

輸入農産物中の残留農薬実態調査（平成27年度）

—果実類—

相澤 正樹^a, 大塚 健治^a, 富澤 早苗^a, 増渕 珠子^a, 八巻 ゆみこ^a, 岩越 景子^b,
中川 由紀子^a, 増田 諒子^c, 須藤 将太^a, 小鍛治 好恵^a, 新藤 哲也^a

平成27年4月から平成28年3月に都内に流通していた輸入農産物のうち、果実類19種154作物について残留農薬実態調査を行った。その結果、16種109作物（検出率71%）から殺虫剤、殺菌剤、除草剤合わせて62種類の農薬が痕跡（0.01 ppm未満）～3.8 ppm検出された。検出農薬の内訳は、有機リン系殺虫剤12種類（クロルピリホス、マラチオン他）、カルバメート系殺虫剤3種類（カルバリル、ジエトフェンカルブ、メトキシフェノジド）、有機塩素系農薬5種類（キャプタン、イプロジオン他）、ピレスロイド系殺虫剤8種類（ビフェントリン、シベルメトリン他）、含窒素系及びその他の殺虫剤9種類（イミダクロプリド、ピリプロキシフェン他）、含窒素系及びその他の殺菌剤24種類（イマザリル、チアベンダゾール他）、含窒素系除草剤1種類（シマジン）であった。なお、食品衛生法の残留基準値及び一律基準値（0.01 ppm）を超えて検出されたものはなかった。

キーワード：残留農薬，輸入農産物，果実，殺虫剤，殺菌剤，除草剤，残留基準値，一律基準値

はじめに

日本は世界有数の農産物輸入国であり¹⁾、食料自給率はカロリーベースで39%（平成27年度）²⁾と、輸入食品に大きく依存している。東京都は、平成15年度に食品安全条例を制定し³⁾、近年では平成26年度に食品安全に関する諸課題や2020年東京オリンピック・パラリンピック競技大会の開催も見据えた課題を整理し、「東京都食品安全推進計画」を改定する等⁴⁾、様々な施策を実施してきた。

一方、世界情勢に目を向けると、平成28年2月には環太平洋パートナーシップ協定（TPP）交渉12か国は協定に署名し⁵⁾、世界のGDPの約4割、人口の1割強（約8億人）を占める巨大な経済圏が誕生した。その結果、日本に関しては、生鮮果実の関税が段階的に引き下げられ、将来的にはすべての品目で撤廃されることとなった。TPP協定は、多大な経済効果をもたらすと期待される一方で、日本の農産物市場においては、今後これまでに上により安価な農産物が大量に輸入されることが見込まれる。

こうした状況の下、より一層の食の安全を確保するため、輸入食品の監視・検査体制を強化し、その検査結果を正確かつ適切に情報提供することの重要性が増している。

著者らは監視業務の一環として、昭和57年度より輸入農産物中の残留農薬実態調査を継続的に実施している^{6,7)}。本稿では、平成27年度に検査を実施した輸入農産物のうち、果実類の調査結果について報告する。

実験方法

1. 試料

平成27年4月から平成28年3月に都内に流通していた輸入果実類19種154作物について調査した。これら試料の内訳をTable 1に示した。

なお、残留農薬基準値への適否判断の対象となる部位は作物の種類によって異なるが、本調査ではより広範囲に残留農薬実態を把握することを目的として、残留基準値の適否判断の対象とならない作物部位も調査対象とした。これらについては、可能な限り多くの試料量を集め均質化した上で分析に供した。

2. 調査対象農薬

有機リン系、有機塩素系、カルバメート系、ピレスロイド系、含窒素系、その他の農薬及びこれらの代謝物、計295種類（異性体を含む）を対象とした（Table 2）。

3. 装置

1) ガスクロマトグラフ

（株）島津製作所製 GC-2010（検出器：FPD）及びAgilent社製 7890（検出器：NPD, ECD）。

2) ガスクロマトグラフ質量分析計

Agilent社製7890A/5975C及び日本電子（株）社製Accu TOF GCv. （株）島津製作所製 GCMS-QP2010Plus.

3) 液体クロマトグラフ質量分析計

Waters社製Xevo TQD System. SCIEX社製5500Q

^a 東京都健康安全研究センター食品化学部残留物質研究科
169-0073 東京都新宿区百人町3-24-1

^b 東京都健康安全研究センター食品化学部食品添加物研究科

^c 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

Table 1. Investigates Crops

Citrus	Grapefruit(15) ¹⁾ , Lemon(9), Orange(13)	3 species 37 Crops
Berry	Bilberry(1) ²⁾ , Blackberry(1) ²⁾ , Blueberry(14) ²⁾ , Raspberry(5) ²⁾ , Strawberry(10) ²⁾	5 species 31 Crops
Other	Banana(24), Cherry(2), Grape(4), Kiwifruit(9), Lychee(5) ²⁾ , Mandarin orange(1) ²⁾ , Mango(18) ²⁾ , Melon(2), Papaya(4), Pineapple(15) ²⁾ , Pomegranate [ZAKURO](2)	11 species 86 Crops
		Total 19 species 154 Crops

1) Values in parentheses indicate number of individual samples, 2) include the cut or frozen commodity

TRAP System, 4000Q TRAP System及びTriple Quad 5500 System.

4. 分析方法

厚生労働省通知試験法⁸⁾, 農産物中残留農薬の迅速試験法⁹⁾等を用いた。定量限界は0.01 ppmで、定量限界値未満で農薬の存在を確認できたものを痕跡とした。

結果及び考察

平成27年度に都内に流通していた輸入農産物のうち、果実類19種154作物について残留農薬実態調査を行った結果、16種109作物(検出率71%)から殺虫剤、殺菌剤、除草剤合わせて62種類の農薬が痕跡(0.01 ppm未満)～3.8 ppm検出された。食品衛生法の残留基準値及び一律基準値(0.01 ppm)を超えて検出されたものはなかった。

1. 柑橘中の残留農薬

柑橘類3種37作物について、基準値の適否検査対象部位である全果及び対象部位ではない果肉の調査を行った。農薬が検出された作物の調査結果をTable 3に示した。

全37作物のうち南アフリカ産レモン1作物を除くすべての作物からイマザリル又はチアベンダゾール(以下TBZ), もしくは両方が痕跡～3.8 ppm検出された。また果肉からも、全37作物のうち南アフリカ産グレープフルーツ及びレモンの2作物を除くすべての作物から、イマザリル又はTBZが痕跡～0.27 ppm検出された。

