

## 2 種薬剤の茶葉における残留および鶏卵への移行

池田 悠里・橋本 良子

キーワード: 茶, 鶏卵, 農薬残留, アセタミプリド, テブフェノジド

### 緒 言

東京都の多摩地域で生産される「東京狭山茶」は、近年、二番茶の製茶量が減少傾向にあり、二番茶不摘採茶園が増加している。また、年数回の整枝作業により、大量の未利用茶葉が生じている。資源のリサイクルおよび茶葉の持つ機能性成分の活用の観点から、二番茶および整枝葉の用途拡大のひとつとして、家畜飼料および飼養資材として活用することが検討されている。しかし、家畜に対して使用するための茶葉に対する農薬の使用基準がないため、茶葉の農薬の残留が問題となる可能性がある。一方、畜産分野では、茶葉を採卵鶏に与えることによる卵への付加価値の付与が検討されている。そこで、本研究では、東京都において使用頻度が高い2薬剤、すなわち浸透移行性があるアセタミプリドおよび耐雨性を持つテブフェノジドを用い、茶葉における薬剤散布時から摘採・製茶過程までの農薬の残留を解明することならびに農薬が残留した茶葉をニワトリに給与し、農薬成分の鶏卵に対する残留の有無を明らかにすることを目的とした。

### 材料および方法

#### 1. 茶葉試料の調製

##### (1) 供試薬剤

供試薬剤は、モスピラン水溶剤（アセタミプリド 20.0%）およびロムダンフロアブル（テブフェノジド 20.0%）を用い、それぞれ2000倍、1000倍の倍率に混合希釈し、400ℓ/10aの薬液を下記の各試験区に散布した。

##### (2) 試験区の設定

試験区は、14日前散布区（6.6㎡）、7日前散布区（6.6㎡）、1日前散布区（13.2㎡）および対照として無散布区（13.2㎡）を設定した。

##### (3) 薬剤散布および試料採取

薬剤の散布は、1回の摘採で散布1, 7, 14日後の試料を得られるように、摘採予定日の14日前（2001年5月2日）、7日前（5月9日）、1日前（5月15日）にそれぞれの区に各1回薬剤散布を行い、無散布区を含めたすべての試験区の茶葉を5月16日に可搬型摘採機で摘採した。

##### (4) 分析試料の調整

摘採後の茶葉は、試験区ごとに製茶し、荒茶試料とした。無散布区および1日前散布区の茶葉は、2kgを取り分け、洗浄後に製茶して荒茶試料とした。洗浄は、茶葉を洗濯ネットに入れ、全自動洗濯機で茶葉1kgに対し10ℓの水で洗浄（洗い5分－水抜き2分－脱水6分）した。各区とも製茶前の生葉を100g取り分け、生葉試料とした。また、茶葉洗浄時の洗浄水および製茶時の蒸熱蒸気を捕集したのもも試料とした。

### 2. 鶏卵試料の調整

#### (1) 供試したニワトリ

ニワトリは、‘ロードアイランドレッド’を用い、下記の各試験区に10羽ずつ供試した。

#### (2) 試験区の設定および試料調整

試験は、農薬が残留した茶葉を添加した飼料をニワトリに給与し、鶏卵を採取して農薬成分の移行確認を行った。試験区は下記の3区を設定し、それぞれ試料調整を行った。

##### 1) アセタミプリド区

ニワトリ飼料に添加した茶葉は、前項で調査した茶葉を用いた。飼料に対して1日前散布区の茶葉を1.1%の割合で添加した。添加した分量は、24μg/羽/日とした。

##### 2) テブフェノジド区

アセタミプリド区と同様の茶葉を用いて試験を行った。テブフェノジドは、1日前散布区の茶葉において、

アセタミプリドより残留値が高かったため、アセタミプリド区と成分添加量をそろえ、テブフェノジドの成分量が $24\mu\text{g}/\text{羽}/\text{日}$ となるように飼料の調整を行った。飼料に対して1日前散布区の茶葉を0.25%添加し、無散布区の茶葉を加えて茶葉添加割合を合計で1.1%とした。

