

# 10. 牛乳等の残留農薬試験について

(第3報)

深 沢 喜 延      網 野 英 夫※1

※現在 山梨県日下部保健所

1969年12月16日の高知県衛生研究所の発表に端を発した牛乳の有機塩素系農薬による汚染問題は、約1年6カ月後の暫定許容基準設定で一段落の感がある。著者らは1970年2月から山梨県内で生産された原乳、市販されている牛乳等について有機塩素系農薬の残留量調査を行ない、山梨県立衛生研究所年報に第1報<sup>1)</sup>、第2報<sup>2)</sup>として報告してきた。今回は2年間の調査結果に基づいて、牛乳中のBHCの推移と今後の問題点を中心に総括的に報告する。

## I 原乳の汚染とその原因追求

### 1. 酪農乳のBHC含量

県内の主要酪農地区は八ヶ岳山麓、国中、富士山麓であるが、この3地区で生産された原乳について1970年、71年にBHC含量を調査し、表1に示す結果を得た。3地区ともに1971年産原乳で含有量は減少しているが、1970年産富士山麓地区の原乳からは比較的高濃度のBHCが検出された。

### 2. 稲わらのBHC含量

1970年の原乳調査で富士山麓の酪農乳のBHC含量が他地区に比較して数倍高いことから、乳牛の各種飼料についてBHC含量の調査検討を行なった。その結果、配合飼料等については地域差はなく、当時給飼されていた1969年産稲わらについてのみ表2に示すように有意の差がみられた。そこでさらに県内稲作地域3カ所の稲わら(1969年産)を採取し調査したが、その平均値は表2に示すとおりであり、国中、八ヶ岳山麓で給飼されていたものと差は認められなかった。

表1 酪農乳のBHC残留量 (ppm)

産地	調査時	total-BHC	α-BHC	β-BHC	γ-BHC
八ヶ岳山麓	'70.2-4	0.035	0.012	0.021	0.002
	'71.7-10	0.015	0.007	0.007	0.001
国中	'70.2-4	0.042	0.018	0.022	0.002
	'71.6-7	0.025	0.014	0.010	0.001
富士山麓	'70.2-4	0.163	0.050	0.110	0.003
	'71.7	0.015	0.008	0.007	tr

表2 1969年産稲わらのBHC残留量 (ppm)

給飼地区	total-BHC	α-BHC	β-BHC	γ-BHC
八ヶ岳山麓	0.105	0.044	0.034	0.029
国中	0.107	0.044	0.036	0.025
富士山麓	—	>1.0	>1.0	0.226
山梨県産稲わら	0.117	0.033	0.058	0.026

表3 乳牛体と牛乳の脂肪中のBHC残留量 (ppm)

検体名	total-BHC	α-BHC	β-BHC	γ-BHC
乳牛	3.990	1.530	2.390	0.070
牛乳	4.215	1.589	2.522	0.104

### 3. 乳牛体と牛乳のBHC含量の関係

牛乳中に検出されるBHCは乳牛の体脂肪中に蓄積された薬剤の排泄と考えられることから、1970年6月に乳牛の腸管膜脂肪6例について含量を調査した。同時期に生産された牛乳と脂肪当りのBHC含量を比較すれば、表3のように極めてよく一致した結果が得られた。

## II 市販乳中の有機塩素系農薬の追跡

### 1. BHC含量の経時変化

BHC・DDTは既に1969年以前から国内むけの生産は中止<sup>3)</sup>されていたが、それまでに大量の製剤が流通し、繁用されていた。厚生・農林両省は1970年以降、食品中の残留BHCの減少対策をとりはじめたが、こうした行政措置により期待される牛乳中のBHC含量の低下を観察するため、市販乳について追跡調査を行なった。調査時期は飼料などの関係を知るため、粗飼料の変化にともない下記のとおり設定した。

- 1) 稲わらと青刈飼料の切りかえ時期の4~6月
- 2) 青刈飼料最盛期の9~10月。
- 3) 舎飼いによる稲わら給飼盛期の冬季。得られた結果は図1に示すとおりであり、総BHCは2年間で $1/20$ に低下した。また各異性体についてみると、β-BHCが $1/30$ と最も著しい減少傾向を示し、γ、α異性体がこれにつづいている。

## 2. 他の有機塩素系農薬農薬の含量

1971年6月に $\beta$ -BHCとならんで暫定基準の定められたディルドリンについて、1970年11月から調査したが図2に示すように1971年2月をピークに減少傾向が認められた。

