

長野県に流通する農産物中の農薬残留実態及び令和元年度県民健康・栄養調査に基づく農薬摂取量の推定（令和元年度～2年度）

北原清志^{1,2}・宮川あし子¹・小山和志¹・安藤景子^{1,2}・高橋佳代子^{1,3}
天野保希^{1,4}・竹澤有紗¹・鎌田光貴¹・宇都宮れい子^{1,5}・土屋としみ¹

妥当性評価試験を実施し、新たに妥当性が確認された農薬を追加して令和元年度から2年度までの2年間に当所で行った農産物中の残留農薬の検査結果を、報告下限値 0.01ppm 未満で検出した農薬も含めて集計した。その結果、ボスカリドの残留が多く農産物で認められる一方、輸入果実から頻繁に検出するクロルピリホスは国内産果実ではほとんどが痕跡レベルの検出に留まっている等、農薬の残留実態が明らかになった。

また検出数が多かった農薬について、長野県民の最近の食品摂取状況が反映された令和元年度県民健康・栄養調査に基づく食品の一日平均摂取量と検出した農薬の平均濃度から農薬の推定摂取量を算出し、許容一日摂取量（Acceptable Daily Intake (ADI)）と比較した。その結果、推定摂取量の ADI に対する占有率は 0.01%～1.30%であり、県民の日々の平均的な食品摂取では直ちに健康に影響が出る残留量ではないことが推察された。

キーワード：農産物，残留農薬，県民健康・栄養調査，農薬摂取量，許容一日摂取量，ADI

1 はじめに

当所では長野県内に流通する食品の安全性を確保するため、県の食品衛生監視指導計画に基づき農産物、畜産物等を対象に残留農薬検査を実施している。食品中に残留する農薬等に関する試験法の妥当性評価ガイドライン¹⁾(以下「妥当性評価ガイドライン」という)に基づき、平成24年度より試験法の妥当性評価試験を実施し、妥当性が確認できた項目で検査を行ってきた²⁾。しかし、使用された農薬の記録を見ると、その使用状況は年々変化し、新たな農薬も使用されてきている。

そこで、防除剤等から使用されている頻度が高く、過去に農産物試験法の妥当性評価試験で不適合となった農薬や、これまで評価が未実施の農薬について妥当性評価試験を実施した。また県民健康・栄養調査の食品摂取量を用いて流通する農産物からの農薬摂取量を推定し、許容一日摂取量³⁾(ヒトが一生涯その農薬を毎日摂取し続けても健康に影響がないと推定される1日当たり体重1kg当たりの量、以下「ADI」という)と比較したので報告する。

2 方法

2.1 分析方法

GC/MS 一斉分析は、食品に残留する農薬等の試験法⁴⁾の「GC/MSによる農薬等の一斉試験法(農産物)」に従った。LC-MS/MS 一斉分析は、同試験法の「LC/MSによる農薬等の一斉試験法I(農産物)」に従った。個別分析(GC)は、同試験法の「アセフェート、オメトエート及びメタミドホス試験法(農産物)」に従った。それぞれの試験法の検査項目を表1に示す。検査項目数は対象となる農産物によって異なり、最小は油脂を多く含む果実の60項目、最大は穀類の192項目であった。検査結果の報告下限値は一部農薬を除き0.01ppmとした。

2.2 測定機器

GC/MS：(GC部)アジレント・テクノロジー(株)製 6890N、(MS部)日本電子(株)製 JMS-Q1000GC/K9
LC-MS/MS：(株)島津製作所製 LCMS-8050
GC：(株)島津製作所製 GC-2010Plus (検出器：FPD)