殺虫剤では、有機リン系殺虫剤のクロルピリホスが3種23作物の全果から痕跡～0.15 ppm検出された。ネオニコチノイド系殺虫剤のイミダクロプリドが3種5作物から痕跡～0.03 ppm検出され、このうち南アフリカ産グレープフルーツ及びオレンジ、アメリカ産レモンにおいては、果肉からも痕跡程度検出された。イミダクロプリドはオクタノール・水分係数(log Pow)が小さく(log Pow=0.57(21°C)), 水分含量の多い果実の内部まで浸透し、高い浸透移行性及び残効性を示す¹⁰⁾ため果肉からも痕跡量ではあるが、検出されたと推察される。また、同じネオニコチノイド系殺虫剤であるチアメトキサムがアメリカ産レモンの全果から、チアクロプリドが南アフリカ産グレープフルーツの全果からそれぞれ痕跡程度検出された。いずれも低濃度だったため果肉からの検出はなかったが、log Powはイミダクロ

プリド同様小さく(チアメトキサム: log Pow=-0.13(25°C), チアクロプリド: log Pow=1.26(20°C)), 浸透移行性も高いと考えられるため¹⁰⁾, 今後も使用状況や果肉への移行状況について注視していく必要がある。

殺菌剤では、フルジオキシニルがアメリカ産及びチリ産レモンとアメリカ産及びオーストラリア産オレンジ計9作物から0.25～1.5 ppm検出されたが、このうち8作物においては添加物としての使用を示す表示がなされていた。残り1作物はアメリカ産オレンジであり、1.3 ppmと比較的高濃度で検出された。フルジオキシニル(log Pow=4.12(25°C))の浸透移行性は低いため¹⁰⁾, 今年度は果肉での検出はなかった。同じく殺菌剤のピリメタニルが、南アフリカ産グレープフルーツ及びオレンジとチリ産レモンから痕跡～1.5 ppm程度検出された。果肉では、南アフリカ産オレンジ1検体から0.02 ppm検出されていた。ピリメタニルは、日本においては平成17年に農薬の登録が失効しているが、平成25年に柑橘類の防かび剤である食品添加物として指定されている。輸入農産物については、比較的高濃度での検出もたびたび見られるようになってきており、引き続き海外での使用が推測された。いずれも近年検出頻度が増加傾向にあり^{6,11,12)}, 果肉への浸透移行性は低いものの高濃度のため、また、以前より果肉においても検出されていることから、今後も使用状況について継続してモニタリングを行っていく必要がある。

除草剤では、チリ産レモンの全果からシマジンが痕跡程度検出された。調査を行った果実類の全作物のうち、除草剤が検出されたのはこの1作物のみであった。

2. ベリー類の残留農薬

生鮮及び冷凍のベリー類5種31作物について、基準値の適否検査対象部位である全果の調査を行った。農薬を検出した作物の調査結果をTable 4に示した。

31作物のうち、24作物(検出率77%, 以下同様)から農薬が検出された。果実類の中でもベリー類の検出率は、柑橘類の100%に次いで高く、農薬の複数残留も多く見られた。作物の種類ごとでは、ブルーベリー11作物(79%), ラズベリー4作物(80%), いちご9作物(90%)から農薬が検出されたが、ロシア産ビルベリーやチリ産ブラックベリーからは、検出されなかった。全体の検出状況としては、各作物ごとの国別各農薬検出状況は過去3年間と大きな違いはなかった^{6,11,12)}。

Table 2. List of Surveyed Pesticides¹⁾**Organophosphorus pesticides (92)²⁾**

- [Insecticide]** acephate, azinphos-ethyl, azinphos-methyl, bromophos, bromophos-ethyl, cadusafos, chlorfenvinphos (CVP-*E* and -*Z*), chlorpyrifos, chlorpyrifos-oxon, chlorpyrifos-methyl, cyanofenphos (CYP), cyanophos (CYAP), demeton-*O*, demeton-*S*, demeton-*S*-methyl, demeton-*S*-methyl sulfone, dialifos (dialifor), diazinon, dichlofenthion (ECP), dichlorvos (DDVP), dimethoate, dimethylvinphos (-*E* and -*Z*), dioxabenzofos (salithion), dioxathion, disulfoton (ethylthiodemeton), disulfoton-sulfone, disulfoton-sulfoxide, EPBP, EPN, EPN-oxon, ethion, ethoprophos (mocap), etrimfos, fenamiphos, fenchlorphos, fenitrothion (MEP), fenthion (MPP), fenthion-oxon sulfone (MPP-oxon sulfone), fenthion-oxon sulfoxide (MPP-oxon sulfoxide), fenthion-sulfone (MPP-sulfone), fenthion-sulfoxide (MPP-sulfoxide), fonofos, formothion, fosthiazate, heptenophos, isazofos, isocarbophos, isofenphos, isoxathion, leptophos, malafoxon, malathion, mecarbam, methacrifos, methamidophos, methidathion (DMTP), mevinphos (phosdrin), monocrotophos, naled (BRP), omethoate, oxydeprofos (ESP), oxydeprofos-sulfone (ESP-sulfone), parathion, parathion-methyl, phenthoate (PAP), phorate, phosfolan, phosalone, phosphamidon, phosmet (PMP), pirimiphos-methyl, profenofos, propaphos, propaphos-sulfone, prothiofos, prothiofos-oxon, pyraclofos, pyridaphenthion, quinalphos, sulfotep, terbufos, tetrachlorvinphos (CVMP), thiometon, triazophos, trichlorfon (DEP), vamidothion, vamidothion-sulfone
- [Fungicide]** edifenphos (EDDP), iprobenfos (IBP), tolclofos-methyl
- [Herbicide]** butamifos, piperophos

Organochlorine pesticides (39)

