

## 生薬及び煎出液に残留する 有機リン系及びピレスロイド系農薬

塩田 寛子<sup>\*</sup>, 浜野 朋子<sup>\*</sup>, 中嶋 順一<sup>\*</sup>,  
下村 壽一<sup>\*\*</sup>, 末次 大作<sup>\*\*\*</sup>, 安田 一郎

### Organophosphorus and Pyrethroid Pesticide Residues in The Crude Drugs and The Decoction

Hiroko SHIODA<sup>\*</sup>, Tomoko HAMANO<sup>\*</sup>, Junichi NAKAJIMA<sup>\*</sup>, Juichi SHIMOMURA<sup>\*\*</sup>,  
Daisaku SUETSUGU<sup>\*\*\*</sup> and Ichiro YASUDA<sup>\*</sup>

We have only a few crude drugs, Senna Leaf and Ginseng, that have tolerance levels for pesticides in the pharmacopoeia of Japan. This June, it was reported in some news papers that 4 organophosphorus pesticides and 2 pyrethroid pesticides were detected in 4 other crude drugs. There are many reports for pesticides in foods, but few in crude drugs. So we investigated 8 organophosphorus pesticides and 3 pyrethroid pesticides in 22 samples of 13 crude drugs. 5 organophosphorus pesticides were detected at 0.04 ppm - 1.7 ppm in 2 crude drugs, Citrus Unshiu Peel and Perilla Herb, and 3 pyrethroid pesticides were detected at 0.05 ppm - 0.44 ppm in 5 crude drugs, Citrus Unshiu Peel, Cornus Fruit, Jujube, Perilla Herb and Senna Leaf. As for the positives, the decoctions had low migration except for isocarbofos.

**Keywords:** 生薬 crude drugs, 残留農薬 pesticide residue, 有機リン系農薬 organophosphorus pesticides, ピレスロイド系農薬 pyrethroid pesticides, 煎出液 decoction

#### 緒 言

現在,日本薬局方(以下「局方」とする.)において生薬に残留する農薬の基準(純度試験)は,センナ<sup>1)</sup>及びニンジン<sup>2)</sup>等の有機塩素系農薬 総 BHC 及び総 DDT のみである。しかし,平成 15 年 6 月に,サンシュユ,ソヨウ,タイソウ及びチンピから有機リン系農薬 4 種及びピレスロイド系農薬 2 種が検出されたとの新聞報道があり,生薬の安全性並びに生薬における農薬の規格不備が問題となった。有機リン系及びピレスロイド系農薬の分析は,食品に対しては広く行われており,その分析法や残留実態についての報告は多数ある。しかし,生薬については,有機塩素系農薬に関する報告はあるものの<sup>3)</sup>,これらの農薬に関する報告はほとんどない。そこで,東京都では速やかに局方収載生薬 13 種 22 試料を収集し,これらの残留農薬に関する実態調査を実施した。今回調査対象とした農薬は,生薬の主な原産国である中国の青果物等から検出されたことのある,有機リン系農薬 8 種及びピレスロイド系農薬 3 種で,試験にあたり精製操作について若干検討を行った。また,生薬は

主に煎剤として服用することから,農薬が検出された生薬については,煎出液への移行に関しても検討を行ったので,併せて報告する。

#### 実験の部

##### 1. 実験方法

##### 1) 試料

次に示す都内に流通する局方収載生薬 13 種 22 試料。トウヒ Bitter Orange Peel (試料数: 1 以下同様),チンピ Citrus Unshiu Peel (1),サンシュユ Cornus Fruit (2),マオウ Ephedra Herb (2),サンシシ Gardenia Fruit (2),ニンジン Ginseng (3),タイソウ Jujube (3),ソヨウ Perilla Herb (1),カゴソウ Prunellae Spica (1),コウカ Safflower (1),ゴミシ Schisandra Fruit (3),ケイガイ Schizonepeta (1) 及びセンナ Senna Leaf (1)。これら生薬の原産国は,トウヒがスペイン,センナがインド,その他はすべて中国である。

\* 東京都健康安全研究センター医薬品部医薬品研究科 169-0073 東京都新宿区百人町 3-24-1

\* Tokyo Metropolitan Institute of Public Health

3-24-1, Hyakunin-cho, Shinjuku-ku, Tokyo 169-0073 Japan

\*\* 東京都健康安全研究センター広域監視部薬事監視指導課

\*\*\* 東京都健康安全研究センター広域監視部東部薬事衛生事務所

## 2) 検査対象農薬

有機リン系農薬 8 種, クロルピリホス, エチオン, イソカルボホス, マラチオン, メチダチオン, パラチオン, パラチオンメチル及びトリアゾホス.

