

# レモンに使用される防かび剤イマザリルの 残留濃度と調理過程における消長

久保加織\*・吉田愛\*・谷川典子\*・石川直美\*

アブストラクト邦訳

輸入かんきつ類に防カビ剤として添加されることの多いポストハーベスト農薬であるイマザリルの残留濃度を厚生労働省公定試験法に基づいた方法で分析した。その結果、アメリカ合衆国から輸入されたレモンやオレンジ、グレープフルーツには基準内のイマザリルが含まれており、果汁や内皮からも外皮に比べると濃度は低かったが、イマザリルが含まれていた。イマザリルが添加されていた輸入レモンは、購入後、10℃で4ヶ月保存後も腐敗は認められず、その間、イマザリルの量に変化はなかった。レモン外皮の洗浄で、イマザリル濃度は半分以下にはならなかった。紅茶やハチミツに浸漬すると、イマザリルは短時間で紅茶液あるいはハチミツに溶出し、180℃で10分間焼成したマドレーヌにも約50%のイマザリルが残存した。以上のことから、洗浄や調理を行ってもかなりの量のイマザリルが残存することが明らかになった。

## Residue concentrations of imazalil in lemon and changes in the concentration during cooking

Kaori Mukai KUBO · Ai YOSHIDA · Noriko TANIGAWA · Naomi ISHIKAWA

Abstract

Residue concentrations of imazalil, a post-harvest pesticide often added to imported citrus fruits as a fungicide, were analyzed using a modification of the official test method prescribed by the Ministry of Health, Labour and Welfare. The results showed that lemons, oranges, and grapefruits imported from the United States of America contained levels of imazalil residues that were within standard limits. Juice and inner peel also contained imazalil, albeit at concentrations that were lower than that of the outer peel. Imported lemons to which imazalil had been added did not spoil after 4 months of storage at 10° C after purchase, and there was no change in the amount of imazalil over that time. Washing of the lemon peel did not reduce the imazalil concentration by more than half. When immersed in black tea or honey, the imazalil leached into the black tea solution or honey within a short time. Approximately 50% of the imazalil remained in madeleines baked at 180°C for 10 minutes. The results showed that a considerable amount of imazalil remained, even after washing and cooking.

キーワード：防かび剤 Antifungal agents、イマザリル Imazalil、レモン Lemon、  
残留農薬 Pesticide residue、調理 Cooking

緒言

日本の食料自給率（熱量ベース）は、1970年には73%であったものが徐々に低下し、2003年以降は約40%という低い状況が続いており、国内に供給される食料の半分以上を輸入品に依存している<sup>1)</sup>。日本が輸入する農産物の中でも、日本国内の生産量が少なく輸入量が多いものに、レモン、オレンジ、グレープフルーツなどのか

んきつ類がある。これらの最近の輸入量と主な輸入先を図1および表1に示した<sup>2)</sup>。2000年代前半に比べると、レモン、オレンジ、グレープフルーツともに輸入量は減少傾向にあるが、それでも1年間にそれぞれ5～10万トンが輸入されており、輸入国は南北アメリカやアフリカ、オセアニアが主である。