- [Insecticide]** aldrin, BHC (HCH) (α -, β -, γ - and δ -), chlordane (*cis*- and *trans*-), chlorfenapyr, chlorfenson, chloropropylate, DDT (*p,p'*-DDD, *p,p'*-DDE and *o,p'*-, *p,p'*-DDT), *o,p'*-DDD, dicofol, dieldrin, endosulfan (-I, -II), endosulfan sulfate, endrin, fipronil, heptachlor, heptachlor-epoxide, methoxychlor, tetradifon
- [Fungicide]** captafol, captan, chloroneb, chlorothalonil (TPN), dichlofluanid, dicloran (CNA), folpet, iprodione, iprodione metabolite, phthalide, procymidone, quintozone (PCNB), tecnazene, vinclozolin
- [Herbicide]** bifenox, chlormethoxynil (chlormethoxyfen), chlornitrofen (CNP), chlorthal-dimethyl, clodinafop-propargyl, diclofop-methyl
- [Bactericide]** nitrapyrin

Carbamate pesticides (26)

- [Insecticide]** aldicarb, aldoxycarb (aldicarb sulfone), aminocarb, bendiocarb, carbaryl (NAC), carbofuran, fenobucarb (BPMC), fenothiocarb, fenoxycarb, indoxacarb, isoprocarb (MIPC), methiocarb, methomyl, methoxyfenozide, metolcarb (MTMC), oxamyl, pirimicarb, propoxur (PHC), thiodicarb, XMC, xylylcarb (MPMC)
- [Fungicide]** diethofencarb
- [Herbicide]** chlorpropham (CIPC), esprocarb, thiobencarb, tri-allate

Pyrethroid pesticides (16)

- [Insecticide]** acrinathrin, allethrin, bifenthrin, cyfluthrin, cyhalothrin, cypermethrin, deltamethrin, fenpropathrin, fenvalerate, flucythrinate, fluvalinate, halfenprox, permethrin, silafluofen, tefluthrin, tralomethrin

Organonitrogen and Other pesticides (122)

- [Insecticide]** acetamiprid, bromopropylate, buprofezin, clothianidin, dinotefuran, etoxazole, flonicamid, fluacrypyrim, hexythiazox, imidacloprid, nitenpyram, nitenpyram metabolite (CPF), penthiopyrad, pyridaben, pyridalyl, pyrimidifen, pyriproxyfen, tebufenozide, tebufenpyrad, thiacloprid, thiacloprid amide, thiamethoxam
- [Fungicide]** azaconazole, azoxystrobin, benalaxyl, bitertanol, boscalid, cyproconazole, cyprodinil, diclobutrazol, difenoconazole, diniconazole, epoxiconazole, fenamidone, fenarimol, fenbuconazole, fenoxanil, fluazinam, fludioxonil, flusilazole, flutolanil, flutriafol, hexaconazole, imazalil, isoprothiolane, kresoxim-methyl, mepronil, metalaxyl, myclobutanil, nitrothal-isopropyl, *o*-phenylphenol (OPP), oxadixyl, penconazole, prochloraz, prochloraz metabolite (2,4,6-trichlorophenol), propiconazole, pyraclostrobin, pyrifenoxy, pyrimethanil, quinoxifen, tebuconazole, tetraconazole, thiabendazole (TBZ), thifluzamide, tolylfluanid, triadimefon, triadimenol, tricyclazole, trifloxystrobin, triflumizole, triflumizole metabolite
- [Herbicide]** acetochlor, alachlor, atrazine, benfluralin, benoxacor, bromacil, bromobutide, butachlor, butafenacil, cafenstrole, carfentrazone-ethyl, clomeprop, cloquintocet-mexyl, cyanazine, cyhalofop-butyl, dichlobenil, diflufenican, dimethenamid, dithiopyr, ethalfluralin, flamprop-methyl, flumiclorac-pentyl, flumioxazin, lactofen, mefenacet, mefenpyr diethyl, metolachlor, metribuzin, naproanilide, norflurazon, oxadiazon, oxyfluorfen, pendimethalin, picolinafen, pretilachlor, prometryn, propachlor, propanil, propazine, propyzamide, pyraflufen-ethyl, quinclamine, simazine, terbacil, terbutylazine, thenylchlor, thiazopyr, trifluralin
- [Plant growth regulator]** dimethipin, paclobutrazol
- [Insecticide synergist]** piperonyl butoxide

Total 295 kinds

1) Includes metabolites, 2) Values in parentheses are indicated the number of pesticide