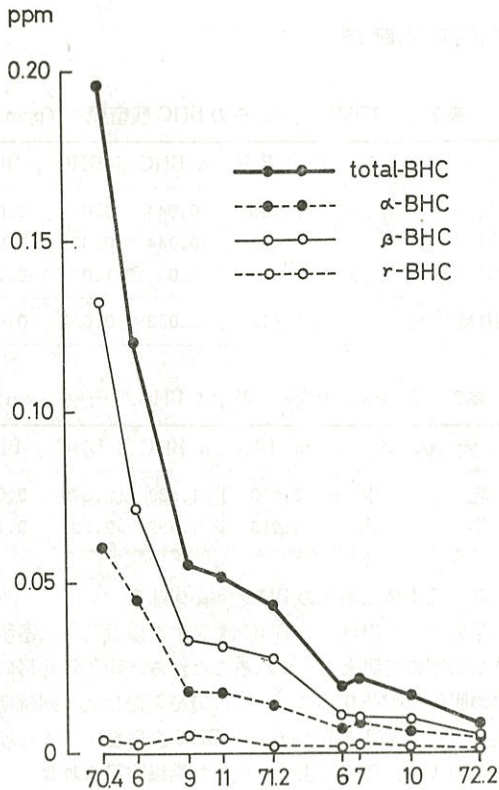


図1 BHC残留量の経時変化

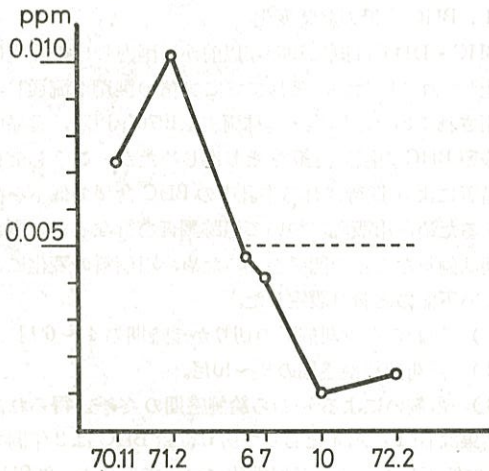


図2 ディルドリン残留量の経時変化  
点線は暫定許容基準

## 考 察

### 1. 原乳の汚染と稲わらの関係

著者らの調査と前後して、全国的にもBHCを多用した稲わらが牛乳のBHC汚染の1大原因であることが判明し、1970年8月に農林省は稲作へのBHC剤使用を全面的に禁止する処置<sup>4)</sup>をとった。富士山麓で給飼されていた稲わらが高濃度のBHCを含有していたが、その後の県公衆衛生課の調査でこの稲わらは、他県からの移入品であることが確かめられた。1971年産の原乳は稲わらの供給地を変更することにより、地区別の差が認められなくなり、全国的にみても低汚染地域となった。

### 2. 市販乳中BHCの経時変化の特徴

市販乳中のBHC含量を9回調査したが、図1に示したように各異性体については若干の問題点はあるが、総BHCは良好な減少曲線を描き、1972年2月段階で調査開始時の $1/20$ に減少している。この原因は厚生・農林両省のすみやかな行政指導と、原乳生産農家の努力の結果と考えられる。

### 3. 夏から秋にかけての減少傾向の停滞

夏から秋にかけては飼料としては青草が主力であり、BHC含量の減少は急速に進むものと考えられたが、調査した兩年とも7月から11月にかけて総BHCの減少率低下が認められた。この現象をさらに検討すると、1970年には $\gamma$ -BHCのみが増大し、1971年には $\alpha$ -BHCと $\gamma$ -BHCが増大している。一般に市販されているBHC剤の組成は $\alpha$ 体が約70%、 $\gamma$ 体が25~26%でその他の異性体が数%といわれている<sup>5)</sup>。このことから、1970年夏には $\gamma$ -BHCだけから成るリンデンが、1971年にはBHC剤が畜舎の殺虫等の目的で使用されたものと考えられる。

### 4. BHCの組成

BHCの異性体は7種あり、 $\alpha$ -BHCと $\gamma$ -BHCが大部分を占めているが、牛乳中に残留していたBHCの組成は、 $\beta$ -BHCがおおむね60%付近で最も多くなっている。この $\beta$ -BHCの高率の原因が $\beta$ 体そのものの特にすぐれた残留性によるものか、 $\alpha$ 体等が生体内で $\beta$ 体に変化したものか、なお検討の余地がある。今回の追跡調査の結果からみると、図3に示すように調査の初期ではその組成比が比較的安定であったのに、後半では $\alpha$ 、 $\gamma$ -BHCの比率が上昇していることが特徴的である。 $\beta$ -BHCの著しい減少と組成比の低下は、第2次大戦後の無制限な使用による生態系への蓄積から1970年以降の使用制限による供給量の減少に起因すると考えられる。

