

表3に国産及び輸入食肉中のダイオキシン類濃度を示した。

国産牛肉5試料のダイオキシン類濃度は平均0.465pgTEQ/g、範囲0.107～1.687pgTEQ/g、輸入牛肉6試料のダイオキシン類濃度は平均0.066pgTEQ/g、範囲0.001～0.252pgTEQ/gであり、平成10及び11年度と同様に輸入牛肉で国産牛肉より低くなっている。この傾向は農林水産省が発表した結果とよく一致している。なお牛肉全11試料のダイオキシン類濃度は平均0.247pgTEQ/g、範囲0.001～1.687pgTEQ/gである。

国産豚肉5試料のダイオキシン類濃度は平均0.009pgTEQ/g、範囲0.005～0.015pgTEQ/g、輸入豚肉6試料のダイオキシン類濃度は平均0.007pgTEQ/g、範囲<0.001～0.018pgTEQ/gであり、国産豚肉と輸入豚肉のダイオキシン類濃度レベルはほぼ近くなっている。なお豚肉全11試料のダイオキシン類濃度は平均0.008pgTEQ/g、範囲<0.001～0.018pgTEQ/gと低レベルになっている。

国産鶏肉5試料のダイオキシン類濃度は平均0.071pgTEQ/g、範囲<0.001～0.170pgTEQ/g、輸入鶏肉6試料のダイオキシン類濃度は平均0.060pgTEQ/g、範囲0.002～0.179pgTEQ/gであり、国産と輸入でほぼ近い値となっている。なお鶏肉全11試料のダイオキシン類濃度は平均0.065pgTEQ/g、範囲<0.001～0.179pgTEQ/gである。また牛タン3試料のダイオキシン類濃度は平均0.231pgTEQ/g、範囲0.193～0.293pgTEQ/gであり、牛肉の濃度と同じレベルになっている。豚腸3試料のダイオキシン類濃度は平均0.007pgTEQ/g、範囲0.002～0.014pgTEQ/gであり、やはり豚肉の濃度と類似のレベルとなっている。一方、鶏皮3試料のダイオキシン類濃度は平均0.378pgTEQ/g、範囲0.167～0.570pgTEQ/gであり、鶏皮の脂肪含量が高いため鶏肉のダイオキシン類濃度より約6倍多くなっている。

3. 食肉加工食品等中の濃度

表4に卵を含む食肉加工食品中のダイオキシン類濃度を示した。羊肉缶詰、鯨肉缶詰、ロースハム、チキンフランク、ソーセージ、ベーコン、コンビーフのダイオキシン類濃度は<0.001～0.086pgTEQ/gの範囲にある。

牛乳6試料中のダイオキシン類濃度は平均0.031pgTEQ/g、範囲0.015～0.042pgTEQ/gであり、一昨年度及び昨年度の平均値に近い値となっている。また農林水産省生産局畜産部の市販牛乳中の調査結果の平均値0.049pgTEQ/g、範囲0.006～0.110pgTEQ/gと比較しほぼ同程度である⁹⁾。

粉ミルクは脱脂されているため、ダイオキシン類濃度は0.1pgTEQ/g以下となっている。

国産チーズ4試料のダイオキシン類濃度は平均0.101pgTEQ/g、輸入チーズ濃度は平均

0.268pgTEQ/g であり、輸入品で明らかに高い。国産バター 4 試料のダイオキシン類濃度は平均 0.341pgTEQ/g で、輸入バターの濃度より低い。国産鶏卵 2 試料のダイオキシン類の平均濃度は 0.079pgTEQ/g であり、農林水産省の調査結果の 0.081pgTEQ/g とほぼ同程度である。

また国産ウズラ卵のダイオキシン類濃度は平均 0.192pgTEQ/g で、1 試料は鶏卵中濃度より高い。

4. 野菜・果実類等中の濃度

表 5 に国産野菜 8 種及び輸入野菜 4 種、茸類 1 種、国産果実 2 種及び一部輸入果実の 1 種、豆類 3 種、輸入米、輸入はちみつ、昆布佃煮についてダイオキシン類濃度の結果を示した。