### 3) 対照区

対照区は、無散布区の茶葉を飼料に1.1%添加し、ニワトリに給与した。

### 4) 試料採取

茶葉添加飼料は、ニワトリに2週間連続して与え、その後1週間は慣行飼料に切り換えた。茶葉添加飼料給与開始日から1, 7, 14, 21日後に産卵した鶏卵を分析試料とした。

## 3. 分析

### (1) 添加回収試験

添加回収試験は、無散布区の荒茶1gに蒸留水20mlを加え、アセタミプリド $15\mu\text{g}$  (試料中濃度 $15\text{ppm}$ ) およびテブフェノジド $20\mu\text{g}$  (試料中濃度 $20\text{ppm}$ ) を添加して行った。同じく水試料は、蒸留水200mlにアセタミプリドおよびテブフェノジドをそれぞれ $50\mu\text{g}$  (試料中濃度 $0.25\text{ppm}$ ) 添加して行った。鶏卵飼料は卵白と卵黄に分け、試料20gにアセタミプリドおよびテブフェノジド $5\mu\text{g}$  (試料中濃度 $0.25\text{ppm}$ ) を添加して試験を行った。

上記2種類の農薬添加試料は、それぞれ下記の方法で分析し、分析値から求めた農薬量を添加した農薬量で除して回収率を求めた。

### (2) アセタミプリドの分析

#### 1) 茶葉試料の分析

添加回収試験に用いた茶葉および薬剤散布を行った茶葉試料におけるアセタミプリドの分析は以下の方法によった。茶葉の分析は、公定法(「今月の農業」編集室, 1998)を一部変更して行った。荒茶試料, 生葉試料ともアセトンで抽出, 酢酸エチルに転溶し, フロリジルカラムにより精製後, 高速液体クロマトグラフィーを用いて定量を行った。

#### 2) 水試料の分析

添加回収試験に用いた蒸留水および試験用の水試料は, C18カラム (ACCUBOND ODS 500mg/3ml) により精製後, 高速液体クロマトグラフィーを用いて定

量を行った。

### 3) 鶏卵試料の分析

添加回収試験に用いた鶏卵および試験用の鶏卵試料は, 卵白と卵黄に分け, それぞれアセトニトリルで抽出後,  $2500\text{rpm}$ で5分間遠心分離を行い, 上澄みを分取して濃縮・乾固し, 蒸留水を $15\text{ml}$ 加えてケイソウ土カラム (エキストレルートNT20) により精製後, 高速液体クロマトグラフィーを用いて定量を行った。

### 4) 分析機器および分析条件

分析機器は, 送液ユニットLC-6A, 紫外-可視分光光度計検出器SPD-6AV, カラムオープンCTO-6A, クロマトパックC-R3A (以上, 島津製作所製) を使用した。カラムはSUPERIOREX ODS (直径 $4.6\text{mm}\times 25\text{cm}$ , 資生堂製) を用い, アセトニトリル/D.W. (1/3, v/v) の溶離液を流速 $0.8\text{ml}/\text{min}$ で送液し, UV246nmによって検出した。分析は, 水試料は無反復, それ以外はすべて2反復で行った。

### (3) テブフェノジドの分析

#### 1) 茶葉試料の分析

添加回収試験に用いた茶葉および薬剤散布を行った茶葉試料におけるテブフェノジドの分析は以下の方法によった。茶葉の分析は, 公定法(「今月の農業」編集室, 1998)を一部変更して行った。荒茶試料, 生葉試料ともアセトンで抽出, ヘキサンに転溶し, フロリジルカラムおよびシリカゲルカラムで精製後, 高速液体クロマトグラフィーを用いて定量を行った。

