

福岡市における食肉中の残留塩素系農薬調査結果(第2報)

園田 要¹・小林 英樹²・中村 正規³The Survey of Organochlorine Pesticides Residual Level
in Meat in Fukuoka City(Part 2).

Kaname SONODA, Hideki KOBAYASHI, Masanori NAKAMURA

要 旨

1994年度から1997年度までに福岡市内を流通する牛肉123検体, 豚肉63検体, 鶏肉34検体について0.001ppm レベルまでの残留農薬の調査を行ったところ, 次のような結果が得られた. 検査項目はDDT (pp'-DDT, op'-DDT, pp'-DDE, op'-DDE, pp'-DDD), ディルドリン, アルドリン, ヘプタクロル(HC), ヘプタクロルエポキシサイド(HCE), HCH(α -HCH, β -HCH, γ -HCH, δ -HCH), エンドリンとした.

- 1) 検査対象の食肉脂肪中から DDT, ディルドリン, HCE, HCH を検出し, HC, アルドリン, エンドリンは検出されなかった.
- 2) すべての試料について規制値を超えたものはなく, 最高値で DDT は規制値の1/30, ディルドリンは1/7, HCE は1/17程度であった.
- 3) 残留値は1987~1989年度に行った前回の調査時より減少する傾向がみられ, 平均濃度は総 DDT, 総 HCH で数 ppb のレベルであった. DDT は代謝物である pp'-DDE の残留値が高く総 DDT 量のほとんどを占めた. HCH は α -HCH, β -HCH の残留値が高かった.
- 4) 獣畜の種類ごとに残留平均値を比較すると, 鶏肉, 牛肉, 豚肉の順に高い傾向があった.
- 5) HCH は日本を含めたアジア地域産の残留値が高い傾向があった.

Key Words : 有機塩素系農薬 Organochlorine Pesticides, 残留量 residual level,
肉類 meat

はじめに

有機塩素系農薬の DDT, HCH, ディルドリン等は国内ではすでに使用が禁止されている農薬であるが, 多くの国で使用されたものが環境中にひろく低濃度で残留し, これらの脂溶性が高く化学的に安定な性質から動物の脂肪中に残留していると考えられている. 昭和62年8月に安全性確保のため, 輸入食肉には表1のように暫定の基準値が設定され全国的に検査が行われてきた¹⁾. しかしながら通常の検査では測定レベルが高くほとんどの

試料が不検出の結果となり, 低濃度レベルでの残留状況は不明の場合が多い. またこれらの農薬は内分泌攪乱作用が危惧されていることもあり, 微量レベルであっても残留状況を把握しておくことは重要なことと考える. 我々は低濃度レベルまでの残留状況を把握することを目的として, 分析法を0.001ppm まで測定できるように改良し, 1987~1989年度の3年間に調査した結果を前報で報告した²⁾. この結果では一部の塩素系農薬が食肉の脂肪中に ppb レベルで残留し, その残留値は種類別, 生産国別等による増減がみられたことを明らかにした. そこでその後の残留状況を把握することを目的とし1994年度~1997年度の4年間に再度調査を行ったので, その結果について報告する. また前回の調査結果との比較についても併せて報告する.

1. 福岡市保健環境研究所 理化学課
(現所属 福岡市水道局水質試験所)
2. 福岡市保健環境研究所 理化学課
3. 福岡市城南区 衛生課

表1 輸入食肉の暫定的基準値

総DDT	脂肪中 5 ppm
ディルドリン (アルドリンを含む)	脂肪中 0.2 ppm
ヘブタクロル (ヘブタクロル・エボキサイドを含む)	脂肪中 0.2 ppm

2. 対象農薬

α-HCH, β-HCH, γ-HCH, δ-HCH, pp'-DDT, op'-DDT, pp'-DDE, op'-DDE, pp'-DDD, ヘブタクロル(HC), ヘブタクロルエボキシド(HCE), アルドリン, ディルドリン, エンドリン

II 方法

1. 試料

1994~1997年度及び1988~1989年度に福岡市内で食品衛生監視員が収去した牛肉123検体, 豚肉63検体, 鶏肉34検体を試料とした。

3. 試験方法

「牛肉中の有機塩素化合物の分析法」¹⁾に準じた方法で行ったが, 0.001ppm まで測定できるように若干の改良を加えた。試験法の詳細は前報で報告した。

表2 牛肉中の残留塩素系農薬生産国別集計結果 (1994~1997年度)

