

# 福岡市における食事からの残留農薬一日摂取量調査(2015)

井邊早春・宮地夏海・常松順子

福岡市保健環境研究所保健科学課

## Studies on Daily Intake of Pesticides in Foods in Fukuoka City (2015)

Saharu IBE, Natsumi MIYACHI and Junko TSUNEMATSU

Health Science Section, Fukuoka City Institute of Health and Environment

### 要約

福岡市民が日常の食事から摂取している農薬量を推定するため、平成 27 年度に福岡市内を流通した食品を対象として、マーケットバスケット方式による農薬の一日摂取量調査を実施した。対象農薬は、本所で検出事例の多い農薬等を含む、62 農薬とした。調査対象食品は福岡市内の食料品店で購入した 168 品目について「平成 20～22 年度国民健康・栄養調査（北九州ブロック）」に基づき、I～XIVの食品群に分類した後、調理を要する食品については、通常行われている調理方法に準じて調理を行い、試料を調製した。分析方法は「LC/MS による農薬等の一斉試験法 I（農産物）」および「GC/MS による農薬等の一斉試験法 I（農産物）」に準じて行い、農薬の定性・定量には LC-MS/MS および GC-MS/MS を用いた。

分析の結果、VI群（果実類）およびVIII群（野菜類・藻類・きのこ類）の 2 種類の群から農薬を検出した。各農薬の検出値をもとに一日摂取量を算出し、一日摂取許容量（ADI）と比較したところ、対 ADI 比は 0.0176～0.0281%の範囲であり、安全上問題ない量であると考えられた。また、農薬が検出された群において、どの食品由来か個別の食品について分析を行ったところ、基準値を超えるものはなかった。

**Key Words** : 農薬 pesticide, 一日摂取量 daily intake, 一日摂取許容量 ADI,  
高速液体クロマトグラフ・タンデム型質量分析計 LC-MS/MS  
ガスクロマトグラフ・タンデム型質量分析計 GC-MS/MS

## 1 はじめに

福岡市民が日常の食事を介して農薬等をどの程度摂取しているかを把握し、情報提供することは、市民の食の安全安心を確保する上で重要である。

厚生労働省は国民健康・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る一日摂取量調査を行っている。この調査は、加工食品、青果物、魚介類、肉類および飲料水など食品全般を対象に、これらの食品を通じて実際に摂取する農薬等の量を求める方法である。この調査結果は、食品衛生法に基づく食品中の残留農薬の基準値の設定や見直しを行う上で、毒性試験結果や一日摂取許容量(ADI)などとともに重要な基礎データとなる。

福岡市においても平成 17 年度から同調査に参画しており、また、福岡市独自でも調査対象農薬を設定し、同様の調査方法を用いて福岡市民の食事からの農薬摂取量

を調査している。平成 27 年度は LC-MS/MS および GC-MS/MS での分析が可能で、本所での検出事例の多い農薬を含む、62 農薬について調査を実施したので、その結果を報告する。

検出した農薬については、その食品群の平均一日摂取量および ADI をもとに安全性の評価を行った。

## 2 実験方法

### 2.1 試料

福岡市内の食料品店において、「平成 20～22 年度国民健康・栄養調査（北九州ブロック）」を参考に代表的な食品 168 品目を購入した。調理を要する食品については、通常行われている調理方法に準じて調理を行い<sup>1)</sup>、食品

群ごとに「平成 20～22 年度国民健康・栄養調査（北九州ブロック）」の摂取割合に従って混合し均一化した。各群の一日摂取量と主な購入食品を表 1 に示した。

表 1 一日摂取量と主な購入食品<sup>2)</sup>

食品群	一日摂取量(g)*	主な購入食品
I	323.3	精白米めし, もち
II	147.49	中華麺, パン, じゃがいも, こんにやく
III	30.6	練りようかん, 砂糖, ケーキ, プリン
IV	8.81	ごま油, オリーブ油, バター, マーガリン
V	52.4	豆腐, 油揚げ, 納豆, 豆乳
VI	96.47	みかん, りんご, バナナ, 桃缶詰
VII	82.3	かぼちゃ, にんじん, トマトミックスジュース
VIII	178.6	なす, たまねぎ, 大根, キムチ, 梅干
IX	619.8	茶, コーヒー, コーラ, ビール
X	66.17	いわし, ぶり, しらす干し, 蒲鉾
X I	111.85	鶏卵, 豚肉, 牛肉, 鶏肉
X II	108.6	牛乳, ヨーグルト, 乳酸菌飲料, チーズ
X III	81.5	酢, ケチャップ, みりん, 醤油, 味噌
X IV	—	ミネラルウォーター