#### 2) 水試料の分析

添加回収試験に用いた蒸留水および試験用の水試料は, アセタミプリド分析と同様の方法で精製し, 高速液体クロマトグラフィーを用いて定量を行った。

### 3) 鶏卵試料の分析

添加回収試験に用いた鶏卵および試験用の鶏卵試料は, 卵白と卵黄に分け, それぞれアセタミプリド分析と同様の方法で抽出・精製し, 高速液体クロマトグラフィーを用いて定量を行った。

### 4) 分析機器および分析条件

分析機器およびカラムは, アセタミプリド分析と同様のものを使用した。アセトニトリル/D.W. (3/2, v/v) の溶離液を流速 $0.8\text{ml}/\text{min}$ で送液し, UV250nmによって検出した。分析は, 水試料は無反復, それ以外はすべて2反復で行った。

## 結果および考察

### 1. 分析の精度

アセタミプリドの検出限界値は、茶葉試料で0.5ppm、水試料で0.02ppm、卵飼料で0.05ppmであった。テブフェノジドの検出限界値は、茶葉試料で0.5ppm、水試

料で0.02ppm、卵飼料で0.05ppmであった。無処理の試料に既知濃度の農薬標準品を添加して得られた回収率は、すべて70%~120%の範囲内であり、本試験で用いた分析方法は両薬剤の分析に適していると判断した(表1)。

表1 回収試験結果

成分名	分析試料	分析試料量 (g)	添加濃度 (ppm)	平均回収率 (%)
アセタミプリド	茶葉	1	15	95
	水	200	0.25	109
	鶏卵	20	0.25	77
テブフェノジド	茶葉	1	20	70
	水	200	0.25	89
	鶏卵	20	0.25	79

### 2. 茶葉における薬剤残留挙動

茶葉(荒茶)におけるアセタミプリドの残留濃度は、荒茶重量あたり、散布1日後に15.9ppmであり、残留

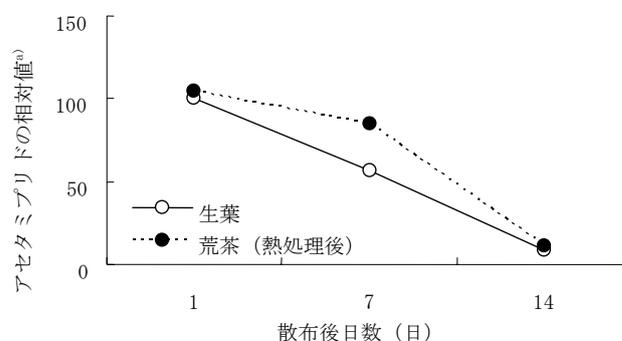
農薬基準値である50ppm以下であった。7日後には13.0ppmとなり、14日後には1.7ppmと著しく減少した(表2)。テブフェノジドの残留濃度は、散布1日後

表2 荒茶におけるアセタミプリドとテブフェノジドの残留濃度 (ppm)

処理薬剤	散布1日後	散布7日後	散布14日後
アセタミプリド	15.9	13.0	1.7
テブフェノジド	74.6	44.1	5.7

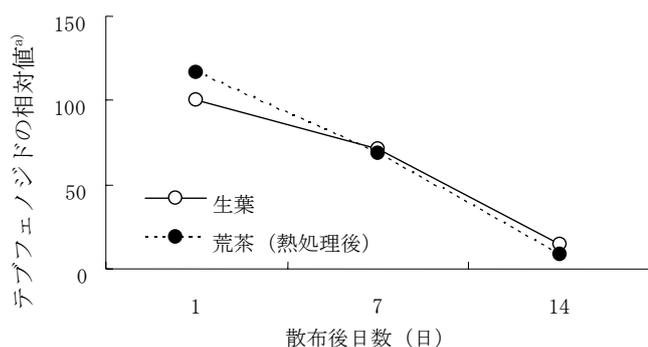
に74.6ppm、7日後に44.1ppmとなり、基準値である25ppmを超えて残留していたが、14日後には5.7ppmと顕著に減少し、基準値以下となった(表2)。両薬剤ともに、安全使用基準では摘採14日前まで散布可能であり(全農肥料農薬部, 2004)、使用基準に従って両剤を使用した場合の、飲用としての茶葉の安全性が改めて確認されたことになる。