野菜の輸入キャベツでは 2 試料中 1 試料から検出され、ダイオキシン類の平均濃度は 0.030pgTEQ/g である。きゅうりでは 3 試料中 2 試料から検出され、ダイオキシン類の平均濃度は 0.007pgTEQ/g である。長ネギでは 3 試料中 1 試料から検出され、ダイオキシン類の平均濃度は 0.017pgTEQ/g である。輸入カボチャ、金時豆、輸入米、さつまいも、椎茸、じゃがいも、トマト、にんじん、白菜、輸入ピーマン、輸入レタスの濃度はいずれも 0.001pgTEQ/g 未満である。

従来より野菜中で他の野菜よりダイオキシン類濃度の高いハウレン草 7 試料では平均 0.046pgTEQ/g、範囲 0.002 ~ 0.154pgTEQ/g であり、1 昨年度の調査結果(平均 0.213pgTEQ/g) 及び昨年度の調査結果(平均 0.073pgTEQ/g) より更に低くなっている。なお農林水産省は、平成 12 年度調査のハウレン草 10 試料中のダイオキシン類濃度が、平均 0.12pgTEQ/g であると報告している。

穀類については、小豆では 2 試料のいずれからも検出され、ダイオキシン類の平均濃度は 0.001pgTEQ/g であり、大豆では 3 試料中 2 試料から検出され、ダイオキシン類の平均濃度は 0.001pgTEQ/g である。

果実類については、りんごでは 4 試料中 1 試料から検出され、ダイオキシン類の平均濃度は 0.001pgTEQ/g である。みかん及びいちごの濃度は 0.001pgTEQ/g 未満である。

輸入蜂蜜では 3 試料中 2 試料から検出され、ダイオキシン類の平均濃度は 0.007pgTEQ/g である。

昆布佃煮では、ダイオキシン類濃度は 0.001pgTEQ/g 未満である。

結論

我が国に於ける食品を介した人へのダイオキシン類の暴露状況を把握するために、昨年に引き

続き個別食品の汚染状況を調査した。ダイオキシン類濃度は 2,3,7,8-TCDD に換算した値として示し、不検出（定量下限値未満の場合：ND）に、ゼロを当てはめた場合の数値で示した。なお不検出の場合に検出下限値の 1/2 で計算した数値を参考として（ ）内に示した。

調査食品では魚介類中濃度が最も高く、総ダイオキシン類が平均 1.593pgTEQ/g (1.600pgTEQ/g)、〈0.001 ~ 6.789pgTEQ/g (0.027 ~ 6.789pgTEQ/g) であり、魚加工品では平均 0.398pgTEQ/g (0.428pgTEQ/g)、〈0.001 ~ 1.394pgTEQ/g (0.027 ~ 1.395pgTEQ/g) である。肉類（牛肉、豚肉、鶏肉等）の濃度は平均 0.128pgTEQ/g (0.144pgTEQ/g)、〈0.001 ~ 1.687pgTEQ/g (0.027 ~ 1.688pgTEQ/g)、食肉加工食品では平均 0.022pgTEQ/g (0.045pgTEQ/g)、〈0.001 ~ 0.086pgTEQ/g (0.027 ~ 0.099pgTEQ/g) である。乳・乳製品（牛乳、粉乳、チーズ、バター等）中濃度は平均 0.174pgTEQ/g (0.184pgTEQ/g)、〈0.001 ~ 0.981pgTEQ/g (0.022 ~ 0.990pgTEQ/g) であり、卵類中濃度は平均 0.135pgTEQ/g (0.147pgTEQ/g)、0.035 ~ 0.288pgTEQ/g (0.054 ~ 0.294pgTEQ/g) である。野菜類等については、平均 0.012pgTEQ/g (0.044pgTEQ/g)、〈0.001 ~ 0.154pgTEQ/g (0.035 ~ 0.167pgTEQ/g)、茸類では平均 〈0.001pgTEQ/g (0.035pgTEQ/g)、穀類・豆類では平均 〈0.001pgTEQ/g (0.035pgTEQ/g)、〈0.001 ~ 0.001pgTEQ/g (0.035 ~ 0.036pgTEQ/g)、果実類では平均 〈0.001pgTEQ/g (0.035pgTEQ/g)、〈0.001 ~ 0.003pgTEQ/g (0.035 ~ 0.038pgTEQ/g)、その他加工品では 0.006pgTEQ/g (0.032pgTEQ/g)、〈0.001 ~ 0.019pgTEQ/g (0.027 ~ 0.044pgTEQ/g) である。