\*平成 20～22 年度国民健康・栄養調査集計（北九州ブロック）一日摂取量の値

## 2.2 試薬等

### 2.2.1 LC-MS/MS 分析用試薬等

標準品：アセタミプリド，ジノテフランの 2 農薬について，和光純薬工業（株），関東化学（株）製を使用した。

標準原液：上記の 2 農薬について，各標準品を精秤し，アセトンおよびアセトニトリルで約 20mL に定容し標準原液とした。

上記以外の 35 農薬については，林純薬工業（株）製の混合標準原液 PL2005 LC/MS MIX 4 および 5（各成分 20 $\mu$ g/mL アセトニトリル溶液）を使用した。

検量線作成用標準混合溶液：標準原液を混合し，メタノールで 1 $\mu$ g/mL となるように希釈後，適宜希釈し調製した。

0.5mol/L リン酸緩衝液：リン酸水素二カリウム 52.7g およびリン酸二水素カリウム 30.2g を量り採り，水約 500mL に溶解し，1mol/L 塩酸を用いて pH を 7.0 に調整した後，水を加えて 1L とした。

C18FF/無水硫酸ナトリウム積層（C18 FF/DRY）ミニカラム：ジーエルサイエンス（株）製 InertSep C18FF(1g/3g) をあらかじめアセトニトリル 10mL でコンディショニングして使用した。

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（GC/NH<sub>2</sub>）ミニカラム：ジーエルサイエンス

（株）製 InertSep GC/NH<sub>2</sub>(1g/1g) をあらかじめアセトニトリルおよびトルエン（3:1）混液 10mL でコンディショニングして使用した。

その他の試薬：残留農薬試験用を使用した。

### 2.2.2 GC-MS/MS 分析用試薬等

標準原液：表 3 に示す農薬について，林純薬工業（株）製の混合標準原液 PL2005 GC/MS MIX I～VII（各成分 20 $\mu$ g/mL アセトニトリル溶液）を使用した。

検量線作成用標準混合溶液：各標準原液を混合し，アセトンおよびヘキサン（1:1）混液で 1 $\mu$ g/mL となるよう希釈後，適宜希釈し調製した。一部の群についてはポリエチレングリコール 300 を 0.01% となるように添加したものを使用した。

0.5mol/L リン酸緩衝液：LC-MS/MS 分析用と同様に調製した。

C18 FF/DRY ミニカラム：LC-MS/MS と同様に使用した。

GC/NH<sub>2</sub> ミニカラム：LC-MS/MS と同様に使用した。

ポリエチレングリコール 300：和光一級を使用した。

その他の試薬：残留農薬試験用を使用した。

## 2.3 装置および測定条件

### 2.3.1 LC-MS/MS

液体クロマトグラフ：Agilent社製 1260シリーズ

質量分析計（MS/MS）：ABSCIEX社製 TQ5500

測定条件は表4および表5に示した。

### 2.3.2 GC-MS/MS

ガスクロマトグラフ質量分析計：Bruker Daltonics社製 scion TQ

測定条件は，表6および表7に示した。

表2 調査対象農薬(LC-MS/MS)

農薬名*	主な用途	農薬数
<u>アセタミプリド</u> , <u>アルドキンカルブ</u> , <u>イミダクロプリド</u> , <u>カルバリル</u> , <u>クロキントセ</u> <u>ットメキシル</u> , <u>クロチアニジン</u> , <u>ジノテフラン</u> , <u>チアクロプリド</u> , <u>チアメトキサム</u> , <u>テブフェノジド</u> , <u>トリフルムロン</u> , <u>ノバルロン</u> , <u>ピリミカルブ</u> , <u>フェノブカルブ</u> , <u>フルフェノクスロン</u> , <u>ヘキシチアゾクス</u> , <u>メソミル</u> , <u>メトキシフェノジド</u>	殺虫剤	18
<u>アニロホス</u> , <u>インダノファン</u> , <u>オキサジクロメホン</u> , <u>クロリダゾン</u> , <u>クミルロン</u> , <u>クロロクスロン</u> , <u>ジウロン</u> , <u>テブチウロン</u> , <u>ピリフタリド</u> , <u>フェノキサプロップエチル</u> , <u>フルフェナセット</u> , <u>フルリドン</u> , <u>ベンゾフェナップ</u> , <u>メタベンズチアズロン</u> , <u>モノリニューロン</u> , <u>ラクトフェン</u>	除草剤	16
<u>イプロバリカルブ</u> , <u>エポキシコナゾール</u> , <u>カルプロパミド</u>	殺菌剤	3

\*下線があるもの(農薬)は平成28年5月時点において国内で登録がある農薬を示す。

表3 調査対象農薬(GC-MS/MS)