種類	生産国	項目	T-HCH	α-HCH	β-HCH	γ-HCH	δ-HCH	T-DDT	pp'-DDT	op'-DDT	pp'-DDE	op'-DDE	pp'-DDD	HC	HCE	Aldrin	Dieldrin	Endrin
牛肉	全体	最高値	0.1315	0.035	0.11	0.007	0.006	0.172	0.013		0.17	0.002	0.002		0.012		0.013	
		幾何平均値	0.0032	0.0008	0.0008	0.0006	0.0005	0.0068	0.0006		0.0033	0.0005	0.0005		0.0006		0.0008	
		検出数 検出率	39/123 31.7%	31/123 25.2%	17/123 13.8%	8/123 6.5%	3/123 2.4%	89/123 72.4%	7/123 5.7%	0/123	87/123 70.7%	3/123 2.4%	2/123 1.6%	0/123	14/123 11.4%	0/123	32/123 26.0%	0/123
	日本	最高値	0.1125	0.020	0.088	0.004	0.004	0.028	0.001		0.026				0.009		0.002	
		幾何平均値	0.0079	0.0012	0.0034	0.0007	0.0006	0.0063	0.0005		0.0035				0.0007		0.0006	
		検出数 検出率	9/14 64.3%	6/14 42.9%	8/14 57.1%	3/14 21.4%	2/14 14.3%	12/14 85.7%	1/14 7.1%	0/14	12/14 85.7%	0/14	0/14	0/14	2/14 14.3%	0/14	1/14 7.1%	0/14
	米国	最高値	0.0175	0.016				0.039	0.013		0.037	0.002			0.011		0.013	
		幾何平均値	0.0023	0.0006				0.0085	0.0006		0.0047	0.0005			0.0007		0.0010	
		検出数 検出率	6/40 15.0%	6/40 15.0%	0/40	0/40	0/40	32/40 80.0%	3/40 7.5%	0/40	32/40 80.0%	2/40 5.0%	0/40	0/40	8/40 20.0%	0/40	13/40 32.5%	0/40
	臺灣	最高値	0.0365	0.035	0.004	0.005		0.172	0.001		0.17	0.002			0.006		0.010	
		幾何平均値	0.0028	0.0008	0.0005	0.0005		0.0052	0.0005		0.0020	0.0005			0.0005		0.0007	
		検出数 検出率	11/42 26.2%	9/42 21.4%	1/42 2.4%	1/42 2.4%	0/42	23/42 54.8%	1/42 2.4%	0/42	23/42 54.8%	1/42 2.4%	0/42	0/42	2/42 4.8%	0/42	10/42 23.8%	0/42

脂肪中濃度 単位: ppm

表3 豚肉中の残留塩素系農薬生産国別集計結果 (1994~1997年度)

種類	生産国	項目	T-HCH	α-HCH	β-HCH	γ-HCH	δ-HCH	T-DDT	pp'-DDT	op'-DDT	pp'-DDE	op'-DDE	pp'-DDD	HC	HCE	Aldrin	Dieldrin	Endrin
豚肉	全体	最高値	0.0355	0.005	0.034	0.006		0.0445	0.023		0.009	0.020			0.001		0.002	
		幾何平均値	0.0029	0.0007	0.0008	0.0006		0.0046	0.0009		0.0020		0.0005		0.0005		0.0005	
		検出数 検出率	20/63 31.7%	12/63 19.0%	16/63 25.4%	3/63 4.8%	0/63	48/63 76.2%	20/63 31.7%	0/63	48/63 76.2%	0/63	2/63 3.2%	0/63	1/63 1.6%	0/63	2/63 3.2%	0/63
	日本	最高値	0.007	0.003	0.003			0.0125	0.004		0.007							
		幾何平均値	0.0027	0.0006	0.0008			0.0048	0.0007		0.002							
		検出数 検出率	2/7 28.6%	1/7 14.3%	2/7 28.6%	0/7	0/7	5/7 71.4%	2/7 28.6%	0/7	5/7 71.4%	0/7	0/7	0/7	0/7	0/7	0/7	0/7
	韓国	最高値	0.012	0.002	0.006	0.006		0.013	0.008		0.008		0.003					
		幾何平均値	0.0055	0.0009	0.0025	0.0008		0.0098	0.0014		0.0046		0.0007					
		検出数 検出率	4/5 80.0%	2/5 40.0%	4/5 80.0%	1/5 20.0%	0/5	5/5 100%	2/5 40.0%	0/5	5/5 100%	0/5	1/5 20.0%	0/5	0/5	0/5	0/5	0/5
	台湾	最高値	0.0065	0.003	0.005			0.0095	0.003		0.006				0.001		0.002	
		幾何平均値	0.0035	0.0007	0.0014			0.0043	0.0007		0.0015				0.0006		0.0009	
		検出数 検出率	3/5 60.0%	1/5 20.0%	3/5 60.0%	0/5	0/5	3/5 60.0%	1/5 20.0%	0/5	3/5 60.0%	0/5	0/5	0/5	1/5 20.0%	0/5	2/5 40.0%	0/5
米国	最高値	0.0055	0.004				0.010	0.002		0.008								
	幾何平均値	0.0022	0.0006				0.0015	0.0006		0.0010								
	検出数 検出率	1/9 11.1%	1/9 11.1%	0/9	0/9	0/9	4/9 44.4%	2/9 22.2%	0/9	5/9 55.6%	0/9	0/9	0/9	0/9	0/9	0/9	0/9	