### 5. 総BHCの今後の消長

牛乳中の総BHCと各異性体の濃度と時間の関係を片



対数グラフにとると、図4のようになるが、この減少傾向はいつれについてもほぼ直線的である。これから推論すると1973年の夏から秋にかけて総BHCは0.001ppm以下に低下すると考えられる。

#### 6. 暫定許容基準と残留量

1971年6月、厚生省は牛乳中の有機塩素系農薬残留の暫定許容基準を次のように定めた<sup>6)</sup>。

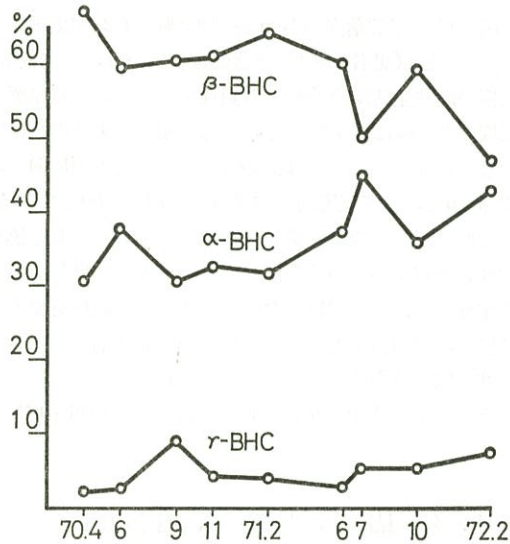


図3 牛乳中BHCの組成

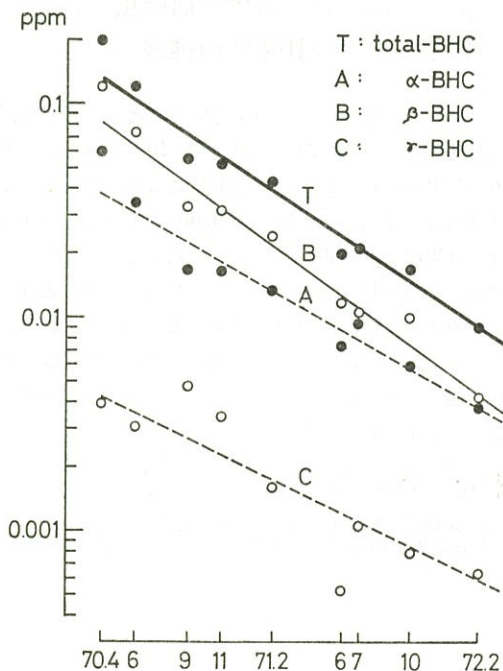


図4 BHCの減少曲線

- 1) β-BHC 0.2ppm
- 2) DDT 0.05ppm
- 3) ディルドリン 0.005ppm

そこでこの基準と今回の市販乳の残留量を比較するとβ-BHCについては1972年2月時で1/50であり、国立衛生試験所が算定した1日摂取許容基準0.05mg/kgに達するには、成人男子(体重60kg)で700kgの牛乳に相当する。

一方ディルドリンは基準設定後は基準を越えるものは見出されず、1972年2月には全ての検体が、0.002ppm以下となった。

以上2年間の牛乳農薬汚染追跡調査の結果を検討したが、指摘した2~3の問題点を除けば汚染は今後さらに低下するものと考えられる。

### 実験の部

#### 1. 検体

- 1) 牛乳：山梨県内で市販されている6社の牛乳を公衆衛生課で収去したもの
- 2) 乳牛腸管膜：食肉公社でと殺された乳牛の腸間膜を県食肉検査所を通じて入手したもの。
- 3) 原乳：本県の主要酪農地区3カ所で生産された合乳を公衆衛生課、乳業会社を通じて入手したもの。
- 4) 稲わら：上記3地区で給飼していた1969年産稲わらと、県内稲作地域から入手したもの。

#### 2. 試験法

FDAの牛乳中有機塩素系殺虫剤の残留分析法に準じて処理し、ECDガスクロマトグラフによって分析したカラム充填剤は次の4種である。

- 1) Silicone DC-11 5%/Chromosorb G (60~80 mesh)
- 2) Silicone DC QF-1 5%/chromosorb G (60~80 mesh)
- 3) Silicone OV-17 2%/Chromosorb W (60~80 mesh)
- 4) Diethyleneglycol Succinate+H<sub>3</sub>PO<sub>4</sub> (2%+0.5%)/Chromosorb W (80~100mesh)

### 文献

- 1) 深沢喜延：山梨衛研年報 13 4 (1969)
- 2) 深沢喜延：同上 14 65 (1970)
- 3) 農林省：44畜A第6452号 (1969)
- 4) 農林省：45農政第4448号 (1970)
- 5) 上遠章ら：農薬講座(2) 16 (1967)
- 6) 厚生省：46環乳第60号 (1971)