

国産小豆及びいんげんのフザリウム毒素含有実態調査

○漆山 哲生、須永 恭之、瀬川 雅裕、山田 友紀子
(農林水産省 消費・安全局)

1. 背景と目的

- 農林水産省は、国産麦類についてFusariumが産生するかび毒(フザリウム毒素)の含有実態を調査してきた。一方、厚生労働省は、輸入品を含む各種の穀類や豆類等のフザリウム毒素の含有実態を調査し、アズキからT-2トキシ(HT2)、HT-2トキシ(HT2)、ゼアレンロン(ZEN)が、他の穀類や大豆より、高濃度で高頻度に検出されたと報告した¹⁾。
- そこで、農林水産省は、国産の完熟豆類のフザリウム毒素に関して、生産段階におけるリスクを低減する措置が必要かどうかを検討するため、アズキ(小豆)(*Vigna angularis*)と、主産地や栽培形態がアズキと共通するインゲンマ(いんげん)(*Phaseolus vulgaris*)の2品目(いずれも乾燥子実)を対象としてフザリウム毒素の含有実態を調査した。

2. 調査の方法

○ 調査試料のサンプリング

- 完熟豆類は集荷、混合後に個別包装して販売されること及びかび毒汚染の偏在性が高いことを考慮して、平成26~27年度(平成26年7月~平成28年1月)に、主に平成25~27年産の市販の国産アズキ及びインゲンを1試料当たり2kg以上(アズキ:10,000粒以上、インゲン:3,000粒以上に相当)となるよう全国の食料品店、農産物直売所等から購入した。本調査では主産地である北海道(国内生産量の9割超を占める)以外の産地の含有実態も把握するため、生産量が2~10位までの産地のものも広く入手に努めた。
- 得られた調査試料(アズキ:162点、インゲン:144点)の産地、種類、産年の内訳を図1、図2に示した。

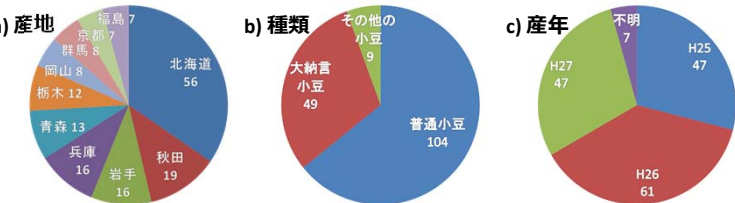


図1. アズキ試料のa)産地、b)種類、c)産年別の内訳

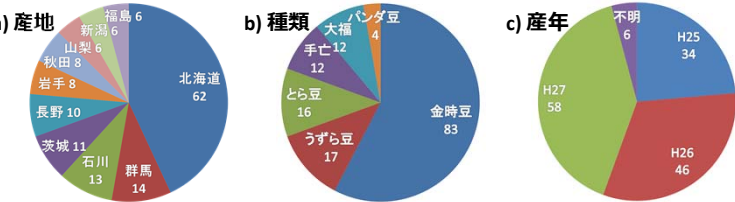


図2. インゲンマ試料のa)産地、b)種類、c)産年別の内訳

○ 試料調製及び分析法

- 調査試料は全量を0.5mm以下に微粉碎し、分析試料とした。平成26年度に入手した試料(アズキ:62点、インゲン:44点)は前処理にイムアフィニティを用いるLC-MS/MS法²⁾で、平成27年度に入手した試料(アズキ、インゲン各100点)は前処理にODSカラム及び多機能カラムを用いるLC-MS/MS法³⁾で、各々豆類に適用できることを確認後、T2, HT2, ゼアレンロン(DON), ZEN濃度を測定した。各分析法の検出限界(LOD)、定量限界(LOQ)及びLOQにおける測定の不確かさを表1、アズキを試料とした添加回収試験の結果を表2に示した。

表1. 検出限界、定量限界、定量限界における測定の不確かさ

フザリウム毒素	平成26年度				平成27年度			
	T2	HT2	DON	ZEN	T2	HT2	DON	ZEN
LOD (µg/kg)	0.4	0.2	4	4	0.5	0.5	5	5
LOQ (µg/kg)	1.0	0.6	10	10	1.0	1.0	10	10
LOQにおける測定の不確かさ (%)	12.0	5.8	11.2	9.9	8.6	12.1	3.4	4.6

測定の不確かさは、同一試験室内でLOQ相当濃度添加試料の繰り返し分析を1日/回、日を変えて3日間実施して得られたデータの一元配置の分散分析により求めたグループ内分散及びグループ間分散から次式により算出した室内再現精度(RSD_i)とした。(平成26年度はr=8、平成27年度はr=7)

$$RSD_i(\%) = \sqrt{\frac{\text{グループ間分散} - \text{グループ内分散}}{r}} + \text{グループ内分散} / \text{平均値} \times 100$$

表2. 平均回収率及び併行相対標準偏差(RSD_i) (LOQと検量線の中間値付近の2濃度)

フザリウム毒素	T2		HT2		DON		ZEN	
	添加濃度 (µg/kg)	平均回収率 (%)	RSD _i (%)	添加濃度 (µg/kg)	平均回収率 (%)	RSD _i (%)	添加濃度 (µg/kg)	平均回収率 (%)
平成26年度 (n=5)	1	10	0.6	10	10	100	10	100
	90.8	77.9	105	87.8	87.9	78.3	103	75.3
平成27年度 (n=18)	1	50	1	50	10	50	10	50
	101	93.4	85.3	83.3	97.5	97.8	105	74.5
	6.4	4.4	6.6	3.6	5.3	3.2	2.2	4.2

参考文献

- 1) 周 博一, 食品汚染カビ毒の実態調査ならびに生態毒性影響に関する研究 平成22年度~24年度総合報告書(2012)
- 2) 周 博一, 食品汚染カビ毒の実態調査ならびに生態毒性影響に関する研究 平成24年度 総括・分担研究報告書(2012)
- 3) Nakagawa et al. (2014). Journal of Analytical & Bioanalytical Techniques, 56-002.