ピレスロイド系農薬 3 種, シペルメトリン, フェンバレート及びペルメトリン.

## 3) 試薬

農薬標準品は, 和光純薬工業(株)製, Nanogen 製, Riedel-de Ha n 社製, Bayer 製を用いた.

農薬抽出用の精製水は, 残留農薬用 *n*-ヘキサンで洗浄して用いた. 塩化ナトリウムは, 特級品を *n*-ヘキサンで洗浄して用いた. 他の試薬及び溶媒は, 残留農薬用を用いた.

フロリジルミニカラムは, Sep-Pak<sup>®</sup> Plus Florisil<sup>®</sup> Cartridges 910 mg (Waters 社製)を用いた. 有機リン系測定の際にはあらかじめアセトン 10 mL, *n*-ヘキサン 10 mL で, ピレスロイド系測定の際にはジエチルエーテル 10 mL, *n*-ヘキサン 10 mL で順次洗浄後使用した. グラファイトカーボンカラムは, ENVI-Carb<sup>®</sup> 6 mL (500 mg) (SUPELCO 製)を用い, あらかじめアセトン 10 mL, *n*-ヘキサン 10 mL で洗浄後使用した.

## 4) 装置

粉碎器は, サンプルミル TI-100 (平工製作所製), ホモジナイザーは, エースホモジナイザー (株)日本精機製作所製), GC-FPD 及び GC-FTD は, GC-14BP (島津製作所製), GC-ECD は, HP6890 (Agilent 社製), GC/MS は, Trace GC2000/Trace MS (Thermo Electron 社製) 及び HP 6890N GC/HP 5973N MS (Agilent 社製)を用いた.

## 5) 標準溶液の調製

農薬標準品, 各々約 100 mg を精密に量り *n*-ヘキサンに溶解し, 1,000 ppm に調製したものを *n*-ヘキサンで希釈し添加回収用溶液及び GC 用標準溶液とした.

## 6) 試料溶液の調製

## (1) 抽出液の調製

衛生試験法<sup>4)</sup>, 残留農薬迅速分析法<sup>5)</sup>及び既報<sup>6)</sup>に準じて試験を行った.

生薬試料: 生薬 100 g をとり, 粉碎器で粉末化, 均一に混合し粉末試料とする. 粉末試料 20.0 g を正確に量り, アセトン/水混液 (5:2) 150 mL を加え, 室温にて一晩放置する. これをろ過し, ろ液をアセトン臭がほとんどなくなるまで減圧下濃縮する. 濃縮液に塩化ナトリウム試液 100 mL, *n*-ヘキサン/酢酸エチル混液 (4:1) 100 mL を加え, 5 分間振り混ぜて抽出し, 有機溶媒層を分取する. 水層を更に *n*-ヘキサン/酢酸エチル混液 (4:1) 50 mL で同様に操作する. 有機溶媒層を合わせ, 無水硫酸ナトリウム約 30g で脱水後ろ過し, ろ液を減圧下留去する. 残留物に *n*-ヘキサン 5 mL を正確に加え溶解し, 抽出液とする. 残留物が油状のものには, 衛生試験法<sup>4)</sup>に準じて, 更にアセトニトリル・*n*-ヘキサンで分配操作を加える.

なお, 添加回収用試料は, 粉末試料 20.0 g に有機リン系農薬 2 ppm の添加回収用溶液 2 mL 及びピレスロイド系農

薬 1 ppm の添加回収用溶液 1 mL を添加し, 30 分間放置後, 同様に操作する.