脂肪中濃度 単位: ppm

表4 鶏肉中の残留塩素系農薬生産国別集計結果 (1994~1997年度)

種類	生産国	項目	T-HCH	α-HCH	β-HCH	γ-HCH	δ-HCH	T-DDT	pp'-DDT	op'-DDT	pp'-DDE	op'-DDE	pp'-DDD	HC	HCE	Aldrin	Dieldrin	Endrin	
鶏肉	全体	最高値	0.053	0.013	0.031	0.009	0.002	0.0825	0.040		0.041						0.030		
		幾何平均値	0.0037	0.0008	0.0012	0.0008	0.0005	0.0074	0.0009		0.0039						0.0010		
		検出数 検出率	17/34 50.0%	8/34 23.5%	14/34 41.2%	9/34 26.5%	2/34 5.9%	28/34 82.4%	9/34 26.5%	0/34	28/34 82.4%	0/34	0/34	0/34	0/34	0/34	14/34 41.2%	0/34	
	日本	最高値	0.0055	0.001	0.004	0.001		0.013			0.011							0.008	
		幾何平均値	0.0036	0.0005	0.0017	0.0005		0.0054			0.0029							0.0009	
		検出数 検出率	8/11 72.7%	1/11 9.1%	8/11 72.7%	1/11 9.1%	0/11	9/11 81.8%	0/11	0/11	9/11 81.8%	0/11	0/11	0/11	0/11	0/11	0/11	6/11 54.5%	0/11

脂肪中濃度 単位: ppm

4. 集計方法

1994年度から1997年度までの調査結果を集計し、食肉の種類別に検出数、検出率、幾何平均値、最高値を算出した。生産国の明らかであったものは国別に集計し、生産国不明であったものを含む全ての試料の集計結果は全体として示した。なお、幾何平均値算出の際、定量下限未満であったものは、0.0005ppm(定量下限の1/2)として計算した。総 HCH(T-HCH)は異性体 α -HCH, β -HCH, γ -HCH, δ -HCH の総和、総 DDT(T-DDT)は pp'-DDT, op'-DDT, pp'-DDE, op'-DDE, pp'-DDD の総和とした。1987~1989年度との比較については前報の調査結果を用いた。

III 結果及び考察

1994~1997年度に調査を行った残留農薬の食肉の種類別の集計結果を表2~4に示した。また検出率の高かった農薬の食肉の種類別の比較を1994~1997年度は図1に、1987~1989年度は図2に示した。暫定的基準値は輸入食肉についてのみ設定されているが、今回の調査では国産輸入に関わらず全て基準値未満であった。HC, γ -HCH, δ -HCH, α -DDE, β -DDE, γ -DDE, δ -DDE は検出されなかったが、これは前回の調査と同様であった。