かんきつ類の輸入においては、移送に長期間を有するため、防かび剤を食品添加物として添

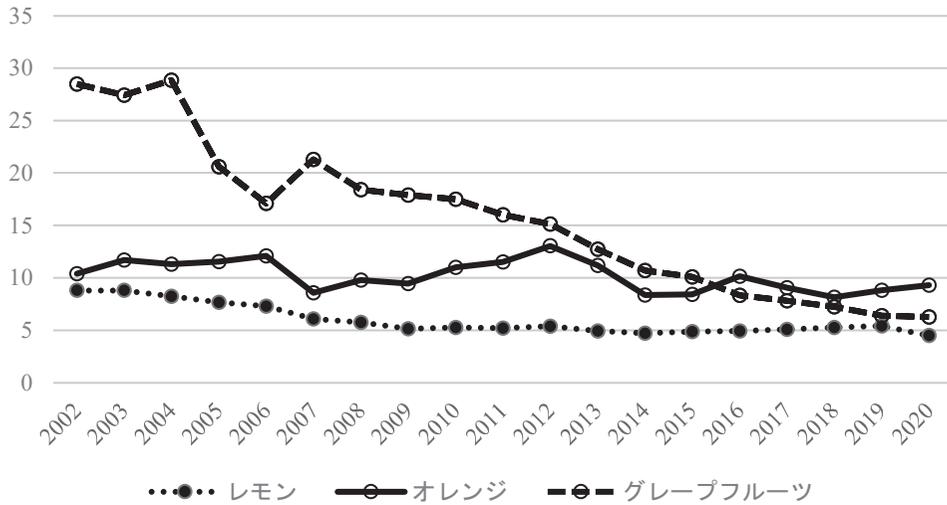


図1 主な柑橘類の輸入量（万トン）

表1 主な柑橘類の主要輸入相手国と輸入量の割合（%）

	2002	2003	2004	2005	2006	2007	2008	2009	2010	2011	2012	2013	2014	2015	2016	2017	2018	2019	2020
<b>レモン</b>																			
アメリカ合衆国	73.7	71.3	69.0	71.0	71.1	61.4	64.0	70.9	69.8	61.9	68.6	70.3	61.8	65.0	61.5	59.3	60.3	57.4	49.6
チリ	17.0	15.9	17.4	17.6	22.5	30.5	30.1	23.7	24.6	32.3	26.6	26.8	33.9	31.9	35.1	35.8	34.4	37.0	41.7
南アフリカ共和国	4.7	9.6	9.4	8.9	4.3	4.4	4.5	2.6	0.8	0.8	0.9	0.5	0.9	0.7	1.1	1.6	1.9	1.9	3.1
オーストラリア	2.6	1.4	0.3	tr	tr	0.5	0.2	0.8	-	-	0.1	0.1	-	tr	-	0.1	0.4	0.2	1.3
ニュージーランド	1.8	1.0	1.0	1.3	1.6	2.2	1.2	1.9	1.5	1.7	1.4	1.1	1.9	1.7	2.0	2.5	2.8	3.1	4.1
メキシコ	-	-	0.2	-	-	0.3	-	0.1	3.3	3.4	2.4	1.3	1.5	0.3	0.3	0.8	tr	tr	0.1
アルゼンチン	-	0.8	2.8	1.1	0.5	0.6	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
その他	0.2	tr	tr	tr	tr	0.1	0.1	tr	0.5	tr	tr	0.2	0.4						
<b>オレンジ</b>																			
アメリカ合衆国	76.6	75.2	75.7	73.3	73.0	54.2	73.1	70.8	68.6	72.5	74.6	67.0	62.2	60.4	63.3	54.8	52.5	57.0	53.3
オーストラリア	8.4	7.9	5.8	7.3	12.8	18.0	13.4	19.4	23.0	20.6	21.2	29.0	31.2	33.2	32.7	40.6	40.7	38.7	45.1
南アフリカ共和国	7.7	11.3	9.1	9.5	6.4	12.0	8.6	7.8	6.5	6.3	3.8	3.7	6.1	5.4	3.5	3.1	4.5	3.9	1.3
チリ	4.8	5.2	9.2	9.9	7.8	4.4	4.8	2.0	1.8	0.4	0.1	tr	tr	-	tr	-	-	-	-
イスラエル	tr	-	-	-	-	9.0	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
その他	2.4	0.3	0.2	tr	tr	2.5	0.1	tr	0.1	0.2	0.3	0.3	0.4	1.0	0.5	1.5	2.3	0.4	0.3
<b>グレープフルーツ</b>																			
アメリカ合衆国	77.1	70.8	70.2	45.3	64.0	65.2	68.5	63.7	71.1	63.8	64.8	56.8	55.2	51.6	52.6	37.3	26.2	27.6	27.4
南アフリカ共和国	18.5	24.0	24.1	47.0	28.4	30.2	27.0	32.3	25.5	33.5	31.8	40.0	43.1	43.3	36.7	49.5	50.1	46.1	42.2
イスラエル	2.6	3.1	2.9	5.1	5.5	2.5	2.0	2.2	2.0	1.8	2.1	2.1	1.4	2.1	4.5	7.5	14.8	16.5	16.2
メキシコ	-	-	-	-	-	-	-	-	-	0.1	-	-	tr	0.7	2.9	4.5	6.9	5.9	10.0
オーストラリア	-	-	-	-	-	-	-	tr	0.1	tr	0.3	-	-	0.1	1.2	1.0	1.3	1.6	2.3
トルコ	-	-	-	-	-	-	-	-	-	0.3	1.1	1.2	0.3	2.2	2.0	0.1	0.4	2.2	1.9
エスワティニ	1.8	1.8	1.9	2.2	1.4	2.0	-	1.8	1.3	0.5	-	-	-	-	0.1	0.1	0.4	0.1	-
ニュージーランド	-	-	-	-	-	-	2.4	-	-	-	-	-	-	-	tr	tr	-	-	-
その他	tr	0.3	0.9	0.4	0.8	tr	0.1	tr											

