | 24 | 71 |
| | b) | 106 | 128 | 70 | 68 | 90 | 95 | 76 | 89 | 94 | 79 | 83 | 93 | 91 | 68 |
| ボスカリド | a) | 51 | 26 | 41 | 33 | 37 | 49 | 48 | 61 | 77 | 24 | 68 | 86 | 36 | 78 |
| | b) | 106 | 103 | 97 | 79 | 109 | 99 | 93 | 84 | 91 | 95 | 86 | 92 | 94 | 76 |
| ルフェヌロン | a) | 55 | 81 | 65 | 75 | 71 | 111 | 94 | 93 | 60 | 42 | 76 | 69 | 38 | 62 |
| | b) | 87 | 143 | 135 | 149 | 120 | 126 | 121 | 97 | 138 | 50 | 81 | 117 | 60 | 54 |

a) 添加回収率 (%)

b) マトリックス効果補正後の添加回収率 (%)

3・3 摂取量の推定

対象とした農薬の推定一日摂取量および対ADI比を表5に示した。II、V、X、XI及びXIV群を除く9の食品群からそれぞれ1-5種類の農薬（のべ26農薬）が定量下限を超えて検出された。また、検出された農薬の対ADI比は0.0004-0.09%であり、最大値は前年度とほぼ同等の割合であった。この結果は、添加回収試験結果を考慮しても十分に低い値であり、健康に影響を及ぼす量ではないと考えられた。

4 まとめ

マーケットバスケット方式による食品中残留農薬の一日摂取量調査を実施した。2018年度は、15農薬16成分の農薬等を対象として分析法の検討を行い、福岡県における摂取量の推定を行った。分析法を検討した結果、摂取量推定に用いた全ての分析法の定量下限は目標とする感度を十分に満たしていた。また、全食品群における全成分の添加回収率は10-111%であった。添加回収率が目標値を満た

さなかった主な原因は試験溶液中の試料マトリックスの影響と考えられ、多くの農薬成分についてはマトリックス効果の補正が有効であると考えられた。摂取量調査の結果、II、V、X、XI及びXIV群を除く9の食品群からそれぞれ1-6種類の農薬（のべ26農薬）が定量下限を超えて検出された。算出した一日摂取量の対ADI比はいずれも1%未満であり、健康に影響を及ぼす量ではないと考えられた。人が日常の食事を介して食品中に残留する農薬等をどの程度摂取しているかを把握することは、食の安全の確保に寄与するものであり、今後も継続的な調査が必要である。

文献

- 1) J A Turner, A World Compendium The Pesticide Manual Seventeenth Edition, 2015.
- 2) 佐藤環ら, 福岡県保健環境研究所年報, 44, 123-128, 2017.
- 3) 厚生労働省通知, 食安発1224第1号, 平成22年12月24日.

表5 対象農薬の推定一日摂取量及び対ADI比

| 農薬名 | 成分名 | 検出された食品群*1 | 推定一日摂取量*2 (µg/kg/day) | 対ADI比 (%) |
|-----------|-------------------------------|-----------------------|--------------------------|--------------|
| アセタミプリド | アセタミプリド | III、VI、VII、VIII、XIII | 0.0047 | 0.007 |
| アゾキシストロビン | アゾキシストロビン | VII(tr)、IX、XIII | 0.00131 | 0.0007 |
| イマザリル | イマザリル | VI | 0.022 | 0.09 |
| イミダクロプリド | イミダクロプリド | VII | 0.00041 | 0.0007 |
| クロチアニジン | クロチアニジン | VI、VII、VIII | 0.0048 | 0.005 |
| シアゾファミド | シアゾファミド | VII | 0.000956 | 0.0006 |
| ジノテフラン | ジノテフラン | I、VI、VII | 0.0500 | 0.02 |
| シプロジニル | シプロジニル | VI | 0.00054 | 0.002 |
| チアクロプリド | チアクロプリド | III | 0.000043 | 0.0004 |
| チアベンダゾール | チアベンダゾール及び 5-ヒドロキシチアベンダゾール | VI | 0.000694 | 0.0007 |
| チアメトキサム | チアメトキサム | VII、VIII | 0.0070 | 0.04 |
| ピラクロストロビン | ピラクロストロビン | VIII(tr) | 0 | 0 |
| フルフェノクスロン | フルフェノクスロン | III(tr)、IV、VII、XII | 0.023 | 0.06 |
| ボスカリド | ボスカリド | IV(tr)、VI(tr)、VIII、IX | 0.0078 | 0.02 |
| ルフェスロン | ルフェスロン | - | 0 | 0 |

*1 (tr)と記載の群は、定量下限未満であるが検出された群

*2 体重55.2 kgとして算出

(英文要旨)

Estimated dietary intakes of residual pesticides and veterinary drugs using a market basket method in Fukuoka Prefecture, 2018

Tamaki SATO, Toshitaka KOGISO, Daisuke YASUTAKE and Tsuguhide HORI

Fukuoka Institute of Health and Environmental Sciences,

Mukaizano 39, Dazaifu, Fukuoka 818-0135, Japan

We evaluated the dietary intakes of residual pesticides and veterinary drugs using a market basket method in Fukuoka Prefecture during the year 2018. We considered a method for the determination of 15 residual pesticides and veterinary drugs, to estimate their dietary intakes. The lower limit of quantification for the method sufficiently met the target value. The accuracy of this method for detecting residual pesticides and veterinary drugs in samples from each food group, defined using the market basket method, was in the range 10%–111%, with satisfactory repeatability. As a result of estimating the dietary intakes of residual pesticides and veterinary drugs, one to five types of pesticides were detected in nine food groups. All ratios of dietary intake of the determined pesticides to the Acceptable Daily Intake were less than 1%. Thus, the dietary intakes of the detected pesticides did not reach levels that could adversely affect the health of residents of Fukuoka Prefecture.

[Key words ; residual pesticides and veterinary drugs, estimation of dietary intake]