1. 牛肉

検出率の高かった農薬について、生産国別の比較を図3に、残留平均値の調査時期による比較を図4, 5に示した。

DDT は試料の約7割から検出され、そのほとんどは pp'-DDE であり、op'-DDT は前回と同様に検出されなかった。総 DDT の最高値0.172ppm は豪州産の試料で他の試料よりかなり残留値が高かったが、この濃度で基準値の約1/30であった。豚肉、鶏肉と比較すると HCH の残留値が高い特徴があった。検出率の高かった農薬の牛肉試料全体での平均値は pp'-DDE0.0033ppm, δ -DDE 0.0008ppm, HCH0.0006ppm, 総 HCH0.0032ppm であった。

生産国別に比較すると図3に示すように国産の HCH, 特に β -HCH の残留値が高かったが、これは前回の調査と同様であった。総 DDT の平均値は米国, 国産, 豪州産の順に低い結果であったが、大きな差ではなかった。

平均値を前回の調査結果と比較すると図4, 5に示すように試料全体及び国産共にほとんどが前を下回っており、残留濃度の低下傾向がみられた。

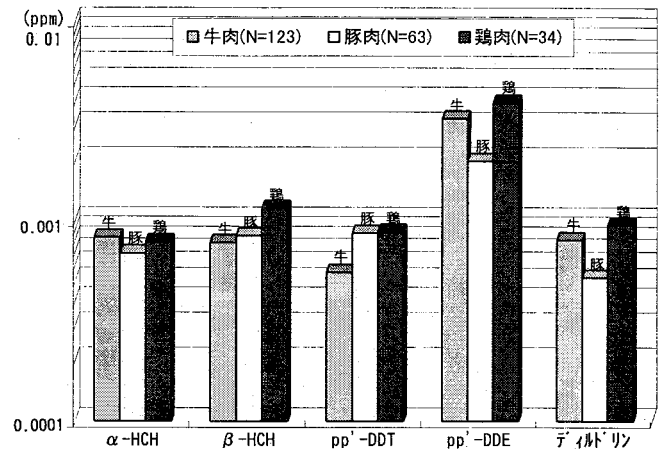


図1 食肉中残留農薬平均値の種類別の比較 (1994~1997年度)

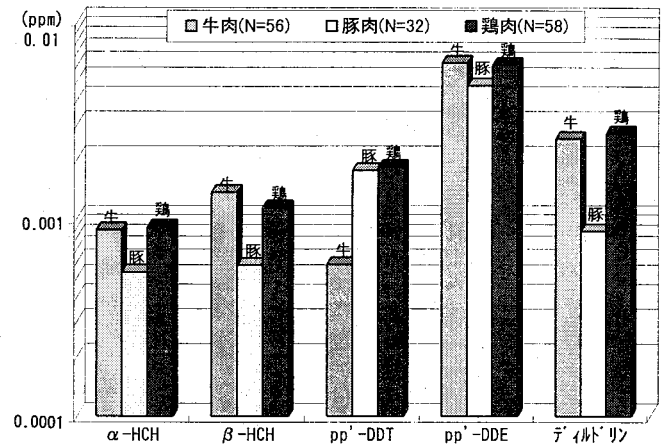


図2 食肉中残留農薬平均値の種類別の比較 (1987~1989年度)

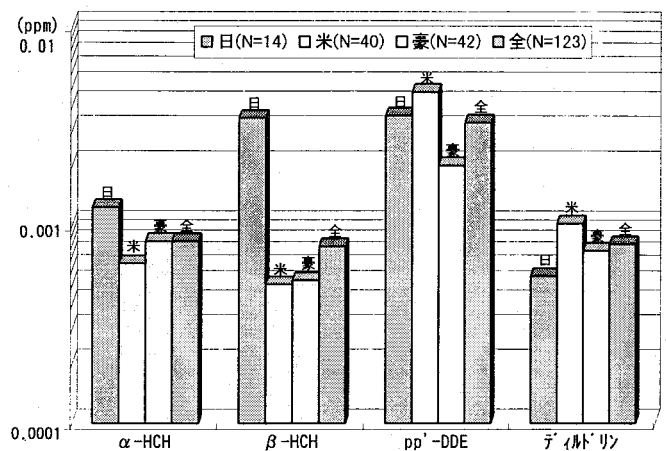


図3 牛肉中残留農薬平均値の生産国別の比較 (1994~1997年度)