1 長野県環境保全研究所 食品・生活衛生部 〒380-0944 長野市安茂里米村 1978

2 現：長野県環境保全研究所 循環型社会部 〒380-0944 長野市安茂里米村 1978

3 現：長野保健福祉事務所 検査課 〒380-0936 長野市中御所岡田 98-1

4 現：長野保健福祉事務所 食品・生活衛生課 〒380-0936 長野市中御所岡田 98-1

5 現：退職

表1 種類別、試験法別検査項目

農薬種類	GC/MS検査項目	LC-MS/MS検査項目	GC検査項目	計
殺虫剤 (殺ダニ剤含む)	クロルピリホス、クロルフェナピル、 ヒフエントリン、他64	インドキサカルブ、チアメキサム、 ノバルロン、他16	アセフェート、メタミトホス	88
殺菌剤	クレソキシムメチル、トリフロキシストロビン、 ホスカリド、他37	アゾキシストロビン、シアゾファミド、 シプロジニル、他7	-	50
除草剤	トリフルアリン、ペンデイメタリン、 メトラクロール、他49	ジウロン、ピリフタリド、 ラクトフェン、他15	-	70
薬害軽減剤	ベノキサコール、メフェンピルジエチル	クロキントセツメキシル	-	3
植物成長調整剤	エトキサゾール、トリプロホス、 ハクロフトラゾール	-	-	3
計	164	48	2	214

2.3 妥当性評価試験方法

妥当性評価ガイドラインに基づき、果実についてはりんご及びオレンジ、野菜についてはほうれんそう、キャベツ及びばれいしょを代表農産物として用いた。評価方法は試料 20g にそれぞれ 0.2 μ g、2 μ g の各農薬を添加して、2 濃度 (0.01ppm、0.1ppm) で評価した。

2.3.1 果実

GC/MS 一斉分析により未評価の農薬についてりんご及びオレンジで評価を行った。また、前回の妥当性評価においてマトリックス効果の影響により回収率が超過し、妥当性が確認できなかった農薬については、疑似マトリックスとしてポリエチレングリコール 300 の 1vol%アセトン溶液を最終試料溶液及び標準溶液 1mL に対して 20 μ L 添加して測定する、マトリックス添加法を検討した。なお、りんごについては平成 30 年 2 月 28 日付け厚生労働省告示第 38 号⁵⁾により、変更された検体の部位を採取し、対象項目全てについて妥当性を再評価した。

2.3.2 野菜

2.3.1 と同様に妥当性未評価の農薬の評価を行った。また野菜で度々使用される農薬のうち、過去に回収率が超過し妥当性が確認できなかった農薬のマトリックス添加法による検討と再評価を実施した。

2.4 農薬の実態調査及び安全性評価

本県での生産量、収穫時期、流通時期、流通地域等を考慮して作成された検査計画⁶⁾に基づき、県内の集荷所、市場、小売店で収去され、当所に搬入された農産物の測定結果を対象として検討した。当所

で検査を実施した農産物を令和元年度県民健康・栄養調査⁷⁾に基づき分類したものを表 2 に示す。より使用実態を反映させるために、報告下限値 0.01ppm 未満で検出し、マススペクトルにより同定できた農薬及び濃縮や C18 固相カラム精製を行い同定できた農薬の定量結果を収去検査結果と合わせて集計した。なお、検出と同定できる限界の濃度 (以下本報告では「検出下限値」とする) は一律 0.001ppm とした。

また農薬の摂取量を推定する食品群として、検査検体数が少なく、かつ農薬の検出がない食品群 (その他の穀類、きのこ類及び種実類) を除いた穀類 (米)、いも類、野菜類 (緑黄色野菜、その他の野菜)、及び果実類 (生果) を選び、食品群別摂取量と農薬の測定値から摂取量を推定した。測定値は食品群ごとに残留濃度の平均値を用いた。なお、厚生労働省が行った令和元年度食品中の残留農薬等の一日摂取量調査⁸⁾においては、不検出については濃度を 0 とした場合と、定量下限値とした場合の 2 通りで報告されている。しかし、本報告では検出下限値まで定量を行ったため、0 と検出下限値の中央値の 0.0005ppm (0.5ppb) の農薬を含有しているものと仮定して平均値を算出した。また県民の平均体重 (59.9kg) を乗じて 1 人当りの量に換算した ADI と推定した摂取量を比較し、その占有率 (以下「対 ADI 比」という) を求めた。