散布1日後の生葉における茶葉乾重量あたりに含まれる両成分量を100としたときの生葉および荒茶の散布後日数ごとの相対値を図1および図2に示した。生葉は、荒茶と同様の残留挙動を示したことより、製茶行程中、茶葉がもっとも加熱される行程である蒸熱処理によって残留は減少しないと考えられる。また、製



a) 散布1日後の生葉の茶葉乾重量あたりに含まれる成分量を100としたときの相対値

図1 茶生葉および荒茶におけるアセタミプリドの残留濃度の推移



a) 散布1日後の生葉の茶葉乾重量あたりに含まれる成分量を100としたときの相対値

図2 茶生葉および荒茶におけるテブフェノジドの残留濃度の推移

茶時の蒸熱蒸気中にも両成分は検出されず、熱処理によって残留は減少しないことを確認した(表4)。

アセタミプリドおよびテブフェノジド散布1日後の茶葉を摘採、洗浄、製茶した荒茶における残留濃度は、アセタミプリドでは16.7ppmであり、洗浄前と同様の残留が認められたが、テブフェノジドでは20.9ppmとなり、洗浄によって72.0%減少した(表3)。また、洗浄水中の両成分の残留濃度は、アセタミプリドは0.06ppmであり、残留はわずかであったが、テブフェノジドは1.61ppm残留していた(表4)。杉林ら(1995)

表3 洗浄による茶葉中の農薬残留軽減効果

処理薬剤	残留濃度 (ppm)		残存率 (%) <sup>a)</sup>
	洗浄前	洗浄後	
アセタミプリド	15.9	16.7	105.0
テブフェノジド	74.6	20.9	28.0

a) 残存率 (%) = (洗浄後濃度 / 洗浄前濃度) × 100

表4 アセタミプリドとテブフェノジドの茶葉から洗浄水および蒸熱蒸気への移行

試料名	処理区	残留濃度 (ppm)	
		アセタミプリド	テブフェノジド
洗浄水	1日前散布	0.06	1.61
	無散布	<0.02	<0.02
蒸熱蒸気	1日前散布	<0.02	<0.02
	無散布	<0.02	<0.02

が、数種農薬について、洗浄による残留濃度の減少を検討した結果、ほとんど減少しない成分から95%以上減少する成分まで様々であることを報告している。本試験の結果から、アセタミプリドは洗浄によって残留濃度を減少させることはできないが、テブフェノジドでは洗浄によって残留を減少させることができることが明らかとなった。本試験で供試した両成分の性質については、アセタミプリドは強い浸透移行性を持つ一方、テブフェノジドは耐雨性を持っている(全農肥料農薬部, 2004)。また、水溶解度はテブフェノジドよりアセタミプリドの方が高いことが明らかとなっており(上路ら, 2001; Budavari et al, 1996)、アセタミプリドの方が洗浄水中に移行しやすいと予測された。し

かし、水溶解度の高いアセタミプリドが洗浄水への移行を認めず、テブフェノジドが移行した結果から、両成分の洗浄効果の差は、水溶解度より浸透移行性の違いによると推定される。

### 3. 鶏卵への薬剤成分の移行

鶏卵への農薬成分の移行は、アセタミプリド移行調査区、テブフェノジド移行調査区および対照区のいずれも全試験期間を通して認められなかった(表5)。農薬のニワトリへの経口投与と鶏卵への移行について、後藤ら(1980)は、フェニトロチオンを10mg/kg/日、7日間連続投与した試験において、投与5日目に卵黄に検出されると報告しているが、本試験では農薬成分