tr: 0.05%未満 - : なし

加することが認められている。表2に現在、国内で食品添加物としての使用が認められている防かび剤とその使用基準をまとめた<sup>3)</sup>。これらの物質はいずれもポストハーベスト農薬として用いられることもある長期間にわたり農産物に残留して防かび効果を発揮する物質であり、その毒性が危惧されている。

日本では、ポストハーベスト農薬は認められていないが、食品添加物の防かび剤として、1971年にジフェニル、1977年にオルトフェニルフェノール (OPP) およびオルトフェニルフェノールナトリウム (OPP-Na)、1978年にチアベンダゾール (TBZ)、1992年にイマザリルが認められた。背景には、耐性菌の出現による少量で効果の大きい防かび剤が必要になったことに合わせ、国際的に使用が認められているものであるから日本でも認可すべきだという輸出国側による強い要望があったと言われている。その後、すでに認められている防かび剤での防除が困難な種類のかびや耐性菌への対応の必要性もあり、すでに農薬として登録されていた薬剤の食品添加物としての使用を許可するようになり、具体的には2011年にフルジオキシニル、2013年にアゾキシストロビンおよびピリメタニル、

2018年にプロピコナゾール、2020年にジフェノコナゾールがそれぞれ認められている<sup>4)</sup>。食品添加物の安全性評価は、国際的には国連の食糧農業機関 (FAO) と世界保健機関 (WHO) が設けたFAO/WHO 合同食品添加物専門家会議 (JECFA) が行っており、日本では食品安全委員会が食品健康影響評価など安全性評価を行う。これらの評価をもとに、厚生労働省において薬事・食品衛生審議会食品衛生分科会で食品添加物の使用に関わる審議が行われている。防かび剤においては、添加が認められる食品が限定されたうえで、その使用量あるいは残存量が規定されている。

防かび剤の残留量あるいは使用料は、食品全体の量として規定されている。かんきつ類の場合、我々が食するのは果肉や果汁の部分であることが多い。これまでに、かんきつ類に残存するイマザリル、OPP、TBZ量の報告はあるが<sup>5-7)</sup>、果皮と果肉に分けて分析した結果は多くはなく<sup>8-10)</sup>、加工品の分析もわずかである<sup>11,12)</sup>。そこで本研究では、かんきつ類に使用されるイマザリルについて、外皮、内皮、果汁での残留実態と長期保存や洗浄、調理による消長を明らかにすることを目的として分析を行った。

表2 国内で食品添加物としての使用が認められている防かび剤とその使用基準

添加物名	添加が認められている食品等	最大限度	
アゾキシストロビン	かんきつ類 (みかんを除く)	最大残存量	0.010g/kg
	じゃがいも		0.007g/kg
イマザリル	かんきつ類 (みかんを除く)	最大残存量	0.0050g/kg
	バナナ		0.0020g/kg
オルトフェニルフェノール オルトフェニルフェノールナトリウム	かんきつ類	最大残存量**	0.010g/kg
ジフェニル*	グレープフルーツ、レモン、オレンジ類	残存量	0.070g/kg未満
ジフェノコナゾール	ばれいしょ	使用料	0.004g/kg
チアベンダゾール	かんきつ類		0.010g/kg
	バナナ	最大残存量	0.0030g/kg
	バナナの果肉		0.0004g/kg
ピリメタニル	あんず、おうとう、かんきつ類 (みかんを除く)、すもも、もも	使用料	0.010g/kg
	西洋なし、マルメロ、りんご		0.014g/kg
フルジオキシニル	キウイ、パイナップル (冠芽を除く)		0.020g/kg
	かんきつ類 (みかんを除く)		0.010g/kg
	ばれいしょ		0.0060g/kg
	アボガド (種子を除く)、あんず (種子を除く)	使用料	0.0050g/kg
	おうとう (種子を除く)、ざくろ、すもも (種子を除く)		
西洋なし、ネクタリン (種子を除く)、パパイヤ、びわ マルメロ、マンゴー (種子を除く)、もも (種子を除く)、りんご			
プロピコナゾール	かんきつ類 (みかんを除く)		0.008g/kg
	あんず (種子を除く)、ネクタリン (種子を除く)	使用料	0.004g/kg
	もも (種子を除く)、おうとう (果梗及び種子を除く)		
	すもも (種子を除く)		0.0006g/kg

