

## 科学研究費助成事業（科学研究費補助金）研究成果報告書

平成 24 年 4 月 25 日現在

機関番号：84407

研究種目：若手研究（B）

研究期間：2010～2011

課題番号：22790586

研究課題名（和文）市場に流通する全ての漢方薬を対象とする残留農薬の分析

研究課題名（英文）Survey of pesticide residues in all of the kampo products distributed in the market of Japan.

研究代表者

田上 貴臣（TAGAMI TAKAOMI）

大阪府立公衆衛生研究所・衛生化学部・研究員

研究者番号：00321943

研究成果の概要（和文）：

漢方薬は、生薬を原料として製造される。生薬からは農薬が検出された事例があり、漢方薬に移行することが懸念されている。一方、生薬の水抽出液から製造される漢方薬には、脂溶性の農薬は移行しにくいことが報告されている。

今回、196製品の漢方薬について有機塩素系農薬8種類、ピレスロイド系農薬2種類を対象として実態調査を行ったところ、その残留量は定量限界以下であった。このことから、近年、わが国で流通している漢方薬は高濃度の農薬に汚染されていないことが示唆された。

研究成果の概要（英文）：

Crude drugs are ingredients of kampo products. Pesticide residues have been detected in crude drugs. There is concern that pesticide residue will move from crude drugs to kampo products. It was reported that the lipophilic pesticide residues do not move readily to kampo products which were prepared from water extract of crude drugs. In this study, 8 kind of organochlorine pesticide and 2 kinds of pyrethroid pesticide in 196 kampo products were analyzed and no samples were contaminated over the quantification limit. This result suggested that kmapo products distributed in Japan were not contaminated high levels of pesticide residues.

交付決定額

（金額単位：円）

	直接経費	間接経費	合計
2010年度	1,600,000	480,000	2,080,000
2011年度	1,400,000	420,000	1,820,000
総計	3,000,000	900,000	3,900,000

研究分野：生薬学

科研費の分科・細目：社会医学・公衆衛生学・健康科学

キーワード：薬学、分析化学

### 1. 研究開始当初の背景

漢方薬は、生薬を原料として製造される。生薬からは農薬が検出された事例があり、漢方薬に移行することが懸念されている。一方で、生薬の水抽出液から製造される漢方薬には脂溶性の農薬は移行しにくいことが報告されている。漢方薬に残留する農薬の分析結果がほとんど報告されていないことから、漢方薬の利用については不安の声があり、残留実態の解明が求められていた。そこで、これまでの生薬・漢方薬中の残留農薬の分析に関する検討を生かし、わが国で流通する漢方薬中の残留農薬を対象とした実態調査を行った。

### 2. 研究の目的

漢方薬に残留する農薬の分析結果がほとんど報告されていない状態の中、漢方薬に残留する農薬の実態を解明することにより、現在明らかとなっていない「漢方薬中の残留農薬の実態」を解明し、漢方薬の安全性を確認する。

### 3. 研究の方法

市場に流通する漢方薬を対象として、有機塩素系、ピレスロイド系農薬についての実態調査を行った。また、測定対象農薬は、日本漢方生薬製剤協会が一部の漢方薬を対象として、自主基準としての残留基準を定めている有機塩素系農薬 8 種類  $\alpha$ -benzenehexachloride (BHC)、 $\beta$ -BHC、 $\gamma$ -BHC、 $\delta$ -BHC、*p,p'*-dichlorodiphenyl