2. 豚肉

検出率の高かった農薬について、生産国別の比較を図6に、残留平均値の調査時期による比較を図7、8に示した。

DDTは試料の約7割から検出され、そのほとんどはpp'-DDEであり、op'-DDT、op'-DDE、 δ -HCHは前回と同様に検出されなかった。検出率の高かった農薬の豚肉試料全体での平均値はpp'-DDE0.0020ppm、総HCH0.0029ppmであった。

試料数が多くはなかったが生産国別に比較すると、図6に示すようにHCH、特に β -HCHの残留値が国産、韓国、台湾等のアジア地域産で高い特徴があった。

残留の平均値を前回の調査結果と比較すると図7、8に示すように試料全体及び国産においてほとんどが前回を下回っていた。一部 α -HCH、 β -HCH残留値が前回より高くなっているのは、HCH濃度が比較的高かったアジア地域産の試料が前回の調査にはほとんど含まれていなかったためと考えられた。

3. 鶏肉

検出率の高かった農薬について、生産国別の比較を図9に、残留平均値の調査時期による比較を図10、11に示した。

DDTが試料の約8割から検出され、そのほとんどはpp'-DDEであり、op'-DDT、op'-DDE、pp'-DDD、HCEは検出されなかったが、op'-DDEは前回と同様であった。検出されることの多かった農薬の鶏肉全体での平均値はpp'-DDE0.0039ppm、総HCH0.0037ppm、 δ -HCH0.0010ppmであった。

国産と全体とを比較すると図9に示すように国産の β -HCHが高い特徴があった。

残留の平均値を前回の調査結果と比較すると図10、11に示すようにほとんどにおいて前回調査を下回っていたが、一部国産の β -HCHが前回を上回っていた。

鶏肉は牛肉及び豚肉に比較して残留値が高かったが、鶏の飼育期間が最も短いことを考えると飼料中の残留値が他に比べて高いと推定された。一般に塩素系農薬の残留は陸上の動物より魚介類の方が高く、また鶏は調製された配合飼料での飼育が多いことを考えると魚粉が飼料に多く用いられているためではないかと考えられた。