3. 結果と考察

- いずれのフザリウム毒素とも、LOQ以上の濃度を示す試料の割合(検出率)は低く、平均値も低かった。本調査により、インゲンもフザリウム毒素に汚染され、T2, HT2, DON濃度はアズキと同程度であることが見いだされた(Mann-Whitney検定、α=0.05で有意差なし)。

表3. アズキ及びインゲンマ中のフザリウム毒素濃度

品目	フザリウム毒素	N	LOQ (µg/kg)	LOQ未満の点数 (割合)	最大値 (µg/kg)	平均値* (µg/kg)
アズキ	T2	162	1.0	145 (89.5%)	13	0.86
	HT2	162	0.6-1.0	96 (59.3%)	23	1.9
	DON	162	10	159 (98.1%)	14	5.1
	ZEN	162	10	134 (82.7%)	160	12
インゲンマ	T2	144	1.0	121 (84.0%)	68	1.6
	HT2	144	0.6-1.0	107 (74.3%)	37	1.8
	DON	144	10	140 (97.2%)	27	5.3
	ZEN	144	10	143 (99.3%)	17	4.9

* 平均値は、LOQ未満のものはLOQ値、LOD未満のものをLOD値として算出

○ 健康リスクの推定

- 平成26年度国民健康・栄養調査における、アズキ、インゲンの加工品が含まれる「和菓子」及び「大豆以外の豆・加工品」の総摂取量12gをアズキ及びインゲンの平均的摂取量と仮定し、それらの食品全てが本調査の最大濃度のフザリウム毒素を含むと仮定し、経口暴露量を推定した。
- このような保守的試算でも経口暴露量はJECFAによる暫定耐容摂取量(PMTDI)を下回っており、通常の食生活下では国産のアズキ及びインゲンマ中のフザリウム毒素による健康リスクは低い。

表4. 経口暴露量の試算とPMTDI (単位: µg/kg bw/day)

フザリウム毒素	経口暴露量	PMTDI
T2+HT2	0.023	0.06 (JECFA, 2001)
DON	0.006	1 (JECFA, 2010)
ZEN	0.035	0.5 (JECFA, 1999)

○ 産地間の比較

- 北海道産と他県産の2群に分けて濃度を比較すると、北海道産のアズキではT2, HT2, ZENが、インゲンマではHT2, DON, ZENが、他県産より有意に高かった(Mann-Whitney検定、α=0.05)。検出率が最も高かったHT2の含有濃度の産地別の相対度数分布を図3に示した。
- 穀類のT2, HT2の汚染は、冷涼で湿潤な気候下で起きることが知られており、豆類における産地間のフザリウム毒素濃度の違いも、栽培~収穫期の気温等による影響の可能性が考えられる。

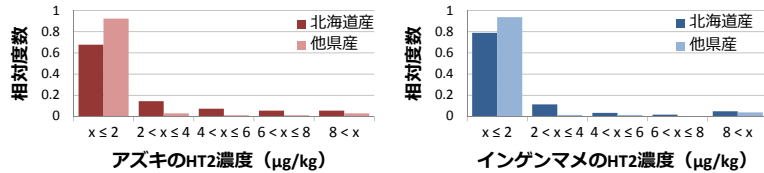
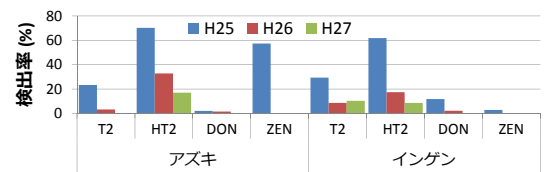


図3. アズキ及びインゲンマ中のHT-2トキシ濃度の産地別の相対度数分布

○ 産年間の比較

- アズキ、インゲンマのフザリウム毒素の平成25年産の検出率は、平成26年産、平成27年産よりも高かった(図4)。また、多重比較において、アズキではT2, HT2, DON, ZEN、インゲンマではHT2, DON, ZENに産年間で統計学的な有意差があった(Kruskal-Wallis検定、α=0.05)。
- 農産物のかび毒汚染は気象条件に影響され、汚染濃度に大きな年次変動があることが知られている。平成26年度の分析法(平成25年産の全てと平成26年産の一部を分析)と平成27年度の分析法(平成27年産の全てと平成26年産の一部を分析)の性能(LOQ、回収率など)の違いが産年別の濃度データに影響している可能性があるため、慎重に結果を解釈する必要があるものの、アズキ、インゲンマのフザリウム毒素汚染は、生産年によって異なる可能性が高い。

図4. 産年別のフザリウム毒素の検出率



4. 結論

- 平成25~27年産の国産のアズキ及びインゲンマのフザリウム毒素の汚染実態を調査した結果、それらの濃度・検出率とも低く、フザリウム毒素への経口暴露による健康リスクは低いと判断した。
- 麦類では赤かび病やフザリウム毒素汚染の原因となるFusariumが特定されているが、アズキ、インゲンマでは子実のフザリウム病害は知られておらず、感染するFusariumも特定されていない。今後、毒素を産生するFusariumの中でアズキ、インゲンマの子実に感染する種の特定と感染経路、毒素蓄積条件等の解明が必要である。その上で本調査の結果を再考察すれば、より有用な知見が得られると考えられる。