Table. 3 Pesticide Residues Detected in Imported Citrus

Crops Country	Part	No. of Sample	No. of Positive	Pesticide	Conc(ppm)	MRL ¹⁾ (ppm)
Grapefruit		total	15	15		
South Africa	(whole) ²⁾	8	8	Chlorpyrifos	Tr ³⁾ , 0.01, 0.13	1
				Imazalil	0.56, 0.66, 0.81, 1.0, 1.1, 1.2, 1.7, 2.3	5.0
				Imidacloprid	Tr, 0.03	0.7
				Malathion	0.01	7
				Prochloraz	0.01	10
				Pyraclostrobin	Tr, Tr, 0.02, 0.03, 0.03, 0.04, 0.04, 0.04	2
				Pyrimethanil	0.25, 0.90	10
				Pyriproxyfen	0.01, 0.01	0.5
				TBZ	0.02, 0.55	10
				Thiacloprid	Tr	0.01 ⁴⁾
				Trifloxystrobin	0.02	0.5
	(flesh) ⁵⁾	8	7	Imazalil	Tr, 0.01, 0.02, 0.02, 0.03, 0.04, 0.19	
USA	(whole)	7	7	Imidacloprid	Tr	
				Chlorpyrifos	Tr, 0.02, 0.03, 0.03, 0.07, 0.08	1
				Cypermethrin	Tr	2.0
				Fenbuconazole	Tr, Tr, Tr, Tr, 0.01	1
				Fenpropathrin	0.01, 0.02, 0.02, 0.02	5
				Imazalil	0.17, 0.35, 0.70, 0.83, 0.87, 1.1, 1.1	5.0
				Imidacloprid	Tr	0.7
				OPP	0.14, 0.30, 0.76, 1.0, 1.1, 1.1, 1.8	10
				Pyraclostrobin	0.03, 0.03, 0.04, 0.05, 0.05	2
				Pyriproxyfen	0.01, 0.01	0.5
				TBZ	0.16, 0.28, 0.35, 0.40, 0.89, 0.97, 1.1	10
	(flesh) ⁵⁾	7	7	Imazalil	Tr, 0.01, 0.01, 0.01, 0.03, 0.03	
				OPP	Tr, Tr	
				TBZ	Tr, Tr, 0.01, 0.01, 0.01, 0.02, 0.04	
Lemon		total	9	9		
Chile	(whole)	3	3	CAT	Tr	0.2
				Chlorpyrifos	0.05, 0.08, 0.10	1
				Fludioxonil	0.25, 0.91, 1.5	10
				Imazalil	1.8, 1.8, 2.6	5.0
				Pyrimethanil	Tr, 0.11	10
				TBZ	Tr, 0.01, 0.01	10
South Africa	(flesh) ⁵⁾	3	3	Imazalil	0.06, 0.08, 0.09	
USA	(whole)	1	1	Chlorpyrifos	Tr	1
	(whole)	5	5	Azoxystrobin	0.01, 0.02, 0.30, 0.52	10
				Chlorpyrifos	0.13	1
				Fludioxonil	0.41, 0.58, 0.70, 1.1	10
				Imazalil	0.04, 0.09, 0.71, 0.77, 1.2	5.0
				Imidacloprid	Tr	0.7
				Propiconazole	Tr	0.05
				TBZ	0.39, 0.41, 0.41, 0.52, 1.3	10
				Thiamethoxam	Tr	1
	(flesh) ⁵⁾	5	5	Imazalil	0.02, 0.02, 0.02	
				Imidacloprid	Tr	
				TBZ	Tr, Tr, Tr, 0.02, 0.02	
Orange		total	13	13		
Australia	(whole)	8	8	Chlorpyrifos	Tr, 0.02, 0.05, 0.08, 0.11, 0.13, 0.15	1
				DMP	0.07	5
				Fludioxonil	0.92	10
				Imazalil	0.96, 1.9, 2.1, 2.5, 2.9, 3.4, 3.7, 3.8	5.0
				OPP	Tr	10
				TBZ	0.34, 0.47, 1.3, 1.6, 1.9, 2.0, 2.2, 2.3	10
	(flesh) ⁵⁾	8	8	Imazalil	0.04, 0.05, 0.06, 0.08, 0.10, 0.11, 0.12, 0.27	
South Africa	(whole)	2	2	TBZ	Tr, Tr, Tr, 0.02, 0.04, 0.06, 0.06, 0.11	
				Buprofezin	0.01	2
				Imazalil	0.79, 1.8	5.0
				Imidacloprid	Tr	0.7
				Pyrimethanil	Tr, 1.5	10
				Pyriproxyfen	Tr	0.5
				TBZ	0.30, 0.69	10
				Trifloxystrobin	0.01	0.5
	(flesh) ⁵⁾	2	2	Imazalil	0.02, 0.18	
				Imidacloprid	Tr	
				Pyrimethanil	0.02	
				TBZ	Tr, 0.10	
USA	(whole)	3	3	Chlorpyrifos	0.02, 0.02	1
				Fenpropathrin	0.06	5
				Fludioxonil	1.3	10
				Imazalil	1.1, 1.2, 1.5	5.0
				Pyriproxyfen	0.01	0.5
				TBZ	0.70, 0.93, 1.0	10
	(flesh) ⁵⁾	3	3	Imazalil	Tr, 0.02, 0.02	
				TBZ	0.01	

1) The Maximum Residue Limit (MRL) for pesticides in foods as of March 31th, 2016, 2) Whole or unpeeled, 3) Tr : below the quantitation limit (0.01 ppm), 4) The Uniform Limit, 5) MRL or Uniform Limit is not applied to this part.

Table. 4 Pesticide Residues Detected in Imported Berry Fruits

Crops Country	Part	No. of Sample	No. of Positive	Pesticide	Conc(ppm)	MRL ¹⁾ (ppm)
Blueberry		total	14	11		
Canada	(whole)	2	2	Acetamiprid	Tr ²⁾	2
				Bifenthrin	0.14	2
				Boscalid	0.03, 0.06	10
				Captan	0.03	20
				Cyprodinil	0.04	5
				Fludioxonil	0.04	2
				Malathion	Tr, Tr	10
				Pyraclostrobin	Tr	4
Chile	(whole)	5	4	Boscalid	0.04, 0.09, 0.11	10
				Captan	0.11	20
				Fludioxonil	0.02	2
				Iprodione	Tr, 0.01	15
				PMP	0.01, 0.11, 0.11	10
				Pyraclostrobin	Tr, Tr, 0.03	4
				TPN	0.06	1
Mexico	(whole)	1	1	Acetamiprid	0.11	2
				Azoxystrobin	0.07	5
				Iprodione	Tr	15
USA	(whole)	5	4	Azoxystrobin	0.08, 0.14	5
				Boscalid	Tr, 0.11	10
				Captan	0.02, 0.21, 0.32	20
				Cypermethrin	0.04, 0.06, 0.06, 0.10	0.5
				Cyprodinil	0.04, 0.08, 0.09, 0.13	5
				Fenpropathrin	0.18	5
				Fenvalerate	Tr	1.0
				Fludioxonil	Tr, Tr, 0.01, 0.04	2
				Malathion	Tr, Tr, 0.03	10
				PMP	0.02	10
				TPN	0.04	1
Raspberry		total	5	4		
Chile	(whole)	1	1	Iprodione	0.02	5.0
Serbia	(whole)	2	2	Azoxystrobin	0.03, 0.06	5
				Boscalid	0.08, 0.16	10
				Cyprodinil	0.08, 0.23	10
				Fludioxonil	0.06, 0.16	5
				Iprodione	0.01	5.0
				Pyraclostrobin	0.02, 0.03	3
				Pyrimethanil	0.02	10
USA	(whole)	2	1	Boscalid	Tr	10
				Cypermethrin	0.04	0.5
Strawberry		total	10	9		
Chile	(whole)	2	2	Azoxystrobin	0.09	10
				Boscalid	Tr	15
				Cyprodinil	0.01	5
				Fludioxonil	0.02	5
				Iprodione	0.07	20
China	(whole)	4	3	Chlorpyrifos	Tr	0.2
				Diethofencarb	Tr	5.0
				Metalaxyl	Tr, Tr	7
				Pyrimethanil	Tr	10
USA	(whole)	4	4	Acetamiprid	0.02	3
				Azoxystrobin	0.04	10
				Bifenthrin	0.03, 0.04	2
				Boscalid	0.01, 0.04, 0.18	15
				Captan	0.44	20
				Cyprodinil	0.05, 0.22	5
				Fenpropathrin	Tr, 0.02	5
				Fonicamid	0.05, 0.10	2
				Fludioxonil	0.15	5
				Malaoxon	0.02	
				Malathion	0.03, 0.23	1
				Myclobutanil	0.07, 0.10	1
				Pentiopyrad	0.04, 0.25	3
				Propiconazole	Tr, 0.02	1
				Pyraclostrobin	Tr, 0.05	2
				Pyrimethanil	Tr, 0.40	10
				Quinoxifen	0.03	1
				Tetraconazole	0.02	2
				Thiamethoxam	0.02	2
				Triflumizole	0.07 ³⁾	1
				Piperonyl butoxide	0.23	8