煎出液: 医薬品製造指針<sup>7)</sup> 及び中医学方解説<sup>8)</sup>に準じて煎出液を調製した. 生薬は細切から中切<sup>9)</sup>に刻み, 5.0g を正確にピーカーに量り, 水 100 mL を加えて, ホットプレート上で 1 時間, 煎出液が約 50 mL になるまで加熱する. 温時綿栓ろ過し, 残さは水 25 mL で洗浄し, 洗浄液とろ液を合わせる. 放冷後, 塩化ナトリウムを 10%濃度になるように加え, 更に *n*-ヘキサン/酢酸エチル混液 (4:1) 50 mL を加えて 5 分間振とう抽出し, 有機溶媒層を分取する. 水層に更に *n*-ヘキサン/酢酸エチル混液 (4:1) 50 mL を加え同様に操作する. 有機溶媒層を合わせ, 無水硫酸ナトリウム約 30 g で脱水後ろ過し, ろ液を減圧下留去する. 残留物に *n*-ヘキサン 2.5 mL を正確に加え溶解し, 抽出液とする.

## (2) 精製操作

有機リン系農薬: 抽出液 2 mL をフロリジルミニカラムに負荷し, *n*-ヘキサン/アセトン混液 (17:3) 20 mL で溶出後, 溶出液を減圧下留去させ, 残留物に *n*-ヘキサン 1 mL を正確に加え溶解し, GC 用試料溶液とする. 抽出液が多量のクロロフィルなどにより濃緑色を呈したマオウ, ソヨウ, カゴソウ, ケイガイ及びセンナは, 抽出液 2 mL をグラファイトカーボンカラムに負荷し, アセトン 20 mL で溶出, 溶出液を減圧下留去後, 残留物を *n*-ヘキサン 2.5 mL に溶解する. このうち 2.0 mL をフロリジルミニカラムに負荷し, 前出と同様の操作後残留物に *n*-ヘキサン 0.8 mL を正確に加え溶解し, GC 用試料溶液とする.

ピレスロイド系農薬: 抽出液 1 mL をフロリジルミニカラムに負荷する. *n*-ヘキサン 5 mL で洗浄後, *n*-ヘキサン/ジエチルエーテル混液 (17:3) 20 mL で溶出. 溶出液を減圧下乾固させ, 残留物に *n*-ヘキサン 2 mL を正確に加え溶解し, GC 用試料溶液とする.

## 7) GC 条件

GC/FTD: カラム DB-17 (0.53 mm i.d. × 30 m, 膜厚 1.0 μm, J&W 社製) 注入口温度 250, 検出器温度 280, カラム温度 80 (1 min)- 8 /min-250 (6 min), ヘリウム流量 2 mL/min, メーカーアップガス流量 30 mL/min, 水素 55 kPa, 空気 50 kPa, ダイレクトインジェクション.

GC/FPD: カラム DB-5 (0.53 mm i.d. × 30 m, 膜厚 1.5 μm, J&W 社製) 他 GC/FTD と同条件.

GC/ECD: カラム HP-5 (0.25 mm i.d. × 30 m, 膜厚 0.25 μm, Agilent 社製), 注入口温度 250, 検出器温度 300, カラム温度 160 -4 /min-230 (8 min)- 10 /min-290 (2 min), ヘリウム流量 3.5 mL/min, メーカーアップガス流量 30 mL/min, スプリット比 10:1. カラム SPB-608 (0.25 mm i.d. × 30 m, 膜厚 0.25 μm, Agilent 社製), 注入口温度 250, 検出器温度 300, カラム温度 170 -4 /min-220 (8 min)- 10 /min-270 (15 min), ヘリウム流量 3.5 mL/min, メーカーアップガス流量 30 mL/min, スプリット比 10:1.

GC/MS: カラム HP-5(0.25 mm i.d. × 30 m, 膜厚 0.25 μm, Agilent 社製), 注入口温度 250 , カラム温度 160 -4 / min-230 (8 min)- 10 / min-290 (2 min), インターフェース温度 250 , イオン源温度 200 , ヘリウム流量 1.5 mL/min, スプリットレス. カラム GC/MS 条件と同じ, 注入口温度 250 , カラム温度 80 -30 / min-178 (10 min)- 2 / min-205 -30 / min-280 (4 min), インターフェース温度 200 , イオン源温度 150 , ヘリウム流量 1.0 mL/min, スプリットレス.