3 結果及び考察

3.1 妥当性評価

果実の妥当性が新たに確認された項目数 (りんご及びオレンジの両方で適合) は、評価した全 197 項

表2 令和元年度県民健康・栄養調査に基づく収去検査農産物の分類

令和元年度県民健康・栄養調査			収去検査農産物	検査 検体数
分類	小分類	食品群別摂取量 ※ (g/人/日)		
穀類	米・加工品	295.4	米	15
	その他の穀類・ 加工品	114.1	とうもろこし	5
いも類	いも・加工品	49.7	かんしょ、ばれいしょ、ながいも	10
野菜類	緑黄色野菜	95.8	トマト、にんじん、ほうれんそう、ピーマン、 アスパラガス、オクラ、かぼちゃ、きょうな、 こまつな、ブロッコリー	65
	その他の野菜	200.8	キャベツ、きゅうり、だいこん、たまねぎ、 はくさい、セロリ、なす、ねぎ、レタス	69
果実類	生果	91.5	みかん、なつみかん、オレンジ、グレープフルーツ、 レモン、バナナ、りんご、あんず、アボカド、かき、 キウイ、すいか、日本なし、パイナップル、 ぶどう、もも	182
きのこ類	きのこ類	20.4	えのきたけ、ぶなしめじ	4
種実類	種実類	4.8	くり	3

※20歳以上、907名の平均値

目中112項目であり、果実で多用されるアクリナトリンやフェンプロパトリン等が再評価により妥当性を確認した。また未評価農薬のボスカリドについても妥当性を確認した。マトリックス添加法を検討した結果、妥当性が確認されたのはジフェノコナゾール及びテブコナゾールであった。

野菜の妥当性が確認された項目数(キャベツ、ほうれんそう及びばれいしょの全てで適合)は、評価した全10項目中8項目であり、野菜での使用頻度が高かったトルフェンピラドやフィプロニル等が再評価により妥当性を確認した。また未評価農薬のボスカリドについても妥当性を確認した。マトリックス添加法で妥当性が確認できたのはアラクロールの1項目であった。

3.2 農薬検出状況

令和元年度から2年度に検査を行った結果を表3に示す。全353検体の農産物中124検体(報告下限

表3 農産物残留農薬検査結果の集計

検査	検体数 (内、新たに妥当性が確認できた項目が検出された検体数)			
	0.001ppm以上、 0.01ppm未満	0.01ppm以上、 基準値以下	基準値 超過	
国内産 農産物	219	31(12)	76(35)	0
輸入 農産物	134	20(10)	48(8)	0
合計	353	51(22)	124(43)	0

値未満を含めると175検体)で農薬が検出された。その内3.1より新たに妥当性が確認できた項目が検出された検体数は43検体(報告下限値未満を含めると65検体)であった。いずれも基準を超えて検出された検体はなかった。

検出された農薬について、国内産及び輸入農産物別に図1に示す。国内産農産物からは30種類の農薬が検出され、内訳は殺虫剤が19種類、殺菌剤が9種類、除草剤が2種類であった。検出数が最も多かったのは殺菌剤のボスカリドの29であった。また現在使用できない有機塩素系殺虫剤のDDT、アルドリン及びディルドリンがいも類から報告下限値未満で検出された。過去に使用され、現在も残留している土壌で栽培された作物に移行し、残留したと考えられた。他機関においても根菜類・塊茎作物やウリ科の野菜類から検出された事例⁸⁾がある。

輸入農産物からは15種類の農薬が検出され、内訳は殺虫剤が7種類、殺菌剤が8種類であった。検出数が最も多かったのは殺虫剤のクロルピリホスの35であった。クロルピリホスは国内産農産物ではほとんどが検出下限値以上、報告下限値未満の残留であったのに対し、輸入農産物では約80%が報告下限値以上で検出された。