1) The Maximum Residue Limit (MRL) for pesticides in foods as of March 31th, 2016, 2) Tr : below the quantitation limit (0.01 ppm),
3) include metabolites

殺虫剤では、有機リン系（クロルピリホス、マラチオン、ホスメット）、ピレスロイド系（ピフェントリン、シペルメトリン、フェンプロパトリン、フェンバレレート）、含窒素系（アセタミプリド、フロニカミド、チアメトキサム）が検出された。殺虫剤では、マラチオンが最も検出数が多く、31作物中7作物（23%）から痕跡～0.23 ppm検出された。中でもブルーベリーでの検出率が高く、14作物のうち5作物（36%）から検出された。ラズベリーについては検出されなかった。一方、いちごでは10作物のうちアメリカ産の2作物（20%）から検出されたが、このうち1作物が0.23 ppmと濃度が高く、代謝物であるマラオクソンも0.02 ppm検出された。マラチオンは、昆虫体内で代謝されたマラオクソンによるコリンエステラーゼの阻害作用により毒性を発現する¹⁰⁾。代謝物のマラオクソンは基準値に含まれないが、マラチオンより30倍毒性が強いため¹³⁾、今後も代謝物にも注目して調査を実施していく。次いで検出数が多かったシペルメトリンは、アメリカ産ブルーベリー4作物及びラズベリー1作物から0.04～0.10 ppm検出された。いずれの残留量も基準値の1/5以下であった。

また、ネオニコチノイド系殺虫剤のフロニカミドがアメリカ産いちご2作物から0.05～0.10 ppm検出された。フロニカミドは、日本では平成18年に農薬として登録されている。分子レベルでの作用点についての詳細は解明されていないが、害虫の吸汁行動を阻害することで、殺虫効果を発揮する¹⁰⁾。当研究室においては平成23年度から測定しており、昨年度初めて輸入果実（同じくいちご）から検出された⁶⁾。輸入野菜からは、平成24年度より韓国産パプリカやセロリからたびたび検出され^{7,15,16,17)}、国内産についても、トマトや白菜などの野菜やりんごなどの果実から多く検出されている^{18,19)}。特に3年間で使用が増加してきていることから、今後の検出状況について注意深くモニタリングしていく必要がある。

アメリカ産のいちごからは、共力剤のピペロニルブトキシドが0.23 ppm検出された。ピペロニルブトキシドは、単独では平凡な殺虫力しか持たない農薬であるが、ピレスロイド系農薬のノックダウン毒性を増大させる有効な相乗剤として作用する¹⁴⁾。このアメリカ産のいちごからは、ピフェントリンが0.04 ppm検出されていた。

殺菌剤では、有機塩素系（キャプタン、ジエトフェンカルブ）、含窒素系（アズキシストロビン、シプロジニル、ピラクロストロビン他）が検出された。ベリー類5種31作物中で検出数が14件（45%）と最も多かったのはボスカリドで、ブルーベリー7作物、ラズベリー3作物及びいちご4作物から痕跡～0.18 ppm検出された。次いでフルジオキソニルが3種10作物（32%）から痕跡～0.16 ppm検出、シプロジニルが3種10作物（32%）から痕跡～0.23 ppm検出された。いずれの残留量も基準値を大幅に下回っており、1/20以下であった。アメリカ産いちご2作物からは、本年度より測定を開始した含窒素系殺菌剤のペンチオピラドがそれぞれ0.25, 0.04 ppm検出された。ペンチオピラドは、

国内産のいちごについても適用作物となっており、既存のカルボン酸アニリド系化合物とは異なる病害スペクトルを有するが、灰色カビ病やうどんこ病などの既存の防除剤に対する耐性菌にも優れた効果を示す農薬である¹⁰⁾。国内産野菜の検体ではトマトから検出されており¹⁸⁾、今後も検出が見込まれることから引き続き注目していきたい。

3. その他果実の残留農薬

柑橘類及びベリー類以外の果実11種86作物について調査を行った。このうち、基準値の適否検査対象部位が全果であるものは、バナナ、おうとう（チェリーを含む）、ぶどう、マンゴー、パパイヤ及びパイナップルであり、適否検査対象部位が可食部の果肉であるものは、キウイ、ライチ、温州みかん、メロン及びザクロとなっている。適否検査対象外部位からも多数農薬が検出され、バナナ、マンゴー及びパパイヤでは果肉から、キウイ、ライチ、メロン及びザクロでは全果から農薬が検出された。86作物のうち、48作物（56%）から農薬が検出され、農薬が検出されなかった38作物の内訳は、バナナ2作物、キウイ8作物、ライチ1作物、温州みかん1作物、マンゴー11作物、パパイヤ3作物、パイナップル11作物及びザクロ1作物であった。農薬を検出した作物の調査結果をTable 5に示した。

エクアドル産バナナは6作物中5作物（83%）から、フィリピン産バナナは18作物中17作物（94%）から農薬が検出された。中でも、有機リン系殺虫剤のクロルピリホスは検出数が最多であり、16作物（67%）から痕跡～0.05 ppm検出された。殺菌剤では、2作物（8%）から2種類（アズキシストロビン、イマザリル）の農薬が痕跡～0.01 ppm検出されたが、いずれの残留量も基準値以下であった。可食部である果肉では、1作物（4%）からクロチアニジン、2作物（8%）からチアメトキサムが検出された。クロチアニジンにおいては、全果と同じ濃度（0.01 ppm）であった。クロチアニジンはネオニコチノイド系殺虫剤であり、平成22年度の当研究室における調査開始以来、痕跡以上で今回初めてバナナから残留が確認された。 $\log \text{Pow}=0.7(25^\circ\text{C})$ で浸透性が高いため¹⁰⁾、果肉への農薬の移行が進んだものと考えられる。同じくネオニコチノイド系殺虫剤のチアメトキサムは平成24年度の初検出以降、昨年度に引き続き今年度も検出された^{6,11)}。近年ネオニコチノイド系の農薬の使用が多く見られてきており、今後の検出状況について注目していきたい。