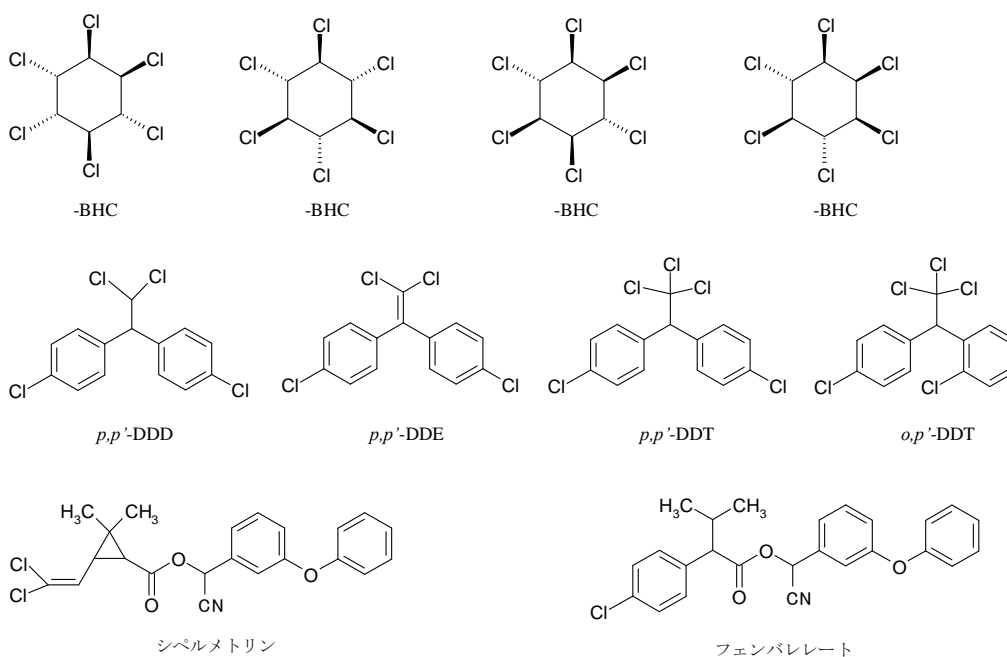


図1 測定対象農薬の構造

dichloroethylene (DDE), *o*, *p*'-dichlorodiphenyltrichloroethane (DDT), *p*, *p*'-dichlorodiphenyldichloroethane (DDD), *p*, *p*'-DDT およびピレスロイド系農薬 2 種類 (シペルメトリンおよびフェンバレレート) とした (図 1)。

漢方薬は、一般的に乾燥品であり、単位重量あたりの妨害物質の量が多い。このことから、選択的な分析を行うために、ガスクロマトグラフ/質量分析計を用いて分析を行った。また、今回測定対象とした農薬について、ガスクロマトグラフ/質量分析計の電子イオン化法および負化学イオン化法を用いて測定を行い、その有用性について比較した。ガスクロマトグラフ/質量分析計の負化学イオン化法は、複数のハロゲンやニトロ基で置換された芳香族化合物などの電子親和性の高い化合物を選択的にイオン化するため、ハロゲンを有する有機塩素系農薬やピレスロイド系農薬の分析において高い選択性が得られることを期待した。

#### 4. 研究成果

既に確立しているガスクロマトグラフ/質量分析計の負化学イオン化法を用いた一部の漢方薬を対象とする残留農薬の簡便・迅速分析法における試料溶液調製方法を用い、今回測定対象とした農薬について、ガスクロマトグラフ/質量分析計の電子イオン化法と負化学イオン化法による分析法を比較したところ、今回対象とした農薬を分析する場合には、負化学イオン化法がより高い選択性を示した。このことから、ガスクロマトグラフ/質量分析計の負化学イオン化法を用いて実態調査を行うこととした。

また、定量イオンについても検討を行い、

有機塩素系農薬については、 $m/z$  の小さな 35 および 71 を定量イオンとして選択した。ガスクロマトグラフ/質量分析計における分析においては、 $m/z$  の大きなイオンを定量イオンとして選択することが一般的である。それは、 $m/z$  の大きなイオンは、測定対象物質の構造情報を反映していることや  $m/z$  の大きなイオンを選択した場合には、選択性の高い分析が可能となることが理由である。

しかし、ガスクロマトグラフ/質量分析計の負化学イオン化法による分析においては、フラグメンテーションを起こしやすい有機塩素系農薬については、特徴的に Cl によるイオンが最大強度となり、高感度な分析が可能であることが報告されている。また、ガスクロマトグラフ/質量分析計の負化学イオン化法による食品分析では、妨害ピークは低質量領域において少ないことも報告されていることから、GC/MS の負化学イオン化法においては、定量イオンとして Cl を含む  $m/z$  の小さなイオンを選択することは問題はないものと考えられる。加えて、予備検討においては、実際に  $m/z$  の小さなイオンを選定することにより、高感度かつ選択的な分析が可能であったことから、有機塩素系農薬については、35 および 71 を定量イオンとして選定した。

ガスクロマトグラフ/質量分析計の負化学イオン化法を用いて 196 製品の漢方薬について有機塩素系農薬 8 種類、ピレスロイド系農薬 2 種類を対象として実態調査を行ったところ、その残留量は定量限界値以下であった。このことから、近年、わが国で流通している漢方薬は高濃度の農薬に汚染されていないことが示唆された。

#### 5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[学会発表] (計 2 件)

- 1) 田上貴臣、土井崇広、浅田安紀子、武田章弘、梶村計志、 沢辺善之：漢方製剤を対象とした残留農薬の簡便・迅速分析第 40 回生薬分析シンポジウム 2011 年 12 月 1 日, 大阪
  
- 2) 田上貴臣、梶村計志、山崎勝弘、沢辺善之、田口修三：漢方製剤を対象とした有機塩素系農薬およびピレスロイド系農薬の簡便な分析法の開発 第 47 回全国衛生化学技術協議会年会 2010 年 11 月 12 日、兵庫

## 6. 研究組織

### (1) 研究代表者

田上 貴臣 (TAGAMI TAKAOMI)

大阪府立公衆衛生研究所・衛生化学部・研究員

研究者番号：00321943