\*貯蔵又は運搬の用に供する容器の中に入れる紙片に浸潤させて使用する場合以外に使用してはならない

\*\*オルトフェニルフェノールとしての量

## 実験方法

### 1. 試料

試料として、イマザリルなど防かび剤を収穫後に使用していないと考えられる国産（熊本県産あるいは愛媛県産）のレモンと、防かび剤の使用表示のあったアメリカ合衆国産（以下、米国産とする）のレモン、オレンジ、グレープフルーツを2005年から2009年にかけて大津市内あるいは京都市内の小売店から購入して用いた。果実の外皮は表面から2mmの部分とし、外皮を除いた後に搾った汁を果汁とし、汁を絞った残渣を内皮とした。調理用材料は大津市内の小売店で購入して用いた。標品として、イマザリル (Dr. Ehrenstorfer GmbH) およびジフェニル (東京化成工業) をそれぞれ購入して用いた。

### 2. 試料の洗浄方法

前川ら<sup>13)</sup>と宇野ら<sup>14)</sup>の方法を参考にして、米国産レモンを8分割して外皮を一剥きにし、洗浄用試料とした。洗浄を行わない対角線上の2枚を除き、6枚の試料を以下の①から⑥の6種類の 방법으로洗浄した後、細かく刻み、イマザリルを抽出して分析を行った。①水洗浄：蒸留水中50ml中で試料を1分間、ナイロンたわしでこすり、その後流水で30秒間洗浄した。②ゆでこぼし：100℃に沸騰させた蒸留水50mlに試料を30秒間浸漬した。③洗剤洗浄：0.15%家庭用高級アルコール系洗剤溶液50ml中で試料を1分間、ナイロンたわしでこすり、その後流水で30秒間洗浄した。④重曹水洗浄：5%重曹溶液50ml中で試料を1分間、ナイロンたわしでこすり、その後流水で30秒間洗浄した。⑤酢酸水洗浄：5%酢酸溶液50ml中で試料を1分間、ナイロンたわしでこすり、その後流水で30秒間洗浄した。⑥エタノール洗浄：50mlエタノール中で試料を1分間、ナイロンたわしでこすり、その後流水で30秒間洗浄した。

### 3. 調理方法

#### (1) レモンティー

100℃に熱した蒸留水300ml中に紅茶葉(キャプテンクック社)5gを加え、室温で3分間放置した後、ろ過して紅茶溶液を調製した。調製した紅茶溶液50mlに厚さ3mmに輪切りにした米国産レモン10gを加え、一定時間放置した後

にレモンを取り除いた溶液を試料として分析した。

#### (2) レモンのハチミツ漬け

米国産レモン150gを厚さ3mmの輪切りにし、プラスチック容器に敷き詰め、ハチミツ(アカシアハチミツ、キャプテンクック社)200mlを加えてレモンを浸し、密閉後、4℃の恒温室内で1晩放置した。

#### (3) マドレーヌ

米国産レモンの外皮をすりおろした後、残りのレモンから果汁を搾り、マドレーヌの材料とした。マドレーヌの調製方法は、以下のとおりとした。すなわち、全卵150gを40℃～50℃の湯せんをしながらよく泡立て、ふるった上白糖(三井製糖)150gを2回に分けて加えてよく混ぜ、すりおろしレモン外皮2gとレモン果汁20ml、ふるった薄力粉(日清フーズ)150gを加えて混ぜ合わせた。さらに溶かした食塩不使用バター(雪印メグミルク)150gを加え、中敷ペーパーを敷いたマドレーヌケースに流し入れ、180℃で10分間焼成した。