E. 研究発表

1. 論文発表

- 1) T.Tsutsumi, T.Iida, T.Hori, T.Yanagi, Y.Kono, H.Uchibe, M.Toyoda, Levels of PCDDs, PCDFs and Co-PCBs in fresh and cooked leafy vegetables in Japan, *Organohalogen Compounds*, 47, 296-299 (2000)
- 2) H.Hori, R.Nakagawa, K.Tobiishi, T.Iida, T.Tsutsumi, K.Sasaki, M.Toyoda, Effects of cooking on concentrations of polychlorinated dibenzo-p-dioxins and related compounds in green leafy vegetables 'Komatsuna', *J.Food Hyg.Soc.Japan*, 42, 339-342 (2001)

謝辞

本研究は、平成 12 年度厚生労働省厚生科学研究費補助金（生活安全総合研究事業）により行った。なお分析用食品試料の入手に御協力頂きました 12 研究機関、8 検疫所等に感謝致します。またデータの整理にご協力頂きました奈良原晶子氏に深謝致します。

参考文献

- 1) 食品中のダイオキシン類汚染実態調査研究（平成9年度）報告書
- 2) 食品中のダイオキシン類汚染実態調査研究（平成10年度）報告書
- 3) 環境省：ダイオキシン類全国一斉調査結果について - 平成11年度実施 - （平成11年8月）
- 4) 農林水産省生産局：平成11年度畜産物及び飼料等のダイオキシン類実態調査結果について（平成12年8月）
- 5) 環境省、農林水産省：平成11年度農用土壌及び農作物に係わるダイオキシン類実態調査結果について（平成12年9月）
- 6) 水産庁：平成11年度魚介類中のダイオキシン類の実態調査結果について（平成12年10月）

表1 平成12年度魚介中のダイオキシン類の2,3,7,8-TCDD当量濃度(pgTEQ/g)

食品名	2,3,7,8-TCDD当量濃度(pgTEQ/g)			食品名	2,3,7,8-TCDD当量濃度(pgTEQ/g)			
	PCDDs+PCDFs	Co-PCBs	合計		PCDDs+PCDFs	Co-PCBs	合計	
アジ	No.1	1.035	2.129	ハマチ	No.1	0.228	0.546	
	No.2	1.313	2.238		No.2	1.143	2.171	
	平均	1.174	2.184		平均	0.685	1.359	
アナゴ	No.1	1.797	4.992	ハモ	No.1	0.096	0.199	
	No.2	0.127	0.244		No.2	0.080	0.417	
	平均	0.962	2.618		平均	0.088	0.308	
アンコウ	No.1	1.713	1.586	フグ	No.1	0.023	0.022	
	No.2	0.034	0.047		No.2	0.033	0.024	
	No.3	0.012	0.022		平均	0.028	0.023	
	平均	0.586	0.552		平均	0.556	0.914	
カマス	No.1	0.429	0.567	ホッケ	No.1	0.556	0.914	
	No.2	0.491	1.044	マグロ(輸入)	No.1	<0.001	0.023	
	平均	0.460	0.806	メバル	No.1	0.656	4.427	
カレイ	No.1	0.004	0.035	No.2	1.076	0.913		
	No.2	0.220	0.588	No.3	0.167	1.753		
	平均	0.112	0.312	平均	0.633	2.364		
キチジ	No.1	1.617	2.444	イダコ	No.1	1.782	1.314	
	No.2	1.205	1.079		イカ	No.1	0.002	0.013
	No.3	1.844	2.533		No.2	0.188	0.116	
	平均	1.555	2.019		平均	0.095	0.065	
サケ(サーモン)	No.1	0.019	0.060	エビ (輸入)	No.1	0.257	<0.001	
	(輸入)	No.2	0.007		(")	No.2	0.029	0.001
	(")	No.3	0.967		平均	0.143	0.001	
	平均	0.331	0.675		平均	0.143	0.001	
サバ(マサバ)	No.1	1.226	2.252	タコ (輸入)	No.1	0.002	0.023	
	No.2	1.057	2.087	(")	No.2	<0.001	<0.001	
	No.3	1.225	2.616	平均	0.001	0.012		
	平均	1.169	2.318	平均	0.001	0.012		
サワラ	No.1	0.230	0.264	ズワイガニ	No.1	0.068	0.105	
	No.2	0.473	0.647	赤貝	No.1	0.008	0.001	
	No.3	0.296	0.498	カキ	No.1	0.185	0.202	
	平均	0.333	0.470	No.2	0.377	0.149		
タイ(マダイ)	No.1	0.443	0.679	No.3	0.742	0.359		
	No.2	0.954	0.962	(輸入)	No.4	0.127	0.087	
	平均	0.699	0.821	(")	No.5	0.150	0.064	
タチウオ	No.1	0.210	0.459	平均	0.316	0.172		
	No.2	1.904	4.428	平均	0.316	0.172		
	No.3	1.588	3.714	平均	0.316	0.172		
	平均	1.234	2.867	平均	0.316	0.172		

