

論文の内容の要旨および論文審査の結果の要旨

学位申請者氏名：船田 一夫	学位の種類：博士（食品栄養学）
学位記番号：博（健）甲第5号	学位授与年月日：平成23年3月18日
審査委員：主査 高崎健康福祉大学教授	中嶋 隆
	高崎健康福祉大学教授
	小澤 好夫
	高崎健康福祉大学教授
	松岡 寛樹
	高崎健康福祉大学教授
	渡辺 由美

論文題目

食品中の食品添加物及び残留農薬に係わる調査研究
A study of food additives and pesticide residues in food

【論文の内容の要旨】

1. はじめに

近年、食に対する消費者の不安は、食品の偽装表示や食品添加物の不正使用、残留農薬の問題など、マスコミの過熱した報道とも相まって増大している。特に、食品添加物の不正使用や農産物の残留農薬などの化学物質による問題は、発がん性の問題などと結びつけられ、その安全性の確保への期待が増大している。その安全性の評価は、科学的根拠に基づき、正確な検査結果のもと判断されなければならない。

2. 調査の目的

国は、食品検査の信頼性を確保するため、地方公共団体や登録検査機関に対し業務管理基準の導入を1997年4月に義務づけた。それに伴い、各地方公共団体や登録検査機関の食品衛生検査施設ではGLPというシステムを導入し、検査に関するすべての業務の信頼性を確保する体制をとっている。今回は、GLPの導入が義務づけられていない民間の食品検査施設を対象に添加物の精度管理を行うにあたり、精度管理の評価を行う際の問題点について検討した。一方、残留農薬検査では、規制の強化に伴い、検査対象農薬等が急増していることから、流通農産物の実態を調査し、検査・監視の効率化・能率化を図るための対象農産物の重点化を検討した。また、食の安全性を確保するため、出荷前県内農産物の残留農薬の実態調査を実施し、不適正な使用が疑われた事例については、全国に先駆けて、農薬使用施設に立入調査・指導し、購入記録や使用記録等から農薬使用実態を把握するとともに、適正な使用方法等の確立に向けての検討を行った。

3. 精度管理に係わる食品添加物の経時変化とその解析

民間の食品検査施設を対象に精度管理を行うにあたって、提供するソルビン酸(SOA)、安息香酸(BA)及びデヒドロ酢酸(DHA)の試料について、冷蔵保存時における経時変化などを水蒸気蒸留法等により検討した。

その結果、SOA、BA及びDHAの3種類の保存料を混合した場合、BA及びDHAでは経時変化が認められなかったが、SOAのみ減少した。また、SOAに代えてソルビン酸カリウム(SOAK)を用いた場合でも、SOAより減少率は少ないが同様にSOAKのみが減少した。しかし、SOA又はSOAKを単体では、3種類の保存料を混合した場合と異なり、明らかな減少は見られなかった。また、その減少は、試料の調製に用いたシロップを加えても認められなかったが、エタノールでは認められ、BAやDHAを加えると、さらに減少し、4より37の方が促進された。これらの減少は、pH依存性が高く、SOAあるいはSOAKの異性化に伴うものでなく、酸や熱による分解、エタノールによるエステル化であることが推

察された。

さらに、この試料の調製方法は、国をはじめとする外部精度管理に広く用いられており、精度管理の評価に影響を与えている可能性があり、安定だという概念で精度管理や試薬調整等を行うことには、大きな問題があることが分かった。

4. 農産物中の残留農薬の実態調査とその統計学的解析

4-1 群馬県内に流通する農産物の実態調査とその統計学的解析

食の安全・安心を確保するための監視を効率的かつ効果的に行うためには、群馬県内に流通する国産農産物や輸入農産物の農薬残留実態を把握し、検査・監視対象にする食品等の重点化を図る必要性があった。そこで、2003年度から2006年度にかけて県内に流通した農産物の残留農薬の実態を調査ところ、国産農産物については、97検体(22.9%)：151延べ検体(0.43%)から、輸入農産物については、30検体(22.2%)：42延べ検体(0.39%)から農薬を検出されたが、食品衛生法に定めた残留農薬基準値(暫定基準を含む)を超えるものはなかった。また、国産農産物を農林水産統計の作物区分による分類別に分類間で検討したところ、根菜類と他の分類間では根菜類が極めて低く($p<0.001$)、葉茎菜類と果菜類では、葉茎菜類の検出率が高かった($p<0.05$)が、農薬が検出されなかったきこの類を除き、他の分類間での有意差は認められなかった。このことから、葉茎菜類を最重点に果実類、果菜類の順で重点的に検査・監視し、根菜類やきこの類は重点にはする必要がないことが分かった。次に、輸入農産物では、それぞれの分類間では有意差がなかったが、日持ちの良い果実類を最重点に、次いで、果菜類、葉茎菜類の順に重点的に検査・監視することが望ましいことを明らかにした。なお、農林水産大臣に登録申請されていない適用外使用農薬が国産農産物16検体から検出された。その検出量はきわめて微量で、その多くが acephate とその加水分解物の methamidophos (国内で製造販売されたことがない)であった。輸入農産物では、acephate が検出されないで、methamidophos が検出されたものがあり、輸出国で methamidophos が使用されていたことを明らかにした。