### 4. イマザリルの抽出と定量

厚生労働省監修食品衛生指針に基づき、イマザリルの抽出と定量を行った<sup>15,16)</sup>。すなわち、試料を秤量して遠沈管にはかりとり、5M水酸化ナトリウム溶液2ml、無水硫酸ナトリウム10gおよび酢酸エチル25mlを加え、3分間ホモジナイズした後、3000rpmで3分間遠心分離した後、上澄み液を分液漏斗に分取した。残留物に酢酸エチル25mlを加え、同様の操作を2回繰り返し、分液漏斗に集めた全上澄み液に、5%炭酸ナトリウム溶液50ml、蒸留水50mlを加えながら順次5分間振り混ぜ、洗浄・静置した後、水層を捨て、酢酸エチル層に0.0025M硫酸溶液40mlを加え、5分間振り混ぜ、静置後、水層を別の分液漏斗に分取し、同様の操作を2回繰り返した。この全水層に5M水酸化ナトリウム溶液5mlを加えた後、酢酸エチル25mlを加え5分間振り混ぜ、静置した後、酢酸エチル層を分取した。この操作をさらに2回繰り返した。こうして得た全酢酸エチル層をナスフラスコに移し、使用した分液漏斗を10mlの酢酸エチルでさらに洗浄してナスフラスコに集め、無水硫酸ナトリウム10gで脱水後、ロータリーエバポレーターを用いて

減圧乾固し、残留物にメタノール・蒸留水混合液 (75:25) を加えて溶解し、試料液とした。試料液はフィルター (0.22  $\mu$ m, MILLIPORE) でろ過後、高速液体クロマトグラフィー (HPLC) で分析した。

HPLC 分析には島津 LC-10AD を用い、カラムには COSMOSIL 5C18MS (4.6mm  $\times$  250mm, ナカライテスク) を用いた。アセトニトリルと 0.01M リン酸一カリウム混合液 (7:3) を移動相として、流速は 0.5ml/min. とした。検出は、島津 SPD-10AD を用いて 230nm の吸収により行った。データ処理は、クロマトパック (島津 CR-8A) により行った。

イマザリルの定量のための内部標準物質には、ジフェニルを選択した。なお、試料分析にあたっては、ジフェニルが含まれていないことを HPLC により分析して確認したうえで行った。イマザリルの検出限界は 0.07ppm であり、回収率は 95% であった。

## 結果および考察

### 1. イマザリルの残留実態

果実を購入後ただちに外皮、内皮、果汁に分け、イマザリル量を測定した。米国産レモンでの測定値を表 3 に示した。なお、本研究において試料とした全ての米国産レモン (全果) に含まれていたイマザリル濃度の平均は、4.07ppm (標準偏差 1.07) であった。表には示していないが、国産レモンからは全果からも、各部位からもイマザリルは検出されなかった。また、米国産オレンジとグレープフルーツからは、それぞれ、全果中に 1.17ppm、0.48ppm、外皮に 4.26ppm、1.39ppm、内皮に 0.52ppm、0.37ppm、果汁に 0.82ppm、0.25ppm のイマザリルが検出された。このように、米国産のレモン、オレン

ジ、グレープフルーツのいずれにおいても、外皮の含有濃度が最も高かった。永山らは、かんきつ類外皮からは平均 3.45ppm のイマザリルが検出されるのに対し、果肉からは平均 0.21ppm しか検出されなかったことは、イマザリルなどの防かび剤が脂溶性でそのほとんどが外皮の油分に留まるためと報告している<sup>9)</sup>。今回の結果は、果皮では永山らの報告とほぼ同じであったが、果汁には果肉で報告されているより高い濃度のイマザリルが検出された。イマザリルは比較的水溶解度が高く、塩基性物質であるため、油脂だけでなく酸性溶液にも溶ける性質を持っている<sup>17)</sup> ことが影響し、酸性の強い果汁に移行しやすい可能性があるとして示唆される。