農薬名*	主な用途	農薬数
<u>EPN</u> , <u>イソフェンホス</u> , <u>イソプロカルブ</u> , <u>エトプロホス</u> , <u>エトリムホス</u> , <u>クロロベンジレート</u> , <u>フェンチオン</u> , <u>フェンバレレート</u> , <u>フルシトリネート</u> , <u>マラチオン</u>	殺虫剤	10
<u>アラクロール</u> , <u>シハロホップブチル</u> , <u>ジメテナミド</u> , <u>シメトリン</u> , <u>チオベンカルブ</u> , <u>ピリプチカルブ</u> , <u>ピリミノバックメチルE</u> , <u>ピリミノバックメチルZ</u> , <u>ピラフルフェンエチル</u> , <u>ブタクロール</u> , <u>メトラクロール</u> , <u>メフェナセット</u> , <u>レナシル</u>	除草剤	13
<u>チフルザミド</u> , <u>トルクロホスメチル</u>	殺菌剤	2

\*下線があるもの(農薬)は平成28年5月時点において国内で登録がある農薬を示す。

表4 LC-MS/MS の条件

・液体クロマトグラフ		
分析カラム	Waters 社製 Atlantis T3 C18 (2.1mm i.d×50 mm, 3.0µm)	
カラム温度	40°C	
移動相	A 液 : 5 mmol/L 酢酸アンモニウム B 液 : アセトニトリル	
移動相流量	0.2 mL/min	
グラジエント条件	0% B (0 min)→0% B (1 min)→90% B (20 min)→90% B (30 min) →0% B (30.1 min)→0% B (40 min)	
注入量	5µL	
・質量分析計		
	(ポジティブ測定)	(ネガティブ測定)
イオンスプレー電圧	5.500V	-4.500V
イオンソース温度	650°C	650°C

表 5 各農薬の質量分析計の測定条件 (LC-MS/MS)

No.	農薬名	Q1(m/z)	Q3(m/z)	DP	CE	No.	農薬名	Q1(m/z)	Q3(m/z)	DP	CE
1	アセタミプリド	223.1	126.0	76	31	20	ラクトフェン	479.1	344.0	61	21
2	インダノファン	341.2	175.1	66	19	21	アニコホス	368.0	199.1	51	19
3	カルバリル	202.1	145.1	61	15	22	エボキシコナゾール	330.1	121.0	81	33
4	テブフェノジド	353.3	133.1	46	29	23	クミルロン	303.1	185.1	51	17
5	ヘキシチアゾクス	353.2	228.0	71	23	24	クロリダゾン	222.0	92.0	70	35
6	メタベンズチアズロン	222.1	165.1	51	27	25	ジウロン	233.0	72.0	61	35
7	アルジカルブスルホン	223.1	86.2	71	23	26	テブチウロン	229.2	172.4	41	21
8	イプロバリカルブ	321.2	119.1	81	31	27	トリフルムロン	359.0	156.1	71	25
9	イミダクロプリド	256.1	209.0	71	25	28	ピリミカルブ	239.2	72.0	71	37
10	オキサジクロメホン	376.1	190.2	61	23	29	フェノキシプロップエチル	362.0	288.0	66	23
11	カルプロパミド	336.1	139.0	76	31	30	フェノブカルブ	208.2	95.1	66	23
12	クロキントセットメキシル	336.1	238.1	86	25	31	フルフェナセット	364.0	152.0	26	27
13	クロロクスロン	291.2	72.1	96	47	32	フルリドン	330.1	310.1	86	37
14	ジノテフラン	203.1	129.2	51	19	33	ベンゾフェナップ	431.1	105.1	71	45
15	チアクロプリド	253.1	126.0	81	31	34	メソミル	163.1	88.0	46	15
16	チアメトキサム	292.1	211.1	71	21	35	モノリニューロン	215.1	126.1	46	23
17	ノバルロン	493.0	158.0	96	31	36	フルフェノクスロン	487.0	155.8	-65	-18
18	ピリフタリド	319.1	139.0	91	43	37	クロチアニジン	247.9	58.0	-55	-26
19	メトキシフェノジド	369.2	149.1	61	25						

表 6 GC-MS/MS の条件

・ガスクロマトグラフ	
注入口温度	280°C
カラム	J&W Scientific 社製 DB-5MS+DG (0.25mm i.d×30m, 0.25µm)
カラム温度	50°C(1min) -25°C/min -125°C-10°C/min-300°C(10min)
キャリアーガス流量	1mL/min (ヘリウム)
注入量	2µL (スプリットレス)
・質量分析計	
イオン化電流	50µA
イオン化モード	EI
イオン源温度	225°C
インターフェース温度	250°C

表7 各農薬の質量分析計の測定条件 (GC-MS/MS)