3.3 農薬残留実態に基づく安全性の評価

図1に示した検出数が多かった9種類の農薬と、食品摂取量が多い米で検出したトリシクラゾールの

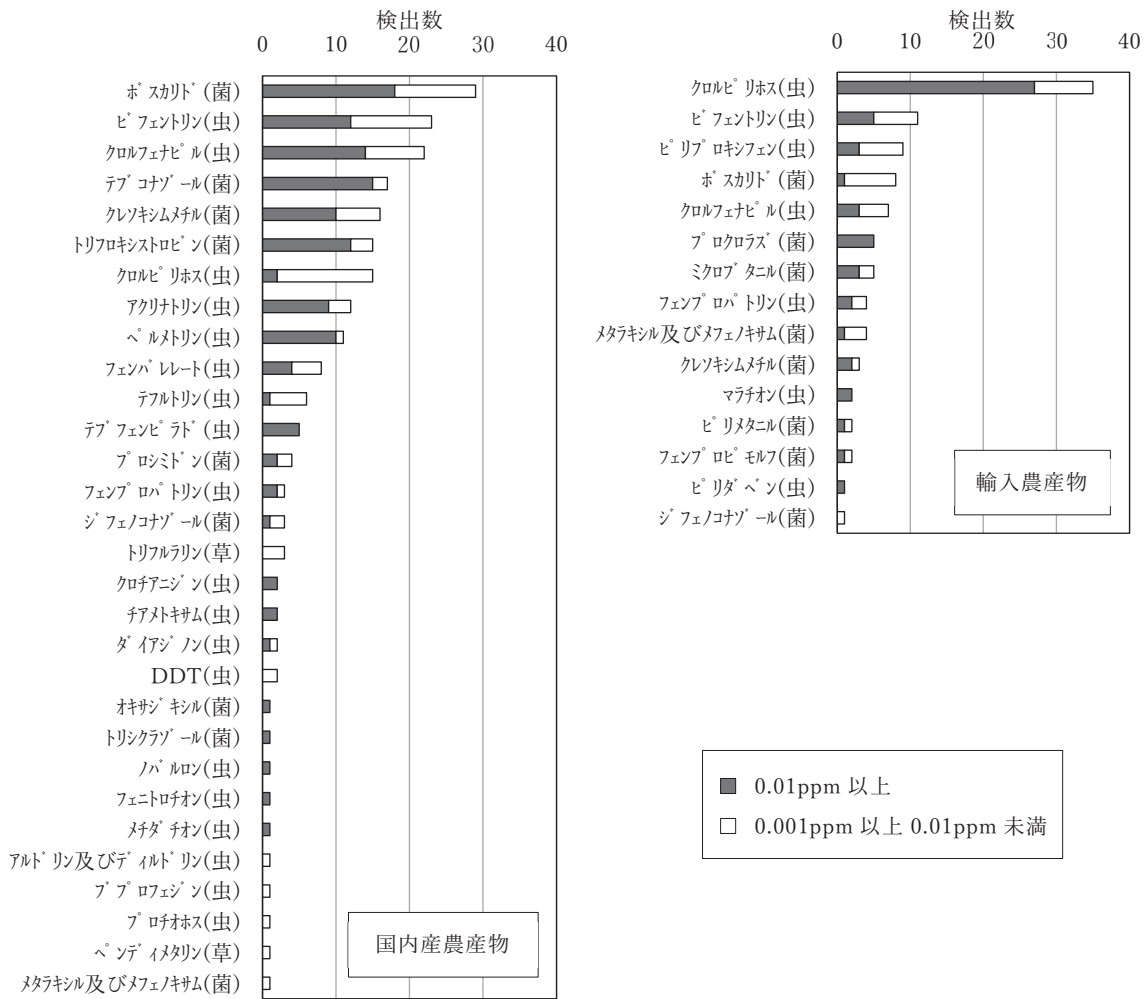


図1 産地別農薬別検出数
括弧内は農薬の種類を表す。(虫)：殺虫剤，(菌)：殺菌剤，(草)：除草剤

計 10 種類について、農薬の推定摂取量を算出し、ADIと比較した(表4)。対ADI比は0.01%~1.30%であり、最も高かったのはクロルピリホスであった。本評価に用いた食品群の食品摂取量の合計733.2gは、肉類や飲料等を含めた全食品群の合計2109.8gの約30%であったが、農薬の含有量が高い野菜や果実の食品群が含まれていることや、加熱調理による減少も考慮していないことを考えても、ADIに対する摂取量は十分低いと考えられた。このことから、長野県に流通する農産物中の残留量は、県民の日々の平均的な食品摂取では直ちに健康に影響が出る量ではないことが推察された。

なお厚生労働省が公表している令和元年度食品中の残留農薬等の一日摂取量調査結果⁸⁾において検出した農薬は当所で妥当性評価を実施していないもの

も多く含まれていたため、今後も妥当性評価を実施し、測定項目を見直すことが必要と考えられた。

4 まとめ

- ①防除暦等で多用が確認される農薬の妥当性評価を実施し、より農薬の使用実態に即した検査が可能となった。
- ②県内に流通する農産物中の収去検査結果及び報告下限値未満で検出した農薬の集計を行った結果、ボスカリドが37検体の農産物で残留していた。また輸入果実からクロルピリホスが検出された検体の約80%以上が報告下限値以上の残留であったが、国内産果実ではほとんどが痕跡レベルの検出に留まっていた。

表4 平均濃度で残留する食品を食べた場合の推定農薬摂取量と対ADI比

農薬名	平均濃度 (ppb) ※1 [検出範囲 (ppb)]				推定農薬 摂取量 合計 ※2 (µg/人/日)	ADI ※3 (µg/人/日)	対ADI比 (%)	
	穀類	いも類	野菜類					果実類