N.D.=0

表2 平成12年魚加工品中のダイオキシン類の2,3,7,8-TCDD当量濃度(pgTEQ/g)

食品名	2,3,7,8-TCDD当量濃度(pgTEQ/g)			食品名	2,3,7,8-TCDD当量濃度(pgTEQ/g)			
	PCDDs+PCDFs	Co-PCBs	合計		PCDDs+PCDFs	Co-PCBs	合計	
イクラ	No.1	0.151	0.300	魚肉ソーセージ	No.1	0.013	0.025	
	No.2	0.066	0.161		No.2	0.020	0.039	
	No.3	0.026	0.089		平均	0.017	0.032	
	平均	0.081	0.183		平均	0.017	0.032	
塩サケ(輸入)	No.1	0.130	0.260	さつま揚げ	No.1	0.001	0.001	
塩サバ	No.1	0.540	0.740		No.2	<0.001	0.001	
	(輸入)	No.2	0.222		平均	0.001	0.001	
平均	0.381	0.776	平均	0.001	0.001			
塩サンマ	No.1	0.059	0.248	サンマ蒲焼き缶詰	No.1	0.040	0.134	
	No.2	0.033	0.206		No.2	0.033	0.121	
	平均	0.046	0.227		平均	0.037	0.128	
シシャモ(輸入)	No.1	0.371	0.475	マグロ缶詰	No.1	<0.001	0.010	
	ホッケ干物	No.1	0.475		0.610	No.2	0.001	0.010
		No.2	0.507		0.748	平均	0.001	0.010
		No.3	0.229	0.627	平均	0.001	0.010	
平均	0.404	0.662	平均	0.001	0.010			
煮干し	No.1	0.547	0.847	ちくわ	No.1	<0.001	0.001	
	No.2	0.405	0.337		No.2	<0.001	0.014	
	平均	0.476	0.592		平均	<0.001	0.008	
イワシ蒲焼き缶詰	No.1	0.057	0.137	はんぺん	No.1	<0.001	0.006	
	No.2	0.438	0.563		No.2	<0.001	0.005	
	焼き蒲鉾	No.1	<0.001		<0.001	平均	<0.001	0.006
		No.2	0.029		0.035	平均	<0.001	0.006
平均	0.248	0.350	平均	0.015	0.018			

N.D.=0

表3 平成12年度食肉等中のダイオキシン類の
2,3,7,8-TCDD当量濃度(μgTEQ/g)

食品名		N.D.=0 2,3,7,8-TCDD当量濃度(μgTEQ/g)			
		PCDDs+PCDFs		合計	
		Co-PCBs			
牛肉	No.1	0.082	0.029	0.111	
	No.2	1.627	0.060	1.687	
	No.3	0.198	0.081	0.279	
	No.4	0.094	0.046	0.140	
	No.5	0.084	0.023	0.107	
	平均	0.417	0.048	0.465	
牛肉(輸入)	No.1	0.228	0.024	0.252	
	(")	No.2	0.039	0.037	0.076
	(")	No.3	<0.001	<0.001	0.001
	(")	No.4	0.005	0.021	0.026
	(")	No.5	0.006	<0.001	0.006
	(")	No.6	0.021	0.012	0.034
	平均	0.050	0.016	0.066	
豚肉	No.1	<0.001	0.004	0.005	
	No.2	0.001	0.015	0.015	
	No.3	0.004	0.008	0.012	
	No.4	0.001	0.006	0.007	
	No.5	<0.001	0.005	0.005	
	平均	0.001	0.008	0.009	
豚肉(輸入)	No.1	<0.001	<0.001	<0.001	
	(")	No.2	0.014	0.003	0.018
	(")	No.3	<0.001	0.001	0.001
	(")	No.4	<0.001	<0.001	<0.001
	(")	No.5	0.002	0.010	0.012
	(")	No.6	0.001	0.008	0.009
	平均	0.003	0.004	0.007	
鶏肉	No.1	<0.001	0.003	0.003	
	No.2	0.017	0.013	0.030	
	No.3	<0.001	<0.001	<0.001	
	No.4	0.022	0.147	0.170	
	No.5	0.044	0.110	0.154	
	平均	0.017	0.055	0.071	
鶏肉(輸入)	No.1	<0.001	0.002	0.002	
	(")	No.2	0.015	0.001	0.015
	(")	No.3	0.038	0.037	0.075
	(")	No.4	<0.001	<0.001	<0.001
	(")	No.5	0.090	<0.001	0.090
	(")	No.6	0.178	0.001	0.179
	平均	0.054	0.007	0.060	
牛タン	No.1	0.112	0.081	0.193	
	No.2	0.177	0.116	0.293	
	No.3	0.135	0.070	0.206	
	平均	0.141	0.089	0.231	
豚腸	No.1	0.001	0.004	0.005	
	No.2	0.011	0.003	0.014	
	No.3	<0.001	0.002	0.002	
	平均	0.004	0.003	0.007	
鶏皮	No.1	0.144	0.426	0.570	
	No.2	0.128	0.269	0.398	
	No.3	0.073	0.094	0.167	
	平均	0.115	0.263	0.378	