No.	農薬名	Q1(m/z)	Q3(m/z)	CE(eV)	No.	農薬名	Q1(m/z)	Q3(m/z)	CE(eV)
1	EPN	157	110	-11	14	ピラフルフェンエチル	412	349	-12
2	アラクロール	160	132	-11	15	ピリプチカルブ	165	108	-10
3	イソフェンホス	213	185	-10	16	ピリミノバックメチルE	302	256	-15
4	イソプロカルブ	121	77	-20	17	ピリミノバックメチルZ	302	256	-15
5	エトプロホス	158	114	-10	18	フェンチオン	278	109	-25
6	エトリムホス	292	181	-10	19	フェンバレレート	167	125	-15
7	クロロベンジレート	251	139	-20	20	ブタクロール	176	147	-11
8	シハロホップブチル	255	91	-15	21	フルシトリネート	199	157	-10
9	ジメテナミド	230	154	-20	22	マラチオン	173	99	-15
10	シメトリン	213	170	-15	23	メトラクロール	162	133	-11
11	チオベンカルブ	257	100	-10	24	メフェナセット	192	136	-10
12	チフルザミド	194	166	-10	25	レナシル	153	135	-11
13	トルクロホスメチル	265	250	-25					

## 2.5 試験溶液の調製

### 2.5.1 I, II, III, V, XIIおよびXIII群

「LC/MSによる農薬等の一斉試験法I(農産物)<sup>3)</sup>」および「GC/MSによる農薬等の一斉試験法I(農産物)<sup>3)</sup>」(以下、通知法)の「(1)穀類, 豆類および種実類の場合」に準じて実施した。脱脂および脱水操作については作業時間を短縮するためC18/DRYミニカラムより通液性が良好なC18FF/DRYミニカラムを使用した。

### 2.5.2 IV, XおよびXI群

柿本ら<sup>4)</sup>の方法を参考に試験溶液を調製した。試料10g(IV群は5g)に蒸留水10mLを加えた後, n-ヘキサン25mLおよびヘキサン飽和アセトニトリル50mLを加えホモジナイズし, アセトニトリル層を分取しろ過した。残留物にヘキサン飽和アセトニトリル20mLを加え同様の操作を行い, アセトニトリル層を合わせて100mLに定容した。以降の操作については, 2.5.1と同様の方法で行った。

### 2.5.3 VI, VII, VIIIおよびIX群

通知法の「(2)果実, 野菜, ハーブ, 茶およびホップの場合」に準じて実施した。

### 2.5.4 XIV群

試料4gにアセトニトリル20mL, 0.5mol/Lリン酸緩衝液20mLおよび塩化ナトリウム10gを加え振とうした。以降の操作については, 2.5.3と同様の方法で行った。

## 2.6 マトリックス添加標準溶液の調製

### 2.6.1 LC-MS/MS

食品群ごとに試験溶液の2倍濃度の溶液を調製し, 農薬標準溶液と等量ずつ混合したものをマトリックス添加標準溶液とした。

### 2.6.2 GC-MS/MS

食品群ごとに調製した試験溶液の溶媒を窒素気流下で除去し, 標準溶液に溶解したものをマトリックス添加標準溶液とした。

## 2.7 定量

LC-MS/MSにおいては試験溶液5 $\mu$ Lを, GC-MS/MSにおいては試験溶液2 $\mu$ Lを注入し, 得られたクロマトグラムのピーク面積から絶対検量線法により各農薬の濃度を求め, 試料中の含量を算出した。一部の群については, マトリックス添加標準溶液を用いた。

## 3 結果および考察

### 3.1 添加回収試験

#### 3.1.1 LC-MS/MS

各群0.01 $\mu$ g/gとなるように37農薬(37化合物)の標準品を添加し, 回収試験を実施した。

標準溶液を使用して測定したところ, VII群以外の群で回収率が70%~120%の範囲外となる化合物があり, 特にVIII, X, XI群に多く認められた。試料中のマトリックスがイオン化に影響を及ぼしていると考えられたため, II, III, IV, VI, VIII, X, XI, XIII群についてマトリックス添加標準溶液を用いて測定した。その結果, 回収率の向上が認められ, 各農薬の平均回収率は70.4%~107.1%となった。添加回収試験の結果を表8に示した。各農薬の定量限界値は0.01ppmとした。

なお, すべての農薬において, 定量に支障を与えるような試料由来の妨害ピークは認められなかった。

### 3.1.2 GC-MS/MS

各群 0.01 $\mu$ g/g となるように 25 農薬の標準品を添加し、回収試験を実施した。PEG 含有標準溶液を使用して測定したところ、Ⅲ～Ⅴ, X, XⅡ, XⅢ群において、回収率が 70%～120%の範囲外となる化合物があり、120%を超える化合物が多く認められた。試料成分のマトリックス効果によるものと考えられたため、上記の群についてマトリックス添加標準溶液を用いて測定した。その結果、回収率の改善が認められ、各農薬の平均回収率は 93.7～107.8%となった。添加回収試験の結果について表 9 に示した。各農薬の定量限界値は 0.01ppm とした。

