

残留農薬にかかる食品の安全性評価の精密化に関する研究

Study of Precise Estimation of Pesticide Residues for Food-Safety Assessment

平成 29 年度 論文博士申請者 矢島 智成 (Yajima, Tomonari)
指導教員 石井 一行

食品に残留した農薬を喫食することに伴うヒトの健康への影響の程度を知ることは、食品衛生上の重要な課題の一つである。この残留農薬による健康影響を抑え、厳しく管理するため、厚生労働省が所管する食品衛生法が制定されている。その中で農薬は、法第 11 条に規定された食品規格として残留基準（食品中の最大残留量 MRL, Maximum residue limit）が示されており、この基準を超えて農薬が残留した食品を市場から排除し、人々に喫食させないことで健康影響を未然に防いでいる。すなわち、基準を適切に設定することで、過量な農薬の摂取が防がれ、ヒトの健全な食生活が保持されている。基準設定に際しては、適正に農薬を使用した作物中の残留状況が大きな要因として考慮されており、その挙動を把握することが適切な基準の設定に結びつく。

農薬を使用した作物中の残留濃度は、農薬の使用量の他、栽培期間中の気温や降雨などの環境要因や作物の生育速度などによって大きく変動する。また、喫食する部位が個人や国、地域によって異なるため、作物個体中の農薬分布が実際に摂取する農薬の量に変動を生じる要因となる。これらを踏まえ、残留基準は大きな変動幅を考慮して設定されているが、この変動はヒトへの健康影響の精密な評価を困難にしている。

本研究では、国内の複数圃場で慣行農業に従い農薬を散布した各種作物を得て、これまで長期間にわたる圃場の確保が困難なため極めて実施例が少なく、ほとんど明らかにされていなかった作物中の残留農薬量における変動要因について詳細に調査、解析した。その結果として、実態に即した条件下で得られた科学的データに基づき、詳細な暴露量を導くことで適正な基準設定に寄与すると共に、残留農薬に起因したヒトの健康に対する安全性評価の精密化に繋げた。

1. 作物栽培環境要因の変動に伴う農薬の残留性評価¹⁾

ハクサイとホウレンソウを同一年度にそれぞれ国内 8 力所の試験圃場で栽培し、概ね同一条件で複数の農薬を散布して得た試料を分析した。2 年間にわたり同様に試験を行い、それぞれの作物について得られた各 16 例のデータ（ハクサイの 7 圃場、ホウレンソウの 6 圃場は 2 年間共通した同一圃場で実施）より、圃場間における残留性の変動、同一圃場における栽培年間での残留性の変動及びそれらの程度について解析した。そして、得られたデータ（Table 1）から暴露量の推定を試みた。

圃場間で比較した残留濃度の変動は、露地栽培したハクサイでは最大 10.5 倍、施設栽培したホウレンソウでは最大 5.7 倍あった。

Table 1. ハクサイ及びホウレンソウにおける残留農薬濃度の圃場間比較

Crop Pesticide	Application ^{a)}	Residue levels (mg/kg)					
		LR	HR	HR/LR	Median	Mean	RSD (%)
Chinese cabbage							
Dinotefuran	20%, 2000 times, 2 × 3-d	0.12	0.87	7.3	0.42	0.47	46
Flubendiamide	20%, 1000 times, 3 × 1-d	0.24	2.52	10.5	0.96	1.08	56
Flufenoxuron	10%, 2000 times, 2 × 14-d	0.06	0.36	6.0	0.13	0.16	58
Pyridalyl	10%, 2000 times, 2 × 3-d	0.20	0.90	4.5	0.39	0.47	45
Tolfenpyrad	15%, 1000 times, 2 × 14-d	0.08	0.60	7.5	0.20	0.25	65
Spinach							
Dinotefuran	20%, 3000 times, 2 × 3-d	2.15	12.2	5.7	5.87	6.77	43
Flufenoxuron	10%, 4000 times, 3 × 3-d	1.69	8.64	5.1	3.67	3.95	42
Teflubenzuron	5%, 2000 times, 2 × 7-d	0.94	3.37	3.6	1.79	1.86	34

LR, 最低値；HR, 最高値；RSD, 相対標準偏差

a) 敷設条件；製剤中の有効成分含有率、散布時の希釈倍率、散布回数 × 最終散布から収穫までの期間

また、同一圃場における年度間の残留濃度は、施設栽培したホウレンソウでは再現性が認められたが、露地で栽培したハクサイでは再現性が認められなかった。この原因として、露地栽培では降雨による流失や日光による分解など残留量に影響を与える要因が増えることが考えられた。また、各残留濃度は試料個体の重量との間に負の相関を示したが、気象条件との間には相関性は見られなかった。