アメリカ産おうとう2作物から、殺虫剤3種類（アセタミプリド、カルバリル(NAC)、イミダクロプリド）、殺菌剤5種類（ボスカリド、イプロジオン、ピラクロストロビン、テブコナゾール、トリフルミゾール）の計8種類の農薬が痕跡～0.65 ppm検出された。当研究室による過去の調査においても、例年複数の農薬が検出されている^{6,11,12)}。

ぶどうでは、4作物中すべての作物から農薬が検出された。同じく例年複数の農薬が検出される傾向があり^{6,11,12)}、今年度は1作物当たり平均約6種類、最大9種類検出された。

Table. 5 Pesticide Residues Detected in Imported Other Fruits

Crops Country	Part	No. of Sample	No. of Positive	Pesticide	Conc(ppm)	MRL ¹⁾ (ppm)
Banana		total	24	22		
Ecuador	(whole)	6	5	Bifenthrin	Tr ²⁾ , Tr, Tr, Tr	0.1
				Chlorpyrifos	Tr, Tr, 0.01	3
Philippines	(whole)	18	16	Azoxystrobin	Tr	3
				Bifenthrin	Tr, Tr	0.1
				Chlorfenapyr	0.02	2
				Chlorpyrifos	Tr, Tr, Tr, 0.01, 0.02, 0.02, 0.02, 0.03, 0.03, 0.03, 0.05, 0.05, 0.05	3
				Clothianidin	0.01	1
				Cypermethrin	Tr	0.03
				Deltamethrin	Tr	0.5
				Imazalil	0.01	2.0
				Thiamethoxam	Tr	0.7
	(flesh) ³⁾	18	2	Clothianidin	0.01	
				Thiamethoxam	Tr, Tr	
Cherry		total	2	2		
Chile	(whole)	1	1	Acetamiprid	0.03	5
				Boscalid	Tr	3
				Iprodione	0.53	10
USA	(whole)	1	1	Tebuconazole	0.65	5
				Boscalid	0.03	3
				Imidacloprid	0.13	2
				NAC	0.02	10
				Pyraclostrobin	Tr	3
				Triflumizole	0.08 ⁴⁾	3
Grape		total	4	4		
Chile	(whole)	2	2	Azoxystrobin	0.02	10
				Boscalid	0.04, 0.04	10
				Difenoconazole	0.02	4
				Imidacloprid	Tr	3
				Iprodione	0.02, 0.08	25
				Myclobutanil	0.01	1
				Quinoxifen	Tr	2
USA	(whole)	2	2	Tebuconazole	0.01	10
				Acetamiprid	0.14	5
				Boscalid	0.04, 0.12	10
				Buprofezin	Tr	1
				Clothianidin	0.05	5
				Cyfluthrin	0.01	1.0
				Cyprodinil	0.10, 0.14	5
				Methoxyfenozide	0.02	1
				Pyraclostrobin	0.01, 0.07	3
				Quinoxifen	0.02	2
				Tebuconazole	0.03	10
				Trifloxystrobin	Tr	5
Kiwifruit		total	9	1		
New Zealand	(whole) ³⁾	9	1	Iprodione	0.05	5.0 ⁵⁾
Lychee		total	5	4		
China	(flesh)	4	2	Acephate	Tr	1.0
				Dimethoate	Tr, 0.06	0.5
				Omethoate	Tr	1
	(whole) ³⁾	3	2	2,4,6-Trichlorophenol	Tr	
				Acephate	Tr	
				Chlorpyrifos	0.10, 0.14	1 ⁵⁾
				Cyhalothrin	0.02	0.5 ⁵⁾
				Cypermethrin	0.12, 0.37	0.5 ⁵⁾
				Dimethoate	0.22	
				Endosulfan sulfate	Tr	
				Fenpropathrin	Tr	5 ⁵⁾
				Metalaxyl	0.01	0.01 ^{5,6)}
				Profenofos	0.03	0.05 ⁵⁾
				Propiconazole	0.04	0.01 ^{5,6)}
Vietnam	(whole) ³⁾	1	1	Azoxystrobin	0.05	5 ⁵⁾
				Chlorpyrifos	0.11	1 ⁵⁾
				Difenoconazole	0.26	2 ⁵⁾
				Hexaconazole	Tr	0.5 ⁵⁾
				Propiconazole	0.05	0.01 ^{5,6)}
				Qunalphos	0.06	0.02 ⁵⁾

Table. 5 Pesticide Residues Detected in Imported Other Fruits (Continued)

Crops Country	Part	No. of Sample	No. of Positive	Pesticide	Conc(ppm)	MRL ¹⁾ (ppm)
Mango		total	18			
Mexico	(whole)	2	2	Azoxystrobin	0.02, 0.61	1
				Trifloxystrobin	0.02	0.7
	(flesh) ³⁾	2	1	Azoxystrobin	0.01	
Pakistan	(whole)	2	1	Azoxystrobin	Tr	1
Peru	(flesh) ³⁾	1	1	TBZ	Tr	3 ⁷⁾
Philippines	(whole)	1	1	Azoxystrobin	0.2	1
				MEP	0.01	0.8
Taiwan	(whole)	1	1	Azoxystrobin	0.06	1
				Difenoconazole	Tr	0.07
				Imidacloprid	0.12	1
				Iprodione	0.09	10
				MPP	0.03	5
				MPP-oxon sulfoxide	0.05	
				MPP-sulfone	0.33	
				MPP-sulfoxide	0.12	
	(flesh) ³⁾	1	1	Azoxystrobin	0.01	
				Imidacloprid	0.11	
				Iprodione	0.02	
				MPP-oxon sulfoxide	0.02	
				MPP-sulfone	0.02	
				MPP-sulfoxide	0.02	
Vietnam	(flesh) ³⁾	5	1	Acephate	Tr	0.01 ^{6,7)}
Melon		total	2			
Mexico	(flesh)	1	1	Imidacloprid	0.02	0.4
	(whole) ³⁾	1	1	Imidacloprid	0.02	
				Permethrin	0.01	0.1 ⁵⁾
				TPN	0.03	2 ⁵⁾
USA	(flesh)	1	1	Bifenthrin	Tr	0.2
	(whole) ³⁾	1	1	Imidacloprid	Tr	0.4
				Boscalid	Tr	2 ⁵⁾
				Imidacloprid	Tr	
Papaya		total	4			
USA	(whole)	1	1	Buprofezin	0.01	0.9
				Imidacloprid	0.03	0.7
	(flesh) ³⁾	1	1	Imidacloprid	0.02	
Pineapple		total	15			
Philippines	(whole)	13	4	OPP	0.01	10
				Prochloraz	Tr	2
				Triadimefon	0.07	3
				Triadimenol	0.09	3
				Triflumizole	Tr, 0.03	2
Pomegranate		total	2			
USA	(whole)	2	1	Clothianidin	0.02	4 ⁵⁾
				Imazalil	0.01	0.02 ⁵⁾
				Imidacloprid	Tr	4 ⁵⁾