### 3.2 一日摂取量調査

I～XⅣ群の試料について 37 農薬を分析した結果、検出した農薬について表 10 に示した。ⅥおよびⅧ群からネオニコチノイド系殺虫剤であるジノテフランをそれぞれ 0.020 $\mu$ g/g, 0.017 $\mu$ g/g 検出した。なお、定量下限未満であったがⅥ群のアセタミプリド（ネオニコチノイド系殺虫剤）、Ⅶ群のジノテフランにピークが認められた。

検出した農薬の一日摂取量を算出し、平均体重を 50kg とした場合の ADI と比較したところ、表 10 に示したとおり対 ADI 比は 0.0176～0.0281%の範囲であった。このことから、今回調査した農薬の一日摂取量は、いずれも安全上問題のない量であったと考えられた。

また、厚生労働省が報告している調査結果<sup>5)</sup>と同様に、不検出であった農薬および一部の群より検出されたが他の群からは不検出であった農薬について、定量下限の 20%の濃度で農薬が残留していると仮定して、各食品群の重量と濃度から、食品群ごとの農薬の摂取量を推定した。この推定値と検出した農薬の一日摂取量を合算し、対 ADI 比を算出した場合においても、LC-MS/MS 分析項目では 0.0004%（メトキシフェノジド）～6.89%（アルジカルブスルホン）、GC-MS/MS 分析項目では 0.0001%（マラチオン）～9.92%（エトプロホス）の範囲で十分低い値と考えられた。

### 3.3 由来食品の確認

ⅥおよびⅧ群で検出したジノテフランがどの食品由来であるか分析を行った結果を表 11 に示した。Ⅵ群のみかんおよび柿、Ⅷ群のきゅうりから検出した。また、食品群ごとの分析では定量下限未満であったアセタミプリド（ネオニコチノイド系殺虫剤）をⅥ群のりんごから、フルフェノクスロンをⅧ群のセロリから検出した。なお、個々の食品の基準値を超過するものはなかった。

## 4 まとめ

平成 27 年度に福岡市内を流通する食品を対象として、マーケットバスケット方式による農薬の一日摂取量調査を実施した。62 農薬の分析の結果、2 種類の群から農薬を検出した。それぞれの農薬の検出値をもとに一日摂取量を算出し、一日摂取許容量(ADI)と比較したところ、対 ADI 比は 0.0176～0.0281% の範囲であり安全上問題ない量と考えられた。

食品の摂取量や種類は地域別に異なっており、市内を流通する食品を対象として農薬の一日摂取量を把握しておくことは、市民の食の安全安心を確保する上で重要なことである。今後も本調査を実施していくことが必要であると考えられる。

## 謝辞

本調査を行うにあたり、食品の購入、試料の調製等を実施していただきました福岡市保健福祉局食品安全推進課、食肉衛生検査所、食品衛生検査所、各区保健福祉センター衛生課の職員の皆様に感謝いたします。

表 8 添加回収試験結果および定量限界 (LC-MS/MS)