	米・加工品	いも・加工品	緑黄色野菜	その他の野菜	生果			
クロルピリホス	0.5 [N.D.]	0.5 [N.D.]	0.5 [N.D.]	0.5 [N.D.]	5.0 [1.0-70]	0.78	59.9	1.30
ボスカリド	-	0.5 [N.D.]	16 [3.0-420]	3.5 [1.0-30]	4.0 [1.0-90]	2.6	2635.6	0.10
ピフェントリン	0.5 [N.D.]	0.5 [N.D.]	0.6 [2.0-7.0]	0.5 [N.D.]	4.0 [1.0-70]	0.70	599	0.12
クロルフェナピル	0.5 [N.D.]	0.5 [N.D.]	12 [1.0-630]	7.1 [2.0-200]	2.1 [3.0-100]	2.9	1557.4	0.19
クロキシムメチル	0.5 [N.D.]	0.5 [N.D.]	1.0 [3.0-20]	7.2 [2.0-460]	4.4 [5.0-260]	2.1	21564	0.01
テブコナゾール	0.5 [N.D.]	0.5 [N.D.]	0.5 [N.D.]	0.5 [N.D.]	12 [7.0-520]	1.4	1737.1	0.08
トリフロキシストロビン	0.5 [N.D.]	0.5 [N.D.]	0.5 [N.D.]	0.5 [N.D.]	4.6 [3.0-150]	0.74	2995	0.02
アクリナトリン	-	0.5 [N.D.]	0.5 [N.D.]	0.5 [N.D.]	2.6 [7.0-130]	0.41	958.4	0.04
ベルメトリン	-	0.5 [N.D.]	0.5 [N.D.]	0.5 [N.D.]	4.0 [9.0-130]	0.54	2995	0.02
トリクラゾール	3.8 [50]	-	-	-	-	1.1	2995	0.04

※1：食品群内の全ての食品で検出下限値未満の場合は検出範囲を N.D. (不検出) とし、平均濃度は検出濃度と不検出の食品が検出下限値の 50% を含有していると見なして算出した。妥当性が確認できていない項目 (-) は計算に使用しなかった。