表5 鶏卵分析結果

試験区	分析成分	給与開始後日数 (日)	残留濃度 (ppm)	
			卵黄	卵白
アセタミプリド	アセタミプリド	1	<0.05	<0.05
		7	<0.05	<0.05
		14	<0.05	<0.05
		21	<0.05	<0.05
テブフェノジド	テブフェノジド	1	<0.05	<0.05
		7	<0.05	<0.05
		14	<0.05	<0.05
		21	<0.05	<0.05
対 照	アセタミプリド	1	<0.05	<0.05
		7	<0.05	<0.05
		14	<0.05	<0.05
		21	<0.05	<0.05
	テブフェノジド	1	<0.05	<0.05
		7	<0.05	<0.05
		14	<0.05	<0.05
		21	<0.05	<0.05

の移行は認められなかった。本試験では摘採1日前に薬剤散布した茶葉を1.1%の割合で餌に添加したが、より高濃度の農薬が残留している茶葉を多量に与える場合でも、薬剤の種類によっては前述の茶葉の洗浄によって残留の減少を図ることができると考えられる。

認められなかった。

**謝辞：**本試験を実施するにあたりご協力いただいた、東京都農林総合研究センターの小嶋禎夫氏に厚く御礼申し上げる。

## 摘 要

未利用茶葉の用途拡大を図るにあたり、家畜飼料および家畜使用資材として活用する際の安全性を検証するため、茶葉の残留農薬調査を行った。アセタミプリドおよびテブフェノジドを茶葉に処理し、処理から収穫まで、および、その後の製茶過程における残留濃度の変化を検証した。アセタミプリドは1日後には15.9ppmとなり、テブフェノジドは14日後には5.7ppmと、基準値以下の残留となった。熱処理による残留軽減効果は認められなかったが、テブフェノジドについては洗浄により72.0%残留が減少した。また、両剤を散布して1日後に摘採、製茶した茶葉を混合した飼料をニワトリに2週間連続して給与した場合、鶏卵への農薬成分の移行は

## 引用文献

- Budavari, S. et al. (1996) The Merck index twelfth edition. Merck & Co., INC. p.1556.
- 後藤新平・西川信義・山田保 (1980) 鶏卵に移行する有機リン剤のガスクロマトグラフィーによる分析. 鶏病研究会報16: 139-142
- 「今月の農業」編集室 (編) (1998) 農薬登録保留基準ハンドブック改訂3版. pp.26-28, 497-502.
- 杉林幸子・濱田郁子・三島郁子・吉川典子・片岡寿理・川口恵代・藤本祐子・扇間昌規・伊藤蒼志男 (1995) ジクロロボス等20種農薬をモデル的に添加したばれいしょ、にんじんにおける洗浄・調理課程での減少度の検討. 日本食品科学学会誌2: 97-101.
- 上路雅子・小林裕子・中村幸二 (編著) (2001) 残留農

薬分析法. ソフトサイエンス社, 東京. p. 25.  
全国農業共同組合連合会 肥料農薬部 (編) (2004)

クミアイ農薬総覧2005. pp. 523-527, 570-571.

### Summary

Yuri Ikeda and Yoshiko Hashimoto (2006) : Residual Behavior of Two Kinds of Pesticides on Tea Leaves and Transfer to Hen's Eggs

**Key words** : tea, hen's egg, pesticide residue, acetamiprid, tebfenozide

The residual examination of acetamiprid and tebfenozide on tea leaves was done. Acetamiprid and tebfenozide were detected lower than the standard value at 14th day after pesticide treatment. Heat-treatment did not decrease the residues of both pesticides, but wash-treatment decreased tebfenozide residue in tea leaves. When hens were given tea leaves treated pesticides, both pesticides did not transfer to hen's eggs.