No.	項目	回収率 (%)														平均
		I	II	III	IV	V	VI	VII	VIII	IX	X	XI	XII	XIII	XIV	
1	アセタミプリド	103.8	109.5	94.7	108.3	82.3	91.8	96.4	84.1	65.9	101.2	85.7	105.1	98.9	88.6	94.0
2	インダノファン	86.1	97.1	92.6	100.3	82.4	82.1	79.4	79.6	80.2	91.3	79.4	99.4	95.5	69.2	86.8
3	カルバリル	97.7	108.0	95.9	103.9	87.7	80.6	86.1	82.4	77.7	95.9	83.4	101.3	95.1	82.0	91.3
4	テブフェンジド	98.4	94.4	95.8	79.1	93.6	86.6	116.0	77.1	124.4	100.1	90.2	127.3	124.3	63.0	97.9
5	ヘキシチアゾクス	77.2	90.5	88.6	77.3	78.3	83.8	75.5	77.8	83.1	76.5	63.5	91.9	80.3	73.6	79.9
6	メタバンスチアズロン	118.5	129.4	108.6	114.5	99.6	101.4	99.3	89.7	94.9	114.7	100.8	126.4	113.0	89.2	107.1
7	アルジカルブスルホン	88.1	97.4	88.4	91.6	78.6	85.8	76.9	76.0	39.1	88.7	78.8	90.0	94.3	93.6	83.4
8	イブロバリカルブ	101.8	95.2	99.6	99.7	94.4	87.2	93.7	87.8	96.7	93.0	85.0	112.7	96.8	93.1	95.5
9	イミダクロプリド	100.7	97.8	93.0	95.2	69.1	84.1	77.9	81.5	61.8	98.0	79.3	98.6	98.7	85.5	87.2
10	オキサジクロメホン	93.0	105.2	97.9	91.9	79.9	89.5	93.2	87.3	88.0	86.9	79.9	107.3	91.6	87.5	91.4
11	カルプロバミド	88.4	96.7	90.5	91.9	65.7	76.3	72.9	73.9	65.7	85.5	81.3	100.4	86.5	44.7	80.0
12	クロキントセットメキシル	61.5	91.4	93.1	93.4	93.1	84.3	85.4	84.6	95.8	84.2	75.2	93.1	92.5	64.4	85.1
13	クロロクスロン	92.5	91.6	98.8	87.1	92.8	86.7	85.2	87.7	94.0	92.3	84.5	112.8	95.2	71.8	89.5
14	ジノテフラン	65.4	71.2	75.0	70.4	51.6	88.0	95.1	84.9	49.7	71.5	63.6	63.8	72.2	63.1	70.4
15	チアクロプリド	110.0	118.1	105.3	111.4	89.9	98.9	81.7	85.1	78.3	112.2	93.6	113.4	103.3	100.4	100.1
16	チアメトキサム	91.5	98.7	88.5	90.8	65.6	71.5	77.1	76.4	55.4	88.1	76.0	90.6	91.3	72.4	81.0
17	ノバルロン	80.4	87.0	110.6	87.5	96.9	86.2	85.8	80.3	104.0	88.2	84.3	95.6	85.1	73.7	89.0
18	ビリフタリド	101.7	106.6	104.1	104.6	93.7	88.9	95.0	90.3	103.5	98.2	90.2	108.3	103.5	91.7	98.6
19	メトキシフェノジド	86.5	107.5	91.8	91.6	83.1	78.5	107.9	75.3	132.9	96.4	86.1	95.4	111.2	100.2	96.1
20	ラクトフェン	69.6	91.5	85.5	81.8	78.9	86.5	78.3	80.5	86.4	91.3	80.3	94.8	88.2	71.3	83.2
21	アニロホス	93.1	99.9	96.0	91.5	64.4	82.6	73.8	76.1	71.6	87.3	80.8	102.2	89.8	52.3	83.2
22	エポキシコナゾール	103.5	112.9	114.9	120.4	92.3	99.1	91.1	89.1	98.2	98.8	97.8	115.2	113.7	71.5	101.3
23	クミルロン	103.3	110.7	108.7	104.5	94.8	94.1	100.7	93.2	100.8	100.4	92.2	112.2	101.6	81.8	99.9
24	クロリダグン	97.1	107.7	98.9	105.3	82.0	91.5	88.4	83.4	73.3	100.8	85.6	96.3	109.9	88.8	93.5
25	ジウロン	96.6	99.0	93.7	97.2	84.7	87.9	81.1	81.0	74.5	99.3	83.8	102.0	98.1	77.5	89.7
26	テブチウロン	106.9	117.9	107.8	110.8	87.3	104.4	103.1	91.6	86.1	102.5	99.0	113.4	106.5	105.9	103.1
27	トリフルムロン	84.9	100.0	105.1	96.6	74.4	82.8	74.2	78.1	67.1	84.3	81.8	103.9	90.4	62.8	84.7
28	ビリミカルブ	105.2	104.9	101.8	102.8	97.4	90.6	97.0	86.3	101.3	100.7	84.9	108.1	100.3	96.2	98.4
29	フェノキシプロップエチル	88.2	99.8	92.2	94.1	88.1	85.3	86.1	80.4	96.2	85.1	78.0	107.7	88.4	84.0	89.5
30	フェノブカルブ	90.4	96.0	92.0	92.0	85.4	85.9	82.0	80.7	82.5	88.4	82.3	96.7	92.3	75.3	87.3
31	フルフェナセット	92.3	96.6	94.7	99.6	88.6	82.6	85.3	77.4	86.5	90.0	84.8	104.8	91.7	79.9	89.6
32	フルリドン	104.5	102.5	96.8	105.2	99.5	94.5	94.7	89.2	101.3	98.0	87.9	114.2	98.1	89.7	98.3
33	ベンゾフェナップ	84.3	95.1	89.4	90.4	85.2	76.5	91.8	78.1	97.5	88.3	80.0	101.6	90.6	85.5	88.2
34	メソミル	99.9	117.4	105.6	104.6	108.0	82.6	86.0	81.4	63.8	117.7	144.4	126.7	105.1	94.0	102.7
35	モノリニューロン	92.5	97.9	94.2	99.3	86.2	88.4	86.1	79.3	83.9	94.1	80.8	126.7	93.9	86.3	92.1
36	フルフェノクスロン	72.9	95.6	89.6	86.0	85.2	80.8	96.6	75.2	96.1	80.6	75.8	93.4	78.4	94.7	85.8
37	クロチアニジン	94.2	98.7	93.5	92.5	95.3	84.3	91.1	81.2	97.1	88.3	78.0	90.9	93.3	94.1	90.9