米国産レモンを購入後ただちに 1 つずつプラスチックケースに並べて密閉し、10°C に設定した恒温室の中で一定期間保存し、外皮、内皮、果汁におけるイマザリルの残存量を測定した。4 か月間保存した時のイマザリル量を表 3 に示した。全果、部位ごとに保存前後でイマザリル量に有意な差は認められなかった。また、外観から、4 か月保存後の果実にカビの繁殖は認められなかった。津村らは、6 ヶ月以上貯蔵してもイマザリル含量は安定であり、半減期は 182 日以上と報告している<sup>12)</sup>。イマザリルは、購入後 4 か月間は 10°C では変化せずほぼ全て残存し、その効果が失われなかった。なお、国産レモンを同様に 10°C で保存したところ、保存 30 日後にカビの繁殖が認められた。

### 2. 洗浄によるイマザリルの除去

米国産レモンの外皮を様々な方法により洗浄し、イマザリルの残存率を測定した結果を表 4 に示した。水洗浄での洗浄効果が最も高く、次いでエタノール洗浄、湯でこぼしであった。酢酸水や重曹水の効果は認められなかった。ナイロンタワシなどを用いて 1 分間水中でこすり 30

表 3 米国産レモンに含まれるイマザリル量 (ppm)

	全果	外皮	内皮	果汁
購入直後	3.42 $\pm$ 0.40	4.55 $\pm$ 0.60	1.15 $\pm$ 0.04	2.33 $\pm$ 0.11
10°C・4か月保存後	3.20 $\pm$ 0.49	4.60 $\pm$ 0.42	1.18 $\pm$ 0.83	2.28 $\pm$ 0.27

平均値 $\pm$ 標準偏差で示した

購入直後および 10°C・4か月保存後の各部位間に有意差あり ( $p < 0.001$ )

全果、部位ごとに購入直後と 10°C・4か月保存後に有意差なし

表4 米国産レモン外皮洗浄後のイマザリル残存率

	残存率(%)
水洗浄	47.6±4.7 <sup>a</sup>
ゆでこぼし	58.6±4.6 <sup>b</sup>
洗剤洗浄	83.8±2.4 <sup>c</sup>
重曹水洗浄	84.3±4.1 <sup>c</sup>
酢酸水洗浄	70.9±4.5 <sup>d</sup>
エタノール洗浄	57.2±5.2 <sup>ab</sup>

平均値±標準偏差で示した  
異なる文字のついたデータ間に  
有意差あり(p<0.05)

秒間流水で洗浄すれば、洗剤やアルコール等を使用しなくても、外皮に含まれるある程度のイマザリルを除去することができると考えられるが、今回の条件下での除去は最大でも50%程度であった。今後は、洗浄溶液の濃度や洗浄時間を変えて調査を継続する必要があると考えられる。

### 3. イマザリルの調理における消長

#### (1) 紅茶への溶出

米国産レモンの輪切りを紅茶に入れた時のイマザリルの溶出について調べた結果を表5に示した。レモンの輪切りを30秒間紅茶に浸すと0.48ppmのイマザリルが検出され、浸漬時間が長くなるにつれ、その濃度は増加した。前川らは、OPPとTBZの紅茶への溶出について検討している<sup>13)</sup>が、今回の結果は、TBZの結果に近く、イマザリルもTBZ同様、紅茶に溶出しやす

いと考えられる。なお、紅茶のpHは4.8であったのが、レモンを加えることで徐々に低下し、30秒後に3.4、1分後には3.3となった。イマザリルは酸性水に易溶という性質を持つ<sup>17)</sup>ことが紅茶液中への移行を促進したと考えられる。

#### (2) レモンのハチミツ漬けにおけるイマザリルの移行

レモンのハチミツ漬けの結果を表6に示した。レモンを浸漬する前のハチミツからはイマザリルが検出されなかったが、ハチミツ漬けにしたレモン、ハチミツの両方からイマザリルが検出され、はちみつ漬けレモンよりハチミツのイマザリル含量が高かった。ハチミツのpHは4.0であったが、レモンを漬けることで2.9に低下しており、紅茶の場合と同様に、ハチミツのpHが下がったことにより、レモンからイマザリルの溶出が進んだと考えられる。