4-2 群馬県内で生産された出荷前農産物の残留農薬の実態調査とその疫学的解析

2002年に全国的な無登録農薬使用問題が起こり、群馬県では、生産県の責務として、消費者に安全な農作物を提供するため、農産物の出荷前の確認検査等を盛り込んだ、いわゆる群馬県農薬適正使用条例を2002年に全国に先駆けて制定した。出荷前の検査には、極めて迅速性が求められることから、数時間で抽出分析ができる超臨界抽出法をスクリーニング方法として採用した。しかし、この方法ではいくつかの農薬でマトリックスを起こし、その関係で陰性が陽性化した。このスクリーニングで検出されたものは、すべて公定法で確認したので問題は生じないことが分かった。これを受けて、2003年度から2006年度にかけて、出荷前県内産農産物615検体(延べ検体:50,782)の残留農薬検査を実施した。その結果、出荷前県内産農産物の154検体(25.0%)と233延べ検体(0.46%)から農薬を検出した。すべての農作物において、食品衛生法に定めた残留基準を超えるものはなかった。しかし、8種類の検体から農林水産大臣に登録申請されていない適用外使用農薬が10種類16事例あった。この10種類16事例の適用外使用農薬について、農薬使用者の農薬購入記録や農薬使用記録を基に調査したところ、8種類14事例で農薬使用履歴がない事例が認められ、他の2種類2事例は誤使用だった。使用履歴のない14事例について、ドリフトによると思われるものが7事例、土壌残留が疑われたものが5事例、用具の洗浄不足と思われるものが2事例あった。誤使用の2事例については、2002年の農薬取締法の改正で分離登録されたミニトマトへの誤使用であった。また、農産物の分類別農薬検出状況では、果実類は他の分類間との検出率の比較では極めて高く($p<0.001$)、一方、根菜類は他の分類間との検出率の比較では極めて低かった($p<0.05$)。このことから、果実類を最重点にし、果菜類、葉茎菜類の順で検査・監視の重点化を図る必要があることを明らかにした。また、出荷前の葉茎菜類が流通しているものより低いことから、生産農家への指導で低減化が図れることが分かっ

た。このことから、生産農家への指導する部局と食品衛生部局とが連携し、生産農家を指導することは、生産農家の意識の向上や周りとの連携の必要性、加えて消費者の安全と安心の確保に繋がる有効な手段であることが確認された。

【論文審査の結果の要旨】

近年、BSEの発生、食品の偽装表示、食品添加物の不正使用、残留農薬の問題などにより、食の安全・安心の確保が求められている。安全性の確保は、正確な検査結果に基づき、科学的根拠によるものでなければならない。

申請者の見出した主な新知見等は以下のとおりである。

1. 精度管理に係わる食品添加物の経時変化とその解析

保存料のSOA、BAおよびDHAは、多くの食品に広く利用され、極めて安定なものであるとされている。食品中からの分離は、公定法では水蒸気蒸留法による同時抽出、同時測定が行われている。今回、GLPの導入が義務づけられていない民間の食品検査施設を対象に精度管理を行うにあたりSOA、BAおよびDHAを4%エタノールにそれぞれ溶解し、混合した試料について、4における経時変化等を検討した。

SOA、BA、DHAの単独では減少しないが、混合するとSOAのみが減少し、4より、37の方が促進されることを明らかにした。

SOAに代えてSOAKでもSOAより軽度ではあるがその減少が認められた。

SOAは、試料作成に加えられたシロップでは減少しなかったがエタノールを加えると減少し、BAやDHAを混合するとさらに減少することを明らかにし、このエタノールによる減少はエステル化によるものであることが推察された。

SOAやSOAKの減少について検討し、pH依存性が高く、SOAの異性化によるものでないことを解明した。

今回、水蒸気蒸留法を用いていることから、この減少は、酸や熱による不安定化と考えられた。

この試料の作成方法は、国等の外部精度管理に用いられているものであり、その評価の判定に考慮する必要性があることを指摘し、精度管理の信頼性確保の面で問題があることを提起した。