GC/FTD, GC/FPD 及び GC/ECD を用いて, 定性並びに定量を GC/MS を用いて確認の分析を行った. なお, GC/FTD, GC/FPD 及び GC/ECD における各農薬の定量限界 (S/N=6) は 0.01 ppm 及び検出限界 (S/N=3) は 0.005 ppm であった.

### 結果及び考察

#### 1. 精製操作の検討

GC 用試料溶液を調製する過程の精製操作において, 局方<sup>1) 2)</sup> 及び衛生試験法<sup>4)</sup> ともにオープンカラムが用いられている. しかし, 現在ミニカラムが汎用されていることから, 今回, グラファイトカーボンカラムとして, ENVI-Carb<sup>R</sup> を, フロリジルカラムとして, Sep-Pak<sup>R</sup> Plus Florisil<sup>R</sup> を用いることにし, 分析対象とした農薬に適する溶出溶媒の種類並びに溶出量について検討を行った.

グラファイトカーボンカラムでは, オープンカラムで用いられているアセトンについて溶出量を検討した. 有機リン系農薬の添加回収用 2 ppm 溶液 1 mL を負荷し, アセトン各 10 mL を 3 回分取した結果, 対象とした農薬は 2 回目ではほぼ完全に回収できたことから, アセトン 20 mL で溶出することとした.

有機リン系農薬に用いるフロリジルミニカラムについて

は, 有機リン系農薬の添加回収用 2 ppm 溶液 1 mL を負荷し, *n*-ヘキサン/アセトン混液で検討した. まず, 精製効果を上げるための洗浄操作として, *n*-ヘキサン 10 mL での溶出状態を確認したところ, パラチオンが若干溶出されたことから, *n*-ヘキサン洗浄をしないことにした. 次に, ミニカラムに *n*-ヘキサン/アセトン混液 (99:1), (97:3), (19:1), (17:3), (7:3) の溶出溶媒各 30 mL を順次流出させ分取したところ (17:3) 溶液ですべて溶出した. 更に適切な溶出溶媒量を確定するため (17:3) 溶液 10 mL で 3 回分取したところ, 2 回目ではほぼ完全に回収できたので, (17:3) 溶液 20 mL で溶出することにした.

ピレスロイド系農薬に用いるフロリジルミニカラムについては, ピレスロイド系農薬 1 ppm の添加回収用溶液 1 mL を負荷したものについて, 残留農薬迅速分析法<sup>5)</sup> に準じ, *n*-ヘキサン 5 mL で 1 回, *n*-ヘキサン/ジエチルエーテル混液 (17:3) 10 mL で 2 回, 続いて *n*-ヘキサン/ジエチルエーテル混液 (3:1) 10 mL で 2 回分取したところ, *n*-ヘキサンには溶出されず, *n*-ヘキサン/ジエチルエーテル混液 (17:3) の 2 回目で, 全て溶出したことから, *n*-ヘキサン 5 mL で洗浄後, *n*-ヘキサン/ジエチルエーテル混液 (17:3) 20 mL で溶出することにした.

本法を用い, 果実部を用いるチンピ, サンシュユ並びにタイソウ, 根部を用いるニンジン, 及び葉部を用いるソヨウ並びにセンナ以上 6 種の生薬について添加回収実験を行ったところ, Table 1 に示す結果が得られた. 回収率は, 概ね 60~140% の範囲及び相対標準偏差が 20% 以下<sup>10)</sup> であったことから, 残留農薬の試験法として採用できるものと判断した.