#### (3) マドレーヌへの移行

マドレーヌの結果を表7に示した。原料レモンに含まれていた約50%のイマザリルがマドレーヌに移行した。津村らは、マーマレード調理においてイマザリル濃度は42%に減少し、特に砂糖を加えた後の煮熟での減少率が大きかったと報告している<sup>12)</sup>。今回のマドレーヌの調理は、マーマレードの調理に比べて熱を加える時間が短いこと、砂糖の量が少ないことなどが違いとしてあげられる。津村らのように調理の過程ごとに分析をしていないため、どこに減少の要因があるのかを特定することはできていない

表5 米国産レモンに含まれるイマザリルの紅茶への溶出

	レモン	紅茶	
		浸漬30秒後	浸漬1分後
イマザリル濃度(ppm)	4.98±0.31 <sup>a</sup>	0.48±0.10 <sup>b</sup>	0.80±0.25 <sup>b</sup>
移行率(%)		47.1±0.5	74.3±2.1

平均値±標準偏差で示した  
異なる文字のついたデータ間に有意差あり(p<0.01)

表6 米国産レモンはちみつ漬け中のイマザリル量

	レモン	はちみつ漬け	
		レモン	はちみつ
イマザリル濃度(ppm)	3.46±0.03 <sup>a</sup>	1.30±0.09 <sup>b</sup>	2.06±0.37 <sup>c</sup>

平均値±標準偏差で示した  
異なる文字のついたデータ間に有意差あり(p<0.05)

表7 米国産レモンに含まれるイマザリルのマドレーヌへの移行

	レモン(生)		マドレーヌ
	外皮	果汁	
イマザリル濃度(ppm)	10.52±0.19 <sup>a</sup>	0.05±0.01 <sup>b</sup>	0.02±0.00 <sup>c</sup>
移行率(%)	-	-	51.0±5.2

平均値±標準偏差で示した

異なる文字のついたデータ間に有意差あり(p<0.01)

ため、今後は調理過程ごとでの分析をしていくことや、様々な料理における消長を研究していくべきだと考える。

永山らは、輸入果実加工品中の残留農薬について調査し、イマザリルはマーマレードから0.02ppmから0.15ppmの範囲で、濃縮レモンジュースから0.07ppmおよび0.11ppm検出されたと報告している<sup>11)</sup>。イマザリルは、かんきつ類の場合、液体にして浸漬して添加する<sup>18)</sup>が、かんきつ類が酸性であるため、外皮から果実内部へと徐々に移行すると考えられる。実際、本研究でも外皮より濃度は低かったが、果汁や内皮にイマザリルが含まれることを確認した。さらに、イマザリルはマドレーヌの調理中には分解される可能性が示唆されたが、10℃での保存中や常温下での洗浄、調理ではほとんど分解されることがないこと、酸性下におかれた場合、溶出が進むことも明らかになった。イマザリルには毒性が認められており、1日当たりの許容摂取量(ADI)は0.025mg/kg/dayである。厚生労働省が実施しているマーケットバスケット方式による年齢層別食品添加物の一日摂取量の調査では、防かび剤の推定一日摂取量は低く、最も高かったイマザリルで一日摂取許容量の0.0005%であった<sup>19)</sup>。イマザリルを始めとした防かび剤の残留による健康被害はほぼないと考えられるが、薬剤耐性菌の出現などもあって防かび剤として許可される物質の種類は最近増加しており、防かび剤の複数使用も増えている。適切に防かび剤を使用して安全にかんきつ類を食生活に取り入れることは当然のことであるが、本研究の結果を海外に依存する日本人の食生活について考える契機にすることも必要ではないかと考える。

## 要約

防かび剤であるイマザリルが添加されているかんきつ類において、イマザリル量を定量したところ、イマザリル濃度は外皮で高く、果汁や内皮にも外皮に比べると濃度は低かったが一定量含まれていることが明らかになった。イマザリルが添加されているレモンは、購入後、10℃で4ヶ月保存後も腐敗は見られず、イマザリル量の変化も認められなかった。レモン外皮を様々な方法で洗浄してもその濃度は半分程度以下にはならなかった。さらに、紅茶やハチミツへの浸漬で、イマザリルは短時間で紅茶液あるいはハチミツに溶出することが明らかになった。マドレーヌのように180℃で10分間焼成してもイマザリルはかなりの量が残存することが明らかになった。