※2：平均濃度に県民健康・栄養調査食品群別摂取量 (表 2) を乗じ、算出した各食品群の推定農薬摂取量の合計。

※3：ADI (mg/kg 体重/日) に県民健康・栄養調査で算出された県民の平均体重を乗じた、1 人当たり 1 日当たりの量。平均体重は調査実施期間中の令和元年 10 月の県内男女人口比がほぼ 1:1 であったことから、20 歳以上の男性平均体重 (67.2kg) 及び女性平均体重 (52.6kg) の平均値の 59.9kg とした。

③ 検出数が多かったクロルピリホスやボスカリド等の農薬について、平均濃度と県民の食品群別摂取量で算出した推定農薬摂取量の ADI に対する占有率は最大 1.30% であり、直ちに健康に影響を与える残留量ではなかった。

今後も使用状況は変化していくことが推測され、妥当性評価により測定項目を見直すことで、より実態に即した検査を実施していく必要があると考えられた。

文 献

1) 厚生労働省医薬食品局食品安全部長通知 (平成22年12月24日付け食安発1224第1号) 「食品中に残留する農薬等に関する試験法の妥当性評価ガイドラインの一部改正について」

- 2) 中山隆・小山和志・丸山起人・笹井春雄・岡本政治・天野保希・疋田晃典・加賀野井祐一・曾根三千代 (2018) 農産物中の残留農薬の検査結果 (平成26年度～28年度), 長野県環境保全研究所研究報告, 14:43-48.
- 3) 内閣府食品安全委員会, 食品安全総合情報システム, 食品健康影響評価書: <https://www.fsc.go.jp/fscis/evaluationDocument/list?itemCategory=001> (2020年12月確認)
- 4) 厚生労働省医薬食品局食品安全部長通知 (平成17年1月24日付け食安発第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について」
- 5) 厚生労働省告示第38号 (平成30年2月28日付け生食発0228第1号) 「食品, 添加物等の規格基準の一部を改正する件について」

- 6) 長野県, 食品・生活衛生, 食品衛生ホームページ : ano.lg.jp/kenko-choju/kenko/kenko/kenko/chosa/chousatop.html (2021年3月確認)
<https://www.pref.nagano.lg.jp/shokusei/kenko/shokuhin/shokuhin/shokuhin/index.html> (2020年12月確認)
- 7) 長野県, 健康・医療・福祉, 健康, 健康増進, 食育・栄養, 県民健康・栄養調査 : <https://www.pref.nagano.lg.jp/kenko-choju/kenko/kenko/kenko/chosa/chousatop.html> (2021年3月確認)
- 8) 厚生労働省ホームページ, 食品中の残留農薬等 : https://www.mhlw.go.jp/stf/seisakunitsuite/bunya/kenkou_iryuu/shokuhin/zanryu/index.html (2020年12月確認)

Estimation of dietary intake of pesticide using pesticide residues in agricultural products (Apr. 2019-Mar. 2021) and results of Nagano Prefecture Health and Nutrition Survey (2021)

Kiyoshi KITAHARA^{1,2}, Ashiko MIYAGAWA¹, Kazushi KOYAMA¹, Keiko ANDO^{1,2}, Kayoko TAKAHASHI^{1,3}, Homare AMANO^{1,4}, Arisa TAKEZAWA¹, Koki KAMATA¹, Reiko UTSUNOMIYA^{1,5} and Toshimi TSUCHIYA¹

- 1 *Food and Pharmaceutical Sciences Division, Nagano Environmental Conservation Research Institute, 1978 Komemura, Amori, Nagano 380-0944, Japan*
- 2 *Present address: Recycling Society Division, Nagano Environmental Conservation Research Institute, 1978 Komemura, Amori, Nagano 380-0944, Japan*
- 3 *Present address: Inspection Division, Nagano Health and Welfare Office, 98-1 Okada, Nakagosho, Nagano 380-0936, Japan*
- 4 *Present address: Nagano Health and Welfare Office, 98-1 Okada, Nakagosho, Nagano 380-0936, Japan*
- 5 *Present address: Retirement*