1) The Maximum Residue Limit (MRL) for pesticides in foods as of March 31th, 2016, 2) Tr : below the quantitation limit (0.01 ppm), 3) MRL or Uniform Limit is not applied to this part, 4) include metabolites, 5) The MRLs for flesh, 6) The Uniform Limit, 7)The MRLs for whole.

ぶどうやおとうは、同じ農薬の連用を避け、多剤を組み合わせて使用する傾向がある¹⁰⁾。これらの作物は生のまま皮ごと喫食することも多いため、残留した農薬をそのまま摂取する可能性が高い。個々の農薬の残留量は基準値を超える濃度ではなかったが、今後も継続的に残留実態を観察していく必要がある。

キウイについては、検査対象部位からの検出はなかったが、9作物中1作物の全果から殺菌剤であるイプロジオンが0.05 ppm検出された。

ライチは、中国産4作物中3作物、ベトナム産1作物中1作物の全果から殺虫剤9種類及び殺菌剤7種類が検出された。中国産1作物からはエンドスルファンサルフェートが痕跡

程度検出された。これは、有機塩素系殺虫剤エンドスルファンの代謝物であり、エンドスルファン自体は検出されなかった。平成23年4月に、「残留性有機汚染物質に関するストックホルム条約」(POPs条約)第5回締結国会議(COP5)において附属書Aに追加され、製造・使用が原則禁止となった物質である。中国での使用実態については不明な部分が多く、また、農薬と代謝物の両者ともに残留性が認められているため²⁰⁾、今後も両者について継続的に観察していく必要がある。可食部である果肉では、いずれも中国産2作物から検出があり、有機リン系殺虫剤のアセフェートが1作物、ジメトエート2作物、オメトエート1作物であった。ジメトエートは、酸化によりPに結合してい

るS原子がO原子に変化した代謝物であるオメトエートと共に、主にアジア産野菜からの検出頻度が高い農薬であり^{7,17)}、中国産ライチからも過去たびたび検出されている^{11,12)}。浸透性や残効性が高い農薬であるため¹⁰⁾、今後も継続してモニタリングしていく。

マンゴーは生鮮7作物、冷凍11作物の計18作物について検査を実施した。冷凍マンゴーは可食部である果肉のみの状態で販売されているものが搬入されるため、果肉のみ検査を実施した。18作物のうち、7作物(39%)から農薬が検出された。7作物の内訳は、生鮮が5作物、冷凍が2作物であった。有機リン系殺虫剤フェンチオン(以下MPP)については、MPPとその代謝物3種類(MPP-オキソンスルフォキシド、MPP-スルホン、MPP-スルフォキシド)が検出された。代謝物も含めた検出濃度の和は基準値の1/10以下であった。昨年度初めて検出されたMPP-オキソンスルフォキシドは、昨年度に引き続いての検出となった⁶⁾。代謝物については、果肉においても検出されており、MPPは蒸気圧が低く安定であるために残効性があり、局部的な浸透移行性もあるためと考えられる¹⁰⁾。これらの代謝物については基準値に含まれるため、今後も農薬及び代謝物に着目し、継続的に調査を行っていく。

うり科のメロン2作物から3種類の殺虫剤(ビフェントリン、イミダクロプリド、ペルメトリン)が痕跡~0.02 ppm検出された。このうち、基準値の適否検査対象部位の可食部である果肉からはビフェントリンとイミダクロプリドの2種類が検出されたが、いずれも基準値の1/10以下であった。ビフェントリンは果肉のみから検出されており、以前より確認されているが、イミダクロプリドについては近年検出が増加しており、今後も注目していく必要がある。この他、殺菌剤ではメキシコ産メロン1作物の全果からクロタロニル(TPN)が0.03 ppm、アメリカ産メロン1作物の全果からボスカリドが痕跡程度検出された。いずれも基準値の適否検査対象部位である果肉からの検出はなかった。

アメリカ産パパイヤの全果からは、4作物中1作物からイミダクロプリドが0.03 ppm、ブプロフェジンが0.01 ppmで検出された。このうち、果肉からは浸透性の高いイミダクロプリドが0.02 ppm検出された。

フィリピン産パイナップルの全果は15作物中4作物(27%)から殺菌剤が4種類検出された。可食部である果肉からは、全作物において農薬は検出されなかった。

アメリカ産ザクロの全果からは、2作物中1作物から殺虫剤2種類(クロチアニジン、イミダクロプリド)、殺菌剤1種類(イマザリル)が検出された。例年検出されている殺菌剤のフルジオキシニルは検出されなかった^{6,11,12)}。また、基準値の適否検査対象部位である果肉からは、農薬の検出はなかった。

ま と め

平成27年4月から平成28年3月に都内に流通していた輸入農産物のうち、果実類19種154作物について残留農薬実態

調査を行った。その結果、16種109作物(検出率71%)から殺虫剤、殺菌剤、除草剤合わせて62種類の農薬が痕跡(0.01 ppm未満)~3.8 ppm検出された。検出農薬の内訳は、有機リン系殺虫剤12種類(クロルピリホス、マラチオン他)、カルバメート系殺虫剤3種類(カルバリル、メトキシフェノジド、ジエトフェンカルブ)、有機塩素系農薬5種類(キャプタン、イプロジオン他)、ピレスロイド系殺虫剤8種類(ビフェントリン、シベルメトリン他)、含窒素系及びその他の殺虫剤9種類(イミダクロプリド、ピリプロキシフェン他)、含窒素系及びその他の殺菌剤24種類(イマザリル、チアベンダゾール他)、含窒素系除草剤1種類(シマジン)であった。