#### 2. 生薬の残留農薬の分析結果

生薬 13 種 22 試料を分析した結果, Table 2 に示すよう

Table 1. Recovery (%) of Pesticides in Crude Drugs

Compounds	Citrus Unshiu Peel (チンピ)	Cornus Fruit (サンシュユ)	Jujube (タイソウ)	Ginseng (ニンジン)	Perilla Herb (ソヨウ)	Senna Leaf (センナ)
Organo Phosphorus						
Chlorpyrifos [A]	63 ± 1 <sup>1)</sup>	86 ± 14	94 ± 4	71 ± 6	98 ± 6	63 ± 5
Ethion [B]	102 ± 1	76 ± 3	143 ± 3	115 ± 8	177 ± 2	107 ± 13
Isocarbofos [C]	69 ± 4	101 ± 6	106 ± 3	69 ± 5	110 ± 4	71 ± 2
Malathion [D]	57 ± 1	112 ± 6	97 ± 2	68 ± 5	105 ± 3	84 ± 1
Methidathion [E]	87 ± 11	112 ± 1	138 ± 6	100 ± 3	136 ± 4	79 ± 3
Parathion [F]	57 ± 1	103 ± 10	97 ± 2	68 ± 6	105 ± 3	84 ± 1
Parathion-methyl [G]	56 ± 5	112 ± 4	111 ± 4	109 ± 7	143 ± 4	100 ± 16
Triazophos [H]	81 ± 3	89 ± 5	142 ± 4	129 ± 8	159 ± 2	94 ± 8
Pyrethroid						
Cypermethrin [I]	70 ± 1	70 ± 1	71 ± 1	97 ± 13	114 ± 20	68 ± 13
Fenvalerate [J]	83 ± 4	105 ± 2	91 ± 1	94 ± 5	92 ± 13	100 ± 8
Permethrin [K]	89 ± 2	103 ± 2	106 ± 1	117 ± 1	82 ± 9	125 ± 17

1) average ± RSD (%) (n=3)

Table 2. Pesticide Residues (ppm) in Crude Drugs

Crude drugs <sup>1)</sup>	No. of samples	No. of positives	Organophosphorus <sup>2)</sup>								Pyrethroid <sup>2)</sup>			
			A	B	C	D	E	F	G	H	I	J	K	
Bitter Orange Peel (トウヒ)	1	0	- <sup>3)</sup>	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
Citrus Unshiu Peel (チンピ)	1	1 <sup>4)</sup>	0.05	-	0.98	0.06	-	-	1.7	-	-	0.06	-	-
Cornus Fruit (サンシュユ)	2	1 <sup>4)</sup>	-	-	-	-	-	-	-	-	0.14	-	-	-
Ephedra Herb (マオウ)	2	0	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
Gardenia Fruit (サンシン)	2	0	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
Ginseng (ニンジン)	3	0	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
Jujube (タイソウ)	3	3 <sup>4)</sup>	-	-	-	-	-	-	-	-	0.08	0.05	-	-
			-	-	-	-	-	-	-	-	0.20	0.11	-	-
			-	-	-	-	-	-	-	-	0.07	0.24	-	-
Perilla Herb (ソヨウ)	1	1 <sup>4)</sup>	-	-	-	-	-	0.04	-	-	0.09	-	-	-
Prunellea Spica (カゴソウ)	1	0	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
Safflower (コウカ)	1	0	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
Schisandra Fruit (ゴミシ)	3	0	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
Schizonepeta (ケイガイ)	1	0	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
Senna Leaf (センナ)	1	1 <sup>4)</sup>	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	0.44

1) Habitate of each crude drugs : Spain, Bitter Orange Peel; India, Sennna Leaf; Others, China

2) Names of pesticides, A: Chlorpyrifos ; B: Ethion ; C: Isocarbofos; D: Malathion ; E: Methidathion; F: Parathion; G: Parathion-methyl; H: Triazophos; I: Cypermethrin; J: Fenvalerate; K: Permethrin

3) not detected

4) If the crude drug had only one sample for positive, it was analyzed for the rate of migration to the decoction, and as for another, Jujube, the sample written on the top of the crude drug was.