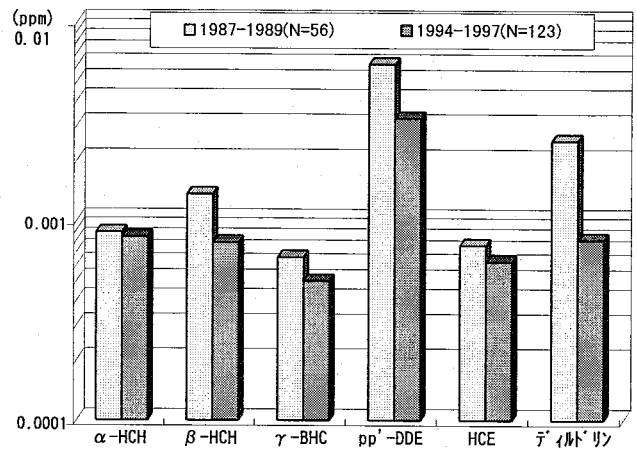


図4 牛肉中残留農薬平均値の調査時期による比較

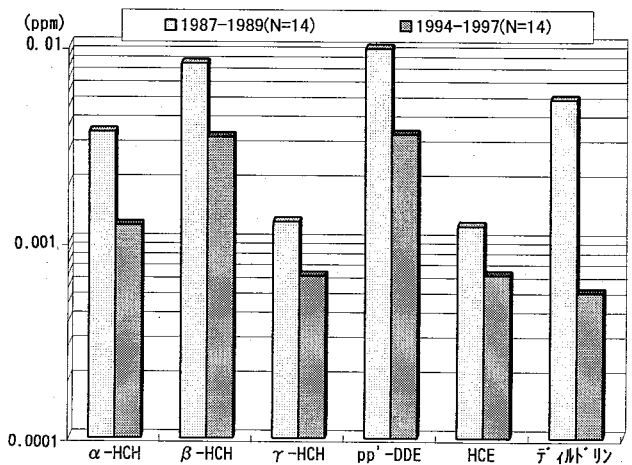


図5 国産牛肉中残留農薬平均値の調査時期による比較

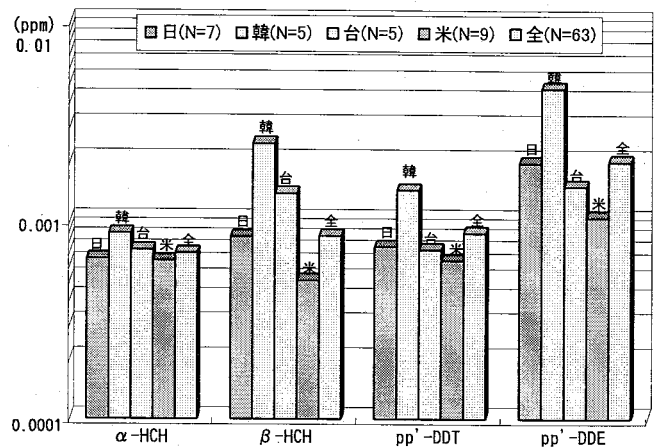


図6 豚肉中残留農薬平均値の生産国別の比較 (1994~1997年度)