## 参考文献

- 1) 農林水産省：日本の食料自給率、[https://www.maff.go.jp/j/zyukyu/zikyu\\_ritu/012.html](https://www.maff.go.jp/j/zyukyu/zikyu_ritu/012.html) (2021年9月25日閲覧)
- 2) 財務省：財務省貿易統計、<https://www.customs.go.jp/toukei/info/index.htm> (2021年9月25日閲覧)
- 3) 公益財団法人日本食品化学研究振興財団：各添加物の使用基準及び保存基準(令和3年2月3日改正まで記載)、644edf135bc474145dd27e05ec28bb28ef3351ec.pdf (2021年9月25日閲覧)
- 4) 厚生労働省：食品衛生法施行規則の一部を改正する省令及び食品、添加物等の規格基準の一部を改正する件について、<https://www.mhlw.go.jp/content/000641102.pdf> (2021年9月25日閲覧)
- 5) H. Ishiwata, M. Nishijima, Y. Fukasawa, Y. Ito, T. Yamada: Evaluation of the contents of antifungal

- agents allowed as food additives in foods and the daily intake deduced from the results of the official inspection in Japan in fiscal year 1994., *J. Food Hyg. Soc. Japan*, 38, 296-306, 1997
- 6) H. Ishiwata, T. Sugita, Y. Kawasaki, Y. Takeda, T. Yamada, M. Nishijima, Y. Fukasawa : Estimation of antifungal agent concentrations allowed as food additives in food and their daily intake based on official inspection results in Japan in fiscal year 1996., *J. Food Hyg. Soc. Japan*, 40, 407-416, 1999
  - 7) H. Ishiwata, Y. Abe, H. Kubota, Y. Kawasaki, Y. Takeda, T. Maitani, M. Nishijima, Y. Fukasawa : Estimation of concentrations of antifungal agents allowed as food additives in foods and their daily intake based on official inspection results in Japan in fiscal year 1998., *J. Food Hyg. Soc. Japan*, 43, 49-56, 2002
  - 8) 永山敏廣、小林麻紀、塩田寛子、伊藤正子、田村行弘：果実類に使用された農薬の果皮及び果肉中の濃度、食品衛生学雑誌、36、383-392、1995
  - 9) 永山敏廣、小林麻紀、塩田寛子、田村行弘：輸入農作物中の農薬残留実態、食品衛生学雑誌、36、643-655、1995
  - 10) 外海泰秀、津村ゆかり、中村優美子、伊藤誉志男：かんきつ果実中の収穫後使用される農薬の分析、食品衛生学雑誌、33、23-30、1992
  - 11) 永山敏廣、小林麻紀、伊藤正子、塩田寛子、友松俊夫：輸入果実加工品中の残留農薬、食品衛生学雑誌、37、127-134、1996
  - 12) 津村ゆかり、外海泰秀、中村優美子、伊藤誉志男：かんきつ類の貯蔵及びマーマレード加工過程における収穫後使用される農薬の消長、食品衛生学雑誌、33、258-266、1992
  - 13) 前川吉明、山田研一、久保田富貴子、森田公平：かんきつ類中の OPP および TBZ の除去について、食品衛生研究、31、483-489、1990
  - 14) 宇野正清、陰地義樹、谷川薫：ピレスロイド系殺虫剤の洗浄による除去と煮沸処理による減少、食品衛生学雑誌、25、261-263、1984
  - 15) 厚生労働省（監修）：食品衛生指針 食品添加物編、2003
  - 16) 厚生労働省（監修）：食品衛生指針 残留農薬編、2003
  - 17) 上路雅子、永山敏広、細貝祐太郎・松本昌雄（監修）：残留農薬（食品安全セミナー 3）、中央法規出版、2002、pp134-142
  - 18) 東京都福祉保健局：食品衛生の窓 用途別主な食品添加物 防かび剤または防ばい剤、<https://www.fukushihoken.metro.tokyo.lg.jp/shokuhin/shokuten/bokabizai.html> (2021年9月25日閲覧)
  - 19) 厚生労働省：平成29年度マーケットバスケット方式による酸化防止剤、防かび剤等の摂取量調査の結果について、<https://www.mhlw.go.jp/content/000377423.pdf> (2021年9月25日閲覧)