さらに、本研究で得た分析結果から暴露量の推定として、平均一日摂取量を算出し、一日許容摂取量（ADI, Acceptable Daily Intake）に占める割合（ADI 占有率）を求めた。ADI 占有率は最大でハクサイ 5.2%，ホウレンソウ 8.6% であった。圃場間や栽培年度間での残留濃度の変動を加味しても、健康に影響を生じる恐はないことが実測データを基に明示された。

2. 分析部位の取り扱いに起因する暴露量評価への影響²⁾

国内外で残留性評価の対象部位が異なるリンゴ、日本梨、西洋梨の 3 種仁果類作物で、その評価部位の違いが残留性評価に及ぼす影響を調査した。5 種の農薬を散布して栽培した試料を、個体ごとに 2 つに分け、試料を 2 組作製した。一方を我が国での MRL の対象部位である”可食部”と通常は除去する”非可食部（花落ち、しん及び果梗の基部）”に分け、他方は分別せずに諸外国での MRL 対象部位である”果実”として、それぞれの残留濃度を求めた（Table 2）。各部位の残留濃度は、果実上部の窪み部分を含む非可食部が最も高かったが、果実と可食部ではほとんど差がなかった。非可食部の重量は可食部に比較して大変軽いため、果実全体の濃度への影響が少なかったものと推察された。また、残留濃度は、非可食部と可食部の重量比から算出した果実計算値（非可食部と可食部の合算値）と果実実測値がほぼ一致していた。このことから、分別分析した場合であっても、合算することで果実としての残留濃度が導けることが

明らかとなった。仁果類作物では、分析対象部位が可食部であっても、果実全体であっても、暴露量評価に及ぼす影響は小さいことが示唆された。

Table 2. 仁果類作物の部位別分析における残留濃度

	Residue levels (mg/kg) ^{a)}				Result of Kruskal-Wallis test ^{b)}
	Fresh	Edible portion	Inedible portion	Calculated whole	
Boscalid	0.36 (0.32-0.42)	0.29 (0.26-0.37)	0.69 (0.39-1.49)	0.35 (0.29-0.44)	NS
Flubendiamide	0.23 (0.14-0.28)	0.20 (0.12-0.28)	0.36 (0.18-0.87)	0.22 (0.13-0.29)	NS
Flufenoxuron	0.16 (0.08-0.26)	0.15 (0.06-0.23)	0.29 (0.15-0.66)	0.17 (0.08-0.27)	NS
Imidacloprid	0.16 (0.05-0.34)	0.14 (0.04-0.28)	0.22 (0.08-0.39)	0.15 (0.06-0.31)	NS
Pyraclostrobin	0.16 (0.12-0.23)	0.14 (0.10-0.20)	0.29 (0.20-0.47)	0.17 (0.13-0.23)	NS
Simeconazole	0.13 (0.05-0.20)	0.11 (0.03-0.19)	0.25 (0.11-0.38)	0.14 (0.06-0.20)	NS

a) 6 試料（リンゴ 4 試料、日本梨 1 試料、西洋梨 1 試料）での平均残留濃度。“Calculated whole”は可食部と非可食部の残留濃度及びそれらの重量比から算出した果実相当の値。（）内は最低値-最高値。

b) 果実、可食部、果実計算値の 3 つの残留濃度間における有意差検定（Kruskal-Wallis 検定、有意水準 5%）。NS、有意差なし

3. 作物形態が残留性に与える影響 2・4)

仁果類作物、未成熟トウモロコシ、カブをそれぞれ部位別に分析することで、各作物中に残留する農薬の分布を把握し、作物の外観的な形状及び表面の形状の違いによる残留量の違いを調査した。

仁果類作物では同日に混用散布したイミダクロプリドとフルベンジアミドで、散布量と残留量の関係に作物種間（“リンゴ”と“日本梨及び西洋梨”）における違いが見られた。イミダクロプリドは比較的水溶性が高いため、リンゴに見られる“油あがり”という現象で果実表面が脂溶性の物質に覆われて付着が妨げられたと考えられ、物理化学的性状による残留性の違いが推察された。

未成熟トウモロコシでは穂を穀粒、芯、ヒゲ及び外皮の 4 部位に分けて分析した。諸外国での MRL 対象部位である“穀粒+芯（+ヒゲ）”の濃度を算出し、我が国の MRL 対象部位である“穀粒”と比較した（Table 3）。さらに諸外国では取り扱いが明確にされていない“ヒゲ”を含むか否かでの残留濃度への影響も推察した。未成熟トウ