に生薬 2 種から有機リン系農薬 5 種及び生薬 5 種からピレスロイド系農薬 3 種を検出した。

有機リン系農薬は、チンピから 4 種、クロルピリホス (0.05 ppm), イソカルボホス (0.98 ppm), マラチオン (0.06 ppm), パラチオンメチル (1.7 ppm) 及びソヨウからパラチオン (0.04 ppm) が検出された。ピレスロイド系農薬は、チンピからフェンバレレート (0.06 ppm), サンシュユからシベルメトリン (0.14 ppm), タイソウからシベルメトリン (0.07~0.20 ppm) 並びにフェンバレレート (0.05~0.24 ppm), ソヨウからシベルメトリン (0.09 ppm) 及びセンナからペルメトリン (0.44 ppm) が検出された。

検出される農薬の種類は、生薬の種類だけでなく収穫年度など様々な要因が関わってくるため、今後も原産国における農薬の使用状況などの情報に注意しながら、分析を行っていく予定である。

一方、生薬は主に煎剤として服用するため、実際に摂取される農薬の量は、今回の検出値よりも少ないと考える。また、散剤としても用いられるセンナの場合でも、摂取さ

れる量は、食品衛生法の「その他野菜」としての残留農薬基準 <sup>11)</sup> に設定される 3.0 ppm に照らして、その約 15 % にしか当たらない。しかし、生薬は健康人が使用するのではないことや、長期間服用するケースが多いことを考慮すると、食品とは異なる観点からの規制が必要であると考えられる。

今回は、生薬個々の調査件数が少ないため、残留農薬実態の傾向を議論することは難しい。しかし、農薬が残留する生薬があることが確認されたことから、今後は件数を増やし、残留実態の傾向を把握して規制に向けての基礎的資料を作成する必要があると考えている。

### 3. 煎出液への農薬の移行

今回農薬が検出され生薬 (Table 2) 5 種について、各 1 試料を用いて、農薬が煎出液に移行する割合を調査し、その結果を Table 3 に示した。煎出液から検出されたのは、有機リン系は、チンピ中のイソカルボホス、マラチオン及びパラチオンメチルであった。一方、ピレスロイド系では、チンピ中のフェンバレレート及びセンナ中のペルメトリンが痕跡程度認められ、他は検出限界以下であった。検出さ

Table 3. The Rate of Migration of The Pesticides to The Decoctions

Crude drugs	Pesticides	Contents (ppm) and Rate (%) of migration
Citrus Unshiu Peel <sup>1)</sup> (チンピ)	Chlorpyrifos [A]	n. d. <sup>4)</sup>
	Isocarbofos [C]	0.98 <sup>5)</sup> [100] <sup>7)</sup>
	Malathion [D]	0.03 [50]
	Parathion-methyl [G]	0.15 [9]
	Fenvalerate [J]	Tr. <sup>6)</sup>
Cornus Fruit (サンシュユ)	Cypermethrin [I]	n. d.
Jujube <sup>2)</sup> (タイソウ)	Cypermethrin [I]	n. d.
	Fenvalerate [J]	n. d.
Perilla Herb (ソヨウ)	Parathion [F]	n. d.
	Cypermethrin [I]	n. d.
Senna Leaf <sup>3)</sup> (センナ)	Permethrin [K]	Tr.

1) This crude drug was referenced the detected pesticides to the tolerance for pesticide residue of food in Japan for UNSHU orange. : the tolerance of [A], 0.3 ppm; it of [D], 0.5 ppm; it of [G] and [J], 0.2 ppm

2) Similar to 1), but to it for other fruits: it of [J], 3.0 ppm

3) Similar to 1), but to it for other vegetables: it of [K], 3.0 ppm

4) not detected, 5) contents of migration (ppm)

6) trace, 7) rate of migration (%)

れた値を、チンピ中のマラチオン、パラチオンメチル並びにフェンバレートは「みかん果実」及びセンナのベルメトリンは「その他野菜」にと、その生薬に類似する農作物に設定された食品衛生法の残留農薬基準<sup>11)</sup>に当てはめてみたところ、それぞれの基準値 0.5 ppm, 0.2 ppm, 0.2 ppm 及び 3.0 ppm を超えるものはなかった。しかし、チンピ中のイソカルボホスは 100%、マラチオンは 50%が移行したことから、生薬中の残留量が高い場合には、煎出液中の含量が基準値を超えることも予想される。特に、イソカルボホスは、食品においてもまだ規制値が定められていない上、ADI も設定されていない農薬であるが、中国では農薬として登録され<sup>12)</sup>、使用している<sup>13)</sup>ので、今後も生薬から検出される可能性があり、注意が必要だと考える。