\* 下線があるもの(化合物)はマトリックス添加標準溶液で回収率を計算し、70~120%の範囲内に改善されたものを示す。

\* 網かけはマトリックス添加標準溶液で回収率を計算した群を示す。

表9 添加回収試験結果(GC-MS/MS)

No. 項目	回収率(%)														平均
	I	II	III	IV	V	VI	VII	VIII	IX	X	X I	X II	X III	X IV	
1 EPN	107.7	119.3	<u>84.8</u>	82.7	<u>100.4</u>	94.8	123.7	92.9	109.0	<u>96.0</u>	110.2	<u>101.3</u>	<u>95.6</u>	90.4	100.6
2 アラクロール	110.2	116.4	<u>107.7</u>	93.9	<u>92.0</u>	97.3	114.8	87.5	115.2	<u>99.2</u>	89.0	<u>111.3</u>	<u>100.9</u>	90.7	101.9
3 イソフェンホス	97.7	116.2	<u>92.3</u>	79.4	<u>96.4</u>	91.9	110.4	81.1	111.4	<u>106.6</u>	80.4	<u>115.2</u>	<u>86.7</u>	86.2	96.6
4 イソプロカルブ	101.0	105.8	<u>103.2</u>	94.2	<u>98.3</u>	97.9	97.2	94.2	107.0	<u>105.2</u>	104.9	<u>111.2</u>	<u>97.1</u>	90.6	100.5
5 エトプロホス	102.3	125.4	<u>108.7</u>	86.1	<u>98.0</u>	95.7	107.5	100.8	129.3	<u>104.9</u>	92.5	<u>113.9</u>	<u>95.6</u>	89.0	103.6
6 エトリムホス	103.7	106.9	<u>100.1</u>	80.5	<u>99.8</u>	94.0	104.2	91.8	108.3	<u>95.7</u>	75.2	<u>115.2</u>	<u>95.0</u>	88.9	97.1
7 クロロベンジレート	110.5	123.3	<u>97.3</u>	79.8	<u>101.2</u>	101.8	120.9	90.9	116.3	<u>102.8</u>	91.7	<u>114.9</u>	<u>96.0</u>	94.0	103.0
8 シハロホップブチル	120.3	131.2	<u>97.5</u>	96.6	<u>105.6</u>	99.6	116.7	94.3	119.6	<u>107.3</u>	111.1	<u>116.4</u>	<u>92.8</u>	92.8	107.3
9 ジメテナミド	108.7	117.0	<u>106.0</u>	85.5	<u>99.1</u>	93.3	106.3	89.3	119.0	<u>113.0</u>	90.7	<u>112.4</u>	<u>97.2</u>	92.7	102.2
10 シメトリン	109.6	108.9	<u>106.3</u>	86.0	<u>105.8</u>	94.2	119.7	89.3	127.2	<u>109.8</u>	99.8	<u>116.4</u>	<u>97.2</u>	89.1	104.2
11 チオベンカルブ	103.6	114.1	<u>101.1</u>	72.9	<u>98.8</u>	95.7	115.9	86.7	112.5	<u>95.1</u>	74.3	<u>116.0</u>	<u>97.7</u>	88.0	98.0
12 チフルザミド	118.2	127.1	<u>102.0</u>	<u>88.2</u>	<u>106.0</u>	108.3	119.2	88.9	117.2	<u>109.8</u>	115.1	<u>116.3</u>	<u>95.6</u>	90.2	107.3
13 トルクロホスメチル	93.5	112.3	<u>100.3</u>	78.6	<u>99.3</u>	94.9	110.5	85.1	116.3	<u>106.3</u>	73.3	<u>117.1</u>	<u>94.6</u>	88.5	97.9
14 ピラフルフェンエチル	104.4	117.5	<u>100.8</u>	96.8	<u>107.0</u>	95.3	113.8	86.8	107.1	<u>108.8</u>	96.6	<u>115.7</u>	<u>98.2</u>	86.9	102.6
15 ピリプチカルブ	120.1	118.8	<u>89.5</u>	70.2	<u>96.8</u>	103.0	120.6	83.6	101.5	<u>84.2</u>	80.0	<u>110.0</u>	<u>93.7</u>	85.2	96.9
16 ピリミノバックメチルE	110.7	118.5	<u>103.6</u>	96.7	<u>105.9</u>	92.3	115.0	86.7	105.8	<u>108.6</u>	97.1	<u>112.0</u>	<u>96.4</u>	85.6	102.5
17 ピリミノバックメチルZ	120.2	131.3	<u>104.0</u>	96.1	<u>103.1</u>	99.5	123.4	92.8	116.5	<u>108.4</u>	109.0	<u>116.9</u>	<u>96.3</u>	92.0	107.8
18 フェンチオン	75.5	90.7	<u>95.0</u>	85.5	<u>95.5</u>	91.3	103.6	79.3	111.6	<u>101.9</u>	93.4	<u>110.7</u>	<u>94.9</u>	82.1	93.7
19 フェンバレレート	116.8	120.9	<u>74.3</u>	<u>101.8</u>	<u>98.2</u>	108.9	118.8	103.5	117.3	<u>91.0</u>	92.7	<u>106.1</u>	<u>86.1</u>	94.8	102.2
20 ブタクロール	106.1	119.0	<u>87.5</u>	74.5	<u>92.3</u>	89.5	113.3	91.1	108.9	<u>83.0</u>	68.5	<u>109.8</u>	<u>93.6</u>	89.4	94.7
21 フルシトリネート	117.2	131.5	<u>84.5</u>	<u>85.0</u>	<u>100.5</u>	97.4	118.0	110.0	123.6	<u>89.7</u>	122.2	<u>116.5</u>	<u>93.0</u>	98.0	106.2
22 マラチオン	119.9	126.7	<u>100.8</u>	<u>85.2</u>	<u>102.9</u>	93.6	116.4	92.8	138.7	<u>108.3</u>	110.4	<u>111.9</u>	<u>90.5</u>	91.3	106.4
23 メトラクロール	117.3	120.4	<u>105.9</u>	96.4	<u>102.9</u>	98.1	103.5	89.3	116.8	<u>101.1</u>	93.8	<u>116.4</u>	<u>98.3</u>	91.8	103.7
24 メフェナセット	118.5	124.5	<u>104.4</u>	85.9	<u>104.9</u>	97.8	115.4	95.6	115.5	<u>106.6</u>	103.9	<u>113.9</u>	<u>91.0</u>	84.4	104.4
25 レナシル	111.7	115.0	<u>103.0</u>	83.9	<u>104.9</u>	96.3	112.3	87.0	110.3	<u>110.4</u>	95.3	<u>114.8</u>	<u>96.0</u>	85.2	101.9