2. 農産物中の残留農薬実態の調査とその統計学的解析

2-1 群馬県内に流通する農産物の残留農薬の実態調査とその統計学的解析

ポジティブリスト性の導入等による検査農薬等の急増に伴い、食の安全・安心を確保するための検査・監視指導を効率的かつ効果的に行うためには、群馬県内に流通する国産農産物や輸入農産物の農薬残留実態を把握し、監視対象にする食品を重点化する必要性があった。そのためには、科学的根拠が求められているが、農薬検査の結果について統計的解析を行ったものはほとんど見当たらず、農林水産統計の作物区分による分類別に統計解析を行い、それを検査・監視指導に活用しようという観点からの研究を行った例はない。

このことから、2003年度から2006年度に県内に流通する国産農産物424検体(農薬別延べ検体；以下延べ検体：34,797)、輸入農産物135検体(延べ検体：10,819)の残留農薬検査を実施し、残留農薬実態を調査し、その結果を統計学的に解析し調査対象農作物の重点化を図った。

国産農産物と輸入農産物については、その検出率には差異がなく、その検出値も低く、食品衛生法で定めた残留農薬基準値を超えるものがなかったことを明らかにした。

国産農産物を分類別に比較検討したところ、根菜類と他の分類間の比較では根菜類が極めて低く($p < 0.001$)、葉茎菜類と果菜類では、葉茎菜類の検出率が高かった($p < 0.5$)が検出されなかったきのこ類を除き、他の分類間での顕著な差は認められないことを

解析して明らかにした。

国産農産物では、葉茎菜類、果実類、果菜類の順に重点的に検査・監視し、根菜類やキノコ類は重点的にする必要がないことを明確化した。

適用外使用農薬が国産農産物 16 検体から検出された。その検出量はきわめて微量で、その多くが acephate とその加水分解産物である methamidophos（国内で製造販売されたことがない）で、methamidophos の単独なものは認められなかった。

輸入農産物では、それぞれの分類間では有意差がなかったが、日持ちの良い果実類を最重点に、次いで、果菜類、葉茎菜類の順に重点的に検査・監視することが望ましいことを明らかにした。

輸入農産物では、acephate が検出されないで、methamidophos が検出されたものがあり、輸出国で methamidophos が使用されていたことが明らかにした。+

2 - 2 群馬県内で生産された出荷前農産物の残留農薬実態とその疫学的解析

群馬県では、生産県の責務として、農産物の出荷前の確認検査を盛り込んだ条例を全国に先駆けて制定し、農薬使用者への立入検査や検出農産物の回収命令等ができるようにした。それに伴い、出荷前県内産農産物の残留農薬検査を実施し、10 種類 16 事例の適用外使用農薬が検出された。使用者に対して、立入調査を実施し、農薬使用者の農薬購入記録や農薬使用記録等からその原因を追及し、全国に先駆けて疫学的解析を行った。このことは、食の安全・安心を確保する上から非常に有益であり、消費者と生産者の信頼を構築することに役立つものと考えられた。その主な解析結果。

出荷前農作物の検出値は低く、食品衛生法で定めた残留農薬基準値を超えるものは認められなかった。

農作物の分類別検出率について検討したところ、果実類が最も多く、次いで果菜類、葉茎菜類、根菜類の順で検出され、それぞれの分類間で有意差が認められた。そのことから、果実類を最重点に、果菜類、葉茎菜類の順に重点的に検査・監視し、根菜類は重点的にはする必要がないことを明らかにした。

ドリフトによると思われるものが 7 事例あり、近隣農家との栽培作物や農薬の種類、散布時期等の情報の共有、信頼関係の構築が必要であることを明らかにした。

土壌残留によるものが 4 事例あったが、土壌の殺菌が多く、連作や前栽培の作物の影響が大きいことから栽培計画の必要性を示唆した。

用具の洗浄不足と思われるものが 2 事例あったが、使用にあたっての基本中の基本であり、関係者への指導の徹底を図る必要があることを明らかにした。

ミニトマトの誤使用については、農薬農薬取締法の 2002 年の改正で、吸着等の面からトマトから 3 cm 以下をミニトマトとしてトマトから分離独立させたことを知らなかったことによるものであり、適正使用の普及を図る必要があることを明らかにした。

これらのことを踏まえて、消費者に安全な食品を提供するためには、生産農家への指導をする部局と食品衛生部局の連携が重要であることを明らかにした。

以上により、論文審査および最終審査の結果に基づき、審査委員会において慎重に審議した結果、本論文が博士（食品栄養学）の学位に十分値するものであると判断した。