残留基準値及び一律基準値(0.01 ppm)を超えて検出されたものはなく、食品衛生法に違反するものはなかった。

本調査は東京都福祉保健局健康安全部食品監視課、当センター広域監視部食品監視第一課及び第二課と協力して行ったものである。

文 献

- 1) 農林水産省：平成27年度食料・農業・農村白書
http://www.maff.go.jp/j/wpaper/w_maff/h27/pdf/1-1-2.pdf
(平成28年8月24日現在、なお本URLは変更又は抹消の可能性はある)
- 2) 農林水産省：日本の食料自給率
http://www.maff.go.jp/j/zyukyu/zikyuru_012.html (平成28年8月24日現在、なお本URLは変更又は抹消の可能性はある)
- 3) 東京都福祉保健局：東京都食品安全条例
<http://www.fukushihoken.metro.tokyo.jp/shokuhin/jourei/index.html> (平成28年8月24日現在、なお本URLは変更または抹消の可能性はある)
- 4) 東京都福祉保健局：東京都食品安全推進計画
http://www.fukushihoken.metro.tokyo.jp/shokuhin/jourei/k-eikaku_3.html (平成28年8月24日現在、なお本URLは変更または抹消の可能性はある)
- 5) 内閣官房：TPP政府対策本部
<http://www.cas.go.jp/jp/ppp/index.html> (平成28年8月24日現在、なお本URLは変更または抹消の可能性はある)
- 6) 小鍛治好恵, 大塚健治, 富澤早苗, 他：東京健安研七
年報, **66**, 205-216, 2015.
- 7) 須藤将太, 大塚健治, 富澤早苗, 他：東京健安研七
年報, **66**, 197-204, 2015.
- 8) 厚生労働省医薬食品局食品安全部長：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(通知), 2005.
- 9) 岩越景子, 田村康宏, 大塚健治, 他：食衛誌, **55**,
254-260, 2014.
- 10) 社団法人日本植物防疫協会：農薬ハンドブック, 2011

- 年版, 2011, 社団法人日本植物防疫協会, 東京.
- 11) 富澤早苗, 大塚健治, 牛山慶子, 他: 東京健安研七年年報, **64**, 127-135, 2013.
 - 12) 増田諒子, 大塚健治, 富澤早苗, 他: 東京健安研七年年報, **65**, 181-189, 2014.
 - 13) Special Session of the Joint FAO/WHO Meeting on Pesticide Residues: Pesticide residues in food 2016. <http://www.fao.org/3/a-i5693e.pdf> (平成28年8月24日現在, なお本URLは変更または抹消の可能性がある)
 - 14) 内閣府食品安全委員会事務局: 平成23年度食品安全確保総合調査ポジティブリスト制度施行に伴う暫定基準の設定された農薬、動物用医薬品及び飼料添加物に係る食品健康影響評価に関する調査報告書 ピペロニルブトキシド <https://www.fsc.go.jp/fsciiis/attachedFile/download?retrieveId=cho20120030001&fileId=029> (平成28年8月24日現在, なお本URLは変更または抹消の可能性がある)
 - 15) 大塚健治, 牛山慶子, 田村康宏, 他: 東京健安研七年年報, **64**, 119-125, 2013.
 - 16) 中川由紀子, 大塚健治, 富澤早苗, 他: 東京健安研七年年報, **65**, 173-180, 2014.
 - 17) 八巻ゆみこ, 大塚健治, 富澤早苗, 他: 東京健安研七年年報, **67**, 203-210, 2016.
 - 18) 大塚健治, 富澤早苗, 増淵珠子, 他: 東京健安研七年年報, **67**, 223-229, 2016.
 - 19) 富澤早苗, 大塚健治, 田村康宏, 他: 東京健安研七年年報, **66**, 189-195, 2015.
 - 20) 経済産業省: エンドスルファン及びヘキサプロモシクロドデカンの分解性, 蓄積性及び毒性等について http://www.meti.go.jp/committee/summary/0003776/pdf/h25_03_s03_00.pdf (平成28年8月24日現在, なお本URLは変更又は抹消の可能性がある)

Survey of Pesticide Residues in Imported Crops (April 2015—March 2016)**-Fruits-**

Masaki AIZAWA^a, Kenji OTSUKA^a, Sanae TOMIZAWA^a, Tamako MASUBUCHI^a, Yumiko YAMAKI^a, Keiko IWAKOSHI^a,
Yukiko NAKAGAWA^a, Ryoko MASUDA^a, Shota SUTO^a, Yoshie KOKAJI^a, and Tetsuya SHINDO^a

Pesticide residues were investigated in 154 samples from 19 species of imported crops (fruits) that were sold in the Tokyo market during fiscal year 2015. A total of 62 pesticides (insecticides, fungicides, and herbicides) were detected in 16 species (109 samples; 71% detection rate). Twelve organophosphorus insecticides (e.g., chlorpyrifos, malathion), 3 carbamate insecticides (carbaryl, diethofencarb, and methoxyfenozide), 5 organochlorine insecticides and fungicides (e.g., captan, iprodione), 8 pyrethroid insecticides (e.g., bifenthrin, cypermethrin), 9 organonitrogen and other insecticides (e.g., imidacloprid, pyriproxyfen), 24 organonitrogen and other fungicides (e.g., imazalil, thiabendazole), and one organonitrogen herbicide (simazine) were detected. The concentrations of these pesticides ranged between trace amounts (<0.01 ppm) and 3.8 ppm.

The residues of these pesticides in the 154 samples were at levels lower than the uniform limit and the maximum residue limits (MRLs) specified by the Food Sanitation Law of Japan.

Keywords: pesticide residue, imported crop, fruit, insecticide, fungicide, herbicide, maximum residue limit, uniform limit

^a Tokyo Metropolitan Institute of Public Health,
3-24-1, Hyakunin-cho, Shinjuku-ku, Tokyo 169-0073, Japan