\* 下線があるもの(化合物)はマトリックス添加標準溶液で回収率を計算し、70~120%の範囲内に改善されたものを示す。

\* 網かけはマトリックス添加標準溶液で回収率を計算した群を示す。

表10 検出農薬および一日摂取量

農薬名	食品群	検出濃度 ( $\mu\text{g/g}$ )	食品摂取量 (g)	農薬一日 摂取量 ( $\mu\text{g}$ )	ADI (mg/kg 体重/day)	対ADI比 (%) *1
ジノテフラン	VI	0.020	96.5	1.930	0.22	0.0176
	VIII	0.017	178.6	3.086	0.22	0.0281

\*1 対ADI比は平均体重を50kgとして算出した。

表11 個別食品での検出状況

農薬名	食品群	個別食品名	検出濃度 ( $\mu\text{g/g}$ )	基準値 (ppm)
ジノテフラン	VI	みかん	0.074	2
	VI	柿	0.031	2
	VIII	きゅうり	0.778	2
アセタミプリド	VI	りんご	0.024	2
フルフェノクスロン	VIII	セロリ	0.015	10



## 文献

- 1) 吉岡直樹, 秋山由美, 松岡智郁: 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—, 兵庫県立保健環境科学研究センター紀要, 第 4 号, 116-121
- 2) 加藤由希子・常松順子: 福岡市における食事からの残留農薬一日摂取量調査(2014), 福岡市保健環境研究所所報, 40, 178-183, 2014
- 3) 厚生労働省通知食安発第 0124001 号: 食品中に残留する農薬, 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, 平成 17 年 1 月 24 日
- 4) 柿本洋一郎, 千葉真弘, 青柳光敏: 北海道における食品残留農薬一日摂取量実態調査(平成 22 年度), 北海道立衛生研究所報, 63, 15-20, 2013
- 5) 平成 26 年度 食品中の残留農薬の一日摂取量調査結果, 厚生労働省ホームページ (<http://www.mhlw.go.jp/file/06-Seisakujouhou-11130500-Shokuhinanzentan/0000115140.pdf>)