表4 平成12年度食肉加工品、乳・乳製品及び卵・卵製品中の
ダイオキシン類の2,3,7,8-TCDD当量濃度(μgTEQ/g)

食品名		N.D.=0 2,3,7,8-TCDD当量濃度(μgTEQ/g)			
		PCDDs+PCDFs		合計	
		Co-PCBs			
鯨肉缶詰	No.1	<0.001	0.056	0.056	
	No.2	<0.001	0.027	0.027	
	平均	<0.001	0.042	0.042	
マトン缶詰	No.1	<0.001	<0.001	<0.001	
	No.2	<0.001	<0.001	<0.001	
	平均	<0.001	<0.001	<0.001	
ロースハム	No.1	0.001	0.001	0.002	
	No.2	<0.001	0.001	0.002	
	平均	0.001	0.001	0.002	
チキンフランク	No.1	0.021	0.065	0.086	
	No.2	0.009	0.008	0.017	
ソーセージ	No.1	0.001	0.003	0.004	
	No.2	0.016	0.023	0.039	
ソーセージミート缶詰(輸入)	No.1	0.009	0.011	0.020	
	平均	0.001	0.009	0.010	
ベーコン	No.1	<0.001	<0.001	<0.001	
	平均	0.001	0.005	0.006	
コンビーフ(輸入)	No.1	0.011	0.031	0.042	
牛乳	No.1	0.025	0.016	0.041	
	No.2	0.025	0.001	0.025	
	No.3	0.020	0.011	0.030	
	No.4	0.009	0.006	0.015	
	No.5	0.010	0.024	0.034	
	No.6	0.033	0.009	0.042	
	平均	0.020	0.011	0.031	
粉ミルク	No.1	0.063	0.023	0.086	
	No.2	<0.001	<0.001	<0.001	
	No.3	0.001	<0.001	0.002	
	No.4	<0.001	<0.001	0.001	
	平均	0.016	0.006	0.022	
練乳(輸入)	No.1	0.044	0.036	0.079	
チーズ	No.1	0.157	0.037	0.194	
	No.2	0.038	0.023	0.061	
	No.3	0.033	0.037	0.070	
	No.4	0.045	0.034	0.079	
	平均	0.068	0.033	0.101	
チーズ(輸入)	No.1	0.110	0.157	0.266	
	(")	No.2	0.041	0.075	0.116
	(")	No.3	0.287	0.179	0.466
	(")	No.4	0.135	0.087	0.223
	平均	0.143	0.125	0.268	
バター	No.1	0.346	0.089	0.435	
	No.2	0.173	0.114	0.287	
	No.3	0.285	0.115	0.400	
	No.4	0.133	0.108	0.241	
	(輸入) 平均	0.342	0.639	0.981	
鶏卵	No.1	0.256	0.213	0.469	
	No.2	0.046	0.076	0.122	
	平均	0.008	0.028	0.035	
ウズラ卵	No.1	0.027	0.052	0.079	
	No.2	0.152	0.135	0.288	
	平均	0.041	0.054	0.096	