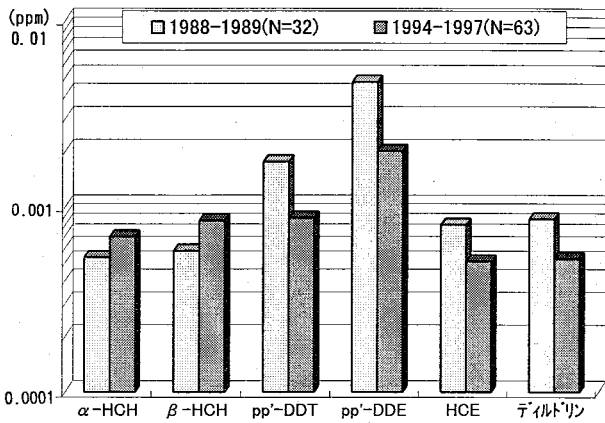


図7 豚肉中残留農薬平均値の調査時期による比較

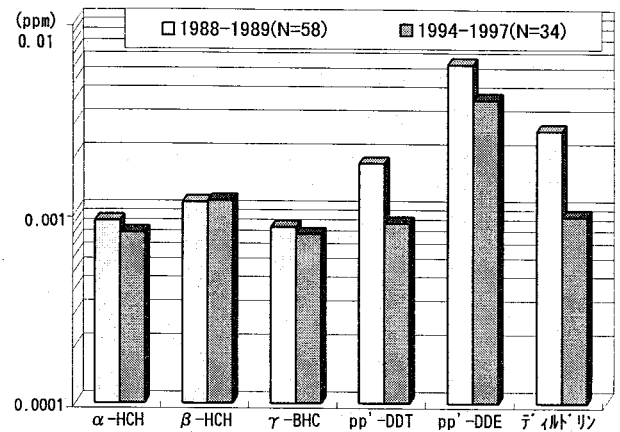


図10 鶏肉中残留農薬平均値の調査時期による比較

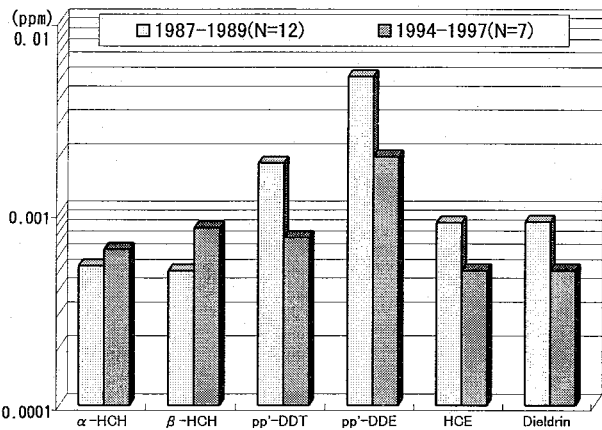


図8 国産豚肉中残留農薬平均値の調査時期による比較

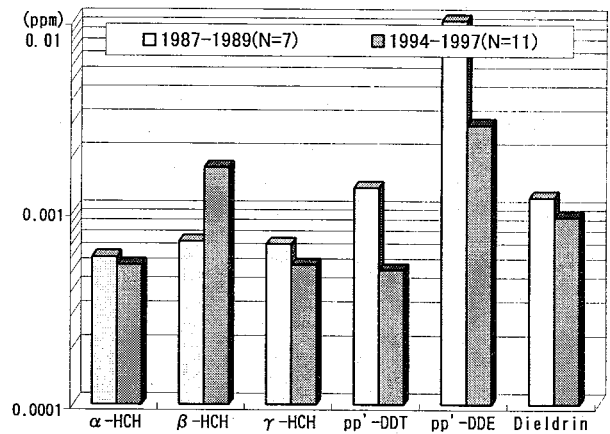


図11 国産鶏肉中残留農薬平均値の調査時期による比較

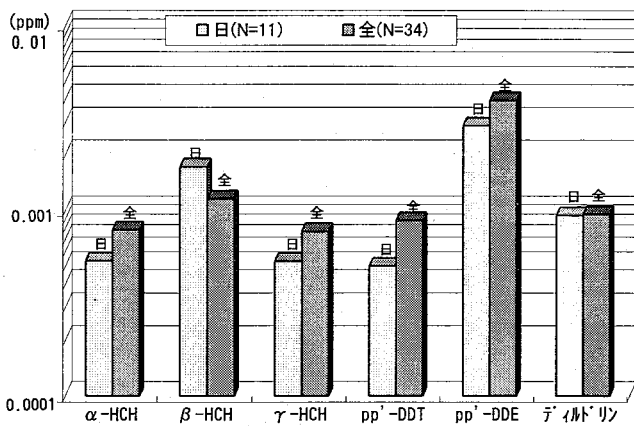


図9 鶏肉中残留農薬平均値の生産国別の比較 (1994~1997年度)

IV まとめ

全体的に残留値は総 DDT が最も高く、次に総 HCH, デルトリン, HCE の順であった。総 DDT のなかでは代謝物の pp'-DDE の残留値が最も高く、その割合も総 DDT のほとんどを占めた。ほかに pp'-DDT, pp'-DDD が検出されたが、pp'-DDE に比較して検出頻度は少なく、op'-DDT は検出されなかった。図 1, 2 の pp'-DDT と pp'-DDE の比率を比較すると今回の pp'-DDE の比率の方が前回より高くなっていた。一般に pp'-DDE はそれ以上代謝を受けないため、古い汚染ほど DDE/DDT の比率が高いとされている。この結果からも約10年のあいだに DDT 類の代謝がすすみ、DDE の比率が上昇したと思われる。HCH は β -, α -, γ -, δ -体の順に残留値が高かった。HC, アルドリンは全ての試料から検出されなかったが動物体内では HC は HCE に、アルドリンはデルトリンに代謝されるといわれており、この結果もその傾向を示していると思われた。

残留平均値を前回調査と比較すると牛肉、豚肉及び鶏肉のほとんどが前回は下回っていた。試料は前回と同じではなく生産国も若干異なっていたため一概に結論づけることは出来ないが、全般的に前回調査時より濃度は減少しているものと思われた。一部国産の豚肉及び鶏肉の HCH が前回は上回っており、今後も注意が必要と思われる。

生産国別では米国、オーストラリア産がほとんど HCH を検出しなかったのに対して、日本や韓国、台湾等のア

ジア地域産では HCH, 特に β -HCH の残留値が高かった。

向があった。このような残留傾向の違いの理由として飼料と飼育環境中の残留レベルの違いが考えられた。

残留値は前回の調査と同様に種類別、生産国別等による増減がみられ一部平均的な残留値を大きく上回ることもあった。これらの農業は世界の一部の地域ではいまだに使用する場所があるといわれており今後も監視を続ける必要があると考える。

以上のように食肉脂肪中の塩素系農薬は残留値の低下傾向がみられるものの一部の農薬が依然として ppb レベルのオーダーで残留していることが明らかとなった。厚生省の示した分析法では定量下限は DDT 約 0.05ppm, デルトリン及び HC 約 0.02ppm とされており、ほとんどが定量下限未満の結果となることが分かる。

今後も食品の安全性を確保していくため、このような微量の残留化学物質について調査を行っていく必要があると考える。

本稿の一部は第45回福岡県公衆衛生学会で発表した。

文 献

- 1) 厚生省生活衛生局乳肉衛生課：DDT等の残留する輸入食肉の流通防止について、衛乳第42号，昭和62年8月27日
- 2) 中村 正規，木内 佳伸：食肉中の残留農薬検査結果について，福岡市衛試報，15, 73~85, 1990