Table 3. 未成熟トウモロコシの部位別分析における残留濃度

Field location	Pesticide	Residue levels				Calculated residue levels ^{a)}	
		Kernel (K)	Cob (C)	Silk (S)	Husk	K+C	K+C+S
Ibaraki	Acephate	0.07	0.08	14.2	2.24	0.07	0.41
	Acetamiprid	<0.01	0.03	25.9	2.80	0.01	0.62
	Chromafenozide	<0.01	<0.01	8.96	1.08	<0.01	0.22
	Etofenprox	<0.01	<0.01	12.0	0.79	<0.01	0.29
	Tolclofos-methyl	<0.01	<0.01	0.05	<0.01	<0.01	<0.01
Chiba	Acephate	0.02	0.03	1.14	4.56	0.02	0.06
	Acetamiprid	<0.01	0.02	0.56	5.20	0.01	0.03
	Chromafenozide	<0.01	<0.01	0.15	1.76	<0.01	0.01
	Etofenprox	<0.01	<0.01	0.20	1.34	<0.01	0.01
	Tolclofos-methyl	<0.01	<0.01	<0.01	0.01	<0.01	<0.01

2連分析の平均残留濃度 (mg/kg)

a) 各部位における残留濃度及び重量比から算出した計算値。

モロコシ中に残留する農薬の大部分は”ヒゲ”及び”外皮”に分布していた。一方、”穀粒”及び”芯”への農薬の分布は僅かであった。また、”穀粒+芯”では、”ヒゲ”を含めない場合、算出した残留濃度は穀粒のみの実測値と大差はなかった。しかし、ヒゲを加えて算出した”穀粒+芯+ヒゲ”の残留濃度は、農薬散布時のヒゲが穂先から出ている状態によって、大きく影響を受けた。このことから、農薬散布時の作物の形態が農薬の分布に与える影響が大きいことが明らかとなった。

カブは”根部”及び”葉部”とそれらの間の”接合部”に分別して分析し、”根部”と”葉部”を切断する部分の選定が、結果に有意な影響を与

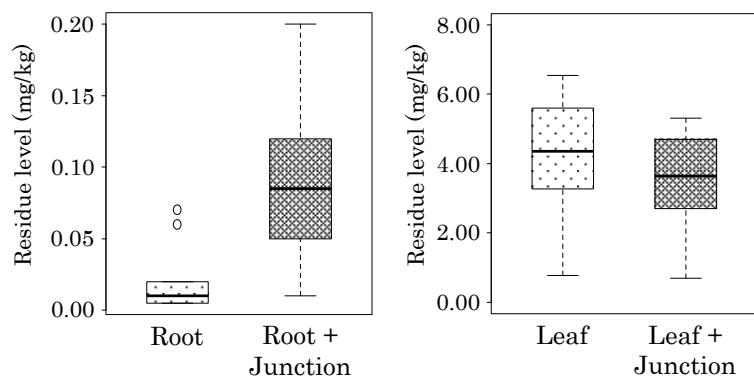


Figure 1. 接合部 (Junction) が根部 (Root) 及び葉部 (Leaf) の残留濃度に及ぼす影響

えることを明らかにした。農薬を茎葉散布した根菜類では、根部の方が残留濃度は低くなるため、切断点の選定は根部の残留状況に大きく影響した (Figure 1)。暴露量評価の精度向上のためには、”葉

部”あるいは”接合部”を食するか否か等，各国や地域における食文化の違いを考慮し，より明確な前処理方法の規定が必要であると考えられた。

4. 総括

本研究では，日本各地の圃場で農薬を適正に使用して栽培した作物を入手することにより，市販品に残留し得る農薬濃度を有する実残留試料で，各種作物中の残留農薬の分布を調査した。その際，各種作物試料に対して複数圃場で概ね同一の条件で農薬を散布して，栽培環境の違いによる様々なデータを取得した。これら要件の下，圃場間の栽培環境要因による分析値の変動を踏まえた実態に即した考察を導いた。さらに，分析部位や作物形態の違いが暴露量把握に影響することが明らかとなり，より明確な分析部位や前処理方法の規定，さらに食文化も考慮する必要性が示された。今回得られた知見からは，今のところ農薬の暴露量は健康に影響を及ぼすことはないことが明らかとなつたが，本研究の成果は，食品の安全性評価の根底である暴露量のより精密な把握と共に，ヒトの健康影響への高度な判断へと繋がり，食の安心安全を通したヒトの健康推進への寄与が期待される。

《参考文献》

- 1) Yajima T., Fujita M., Kondo K., Iijima K., Sato K., Kato Y., *J. Pestic. Sci.*, **38**, 200-207 (2013).
- 2) 矢島 智成, 藤田 真弘, 飯島 和昭, 佐藤 清, 加藤 保博, 日本農薬学会誌, **39**, 1-9 (2014).
- 3) Yajima T., Fujita M., Iijima K., Sato K., Kato Y., *J. Pestic. Sci.*, **42**, 82-87 (2017).
- 4) Yajima T., Fujita M., Iijima K., Sato K., Kato Y., *J. Pestic. Sci.*, **42**, 119-123 (2017).