また、イソカルボホスは水に難溶性<sup>13)</sup>であるにもかかわらず、煎出液への移行率が高かった。これに関して、多くの煎出液が中性を示すのに対し、チンピの煎出液は pH が低い (pH 4) ことによる影響が考えられた。そこで、煎出液が酸性を示さないサンシシにイソカルボホスを添加し、精製水及び塩酸で pH4 に調整した酸性水を用いて煎じ、液性による影響を検討したところ、差は全く認められず、回収率は両者とも 50%であった。

生薬の煎剤を調製する際は、ごく微量の農薬に対して大量の水で長時間の抽出を行うことや、同時に溶出される生薬中の成分が、農薬の溶出を促進すると考えられる。したがって、同じ農薬でも、残留する生薬の種類により移行率が異なる可能性が高いことが予想され、煎出液への残留農薬の移行に関しては、更に詳細な検討を行う必要があると考えている。

## まとめ

東京都内に流通する局方収載生薬 13 種 22 試料につい

て、中国産農産物から検出される有機リン系農薬 8 種及びピレスロイド系農薬 3 種の残留量を測定した。

その結果、生薬 5 種 7 試料から有機リン系農薬 5 種 (0.04 ~ 1.7 ppm)、及びピレスロイド系農薬 3 種 (0.05 ~ 0.44 ppm) を検出した。4 種の生薬は主に煎剤として使用されるが、散剤としてよく用いられるセンナに、ベルメトリンを 0.44 ppm 認めた。しかし、この値は、類似する食品に対する食品衛生法の残留基準値 3.0 ppm をはるかに下回るものであった。

さらに、農薬が検出された生薬 5 種について、煎出液への移行率を検討したところ、チンピ中のイソカルボホスが 100% 及び同生薬中のマラチオンが 50% と高い値を示した。検出された量は、概ね低い値を示し、それぞれの生薬に類似する食品に対する残留農薬基準に外挿したところ、基準値を超えるものは認められなかった。

今回の結果より、農薬を残留する生薬が存在し、その煎剤中にも高い割合で移行する農薬があることが示唆された。そこで、今後は調査件数を増やし、残留実態の傾向を把握して、規制に向けての基礎的資料を作成する必要があると考えている。

## 参考文献

- 第 14 改正日本薬局方解説書, D651-664, 2001, 廣川書店, 東京.
- 第 14 改正日本薬局方解説書, D862-877, 2001, 廣川書店, 東京.
- 梶村計志, 坂上吉一, 横山浩, 他: 大阪府立公衛研所報, **29**, 21-25, 1995.
- 日本薬学会編: 衛生試験法注解 2000, 423-455, 2000, 金原(株)出版, 東京.
- 平成 9 年 4 月 8 日付衛化第 43 号厚生省生活衛生局長通知, 1997. 残留農薬迅速分析法.
- 塩田寛子, 高野伊知郎, 瀬戸隆子, 他: 東京衛研年報, **48**, 67-70, 1997.
- 薬事審査研究会監修: 医薬品製造指針 2001, 324-326, 2001, (株)じほう, 東京.
- (社)日本薬剤師会編: 漢方業務指針, (株)薬業時報社 (現(株)じほう), 278-279, 1981.
- 第 14 改正日本薬局方解説書, A10-11, 2001, 廣川書店, 東京.
- 厚生労働省監修: 食品衛生検査指針 残留農薬編 (社)日本食品衛生協会, 8, 2003.
- 昭和 34 年 12 月 28 日付厚生省告示第 370 号, 1969, 平成 16 年 8 月 6 日改正.
- C D S Tomlin: the Pesticide Manual, 13th edition, British Crop Protection Council, 582 - 583, 2003, UK.
- 「Acute Pesticide Poisoning in China»: Jinxiang Huang, URL [http://www.nihs.go.jp/GING/meetihg/7th/7\\_profile/china.pdf](http://www.nihs.go.jp/GING/meetihg/7th/7_profile/china.pdf).