表5 平成12年度野菜、茸類及び果実等中のダイオキシンの2,3,7,8-TCDD当量濃度(µgTEQ/g)

					N.D.=0				
食品名	2,3,7,8-TCDD当量濃度(µgTEQ/g)				食品名	2,3,7,8-TCDD当量濃度(µgTEQ/g)			
	PCDDs+PCDFs	Co-PCBs	合計			PCDDs+PCDFs	Co-PCBs	合計	
小豆	No.1	0.001	<0.001	0.001	トマト	No.1	<0.001	<0.001	<0.001
	No.2	0.001	<0.001	0.001		No.2	<0.001	<0.001	<0.001
	平均	0.001	<0.001	0.001		No.3	<0.001	<0.001	<0.001
いちご	No.1	<0.001	<0.001	<0.001	平均	<0.001	<0.001	<0.001	
	No.2	<0.001	<0.001	<0.001	長ネギ	No.1	<0.001	<0.001	<0.001
	平均	<0.001	<0.001	<0.001		No.2	0.037	0.013	0.050
カボチャ(輸入) (")	No.1	<0.001	<0.001	<0.001		No.3	<0.001	<0.001	<0.001
	No.2	<0.001	<0.001	<0.001	平均	0.012	0.004	0.017	
	平均	<0.001	<0.001	<0.001	にんじん	No.1	<0.001	<0.001	<0.001
キャベツ(輸入) (")	No.1	<0.001	<0.001	<0.001		No.2	<0.001	<0.001	<0.001
	No.2	0.038	0.021	0.059		No.3	<0.001	<0.001	<0.001
	平均	0.019	0.011	0.030		平均	<0.001	<0.001	<0.001
きゅうり	No.1	<0.001	<0.001	<0.001	白菜	No.1	<0.001	<0.001	<0.001
	No.2	0.001	<0.001	0.002		No.2	<0.001	<0.001	<0.001
	No.3	0.020	<0.001	0.020		No.3	<0.001	<0.001	<0.001
	平均	0.007	<0.001	0.007		平均	<0.001	<0.001	<0.001
金時豆	No.1	<0.001	<0.001	<0.001	ピーマン(輸入) (")	No.1	<0.001	<0.001	<0.001
	No.2	<0.001	<0.001	<0.001		No.2	<0.001	<0.001	<0.001
	平均	<0.001	<0.001	<0.001		平均	<0.001	<0.001	<0.001
米 (輸入) (") (") (")	No.1	<0.001	<0.001	<0.001	ホウレン草	No.1	0.002	<0.001	0.002
	No.2	<0.001	<0.001	<0.001		No.2	0.039	<0.001	0.039
	No.3	<0.001	<0.001	<0.001		No.3	0.120	0.034	0.154
	No.4	<0.001	<0.001	<0.001		No.4	0.011	<0.001	0.011
	平均	<0.001	<0.001	<0.001		No.5	0.012	<0.001	0.012
さつまいも	No.1	<0.001	<0.001	<0.001		No.6	0.094	0.001	0.095
	No.2	<0.001	<0.001	<0.001		No.7	0.010	<0.001	0.010
	No.3	<0.001	<0.001	<0.001	平均	0.041	0.005	0.046	
	No.4	<0.001	<0.001	<0.001	レタス(輸入)	No.1	<0.001	<0.001	<0.001
	平均	<0.001	<0.001	<0.001	みかん	No.1	<0.001	<0.001	<0.001
椎茸	No.1	<0.001	<0.001	<0.001		No.2	<0.001	<0.001	<0.001
	No.2	<0.001	<0.001	<0.001		No.3	<0.001	<0.001	<0.001
	No.3	<0.001	<0.001	<0.001	平均	<0.001	<0.001	<0.001	
じゃがいも	No.1	<0.001	<0.001	<0.001	りんご	No.1	<0.001	<0.001	<0.001
	No.2	<0.001	<0.001	<0.001		No.2	0.003	0.001	0.003
	No.3	<0.001	<0.001	<0.001		No.3	<0.001	<0.001	<0.001
	No.4	<0.001	<0.001	<0.001		(輸入)	No.4	<0.001	<0.001
	平均	<0.001	<0.001	<0.001	平均	0.001	<0.001	0.001	
大豆	No.1	<0.001	<0.001	<0.001	蜂蜜(輸入)	No.1	<0.001	0.003	0.003
	No.2	0.001	<0.001	0.001	(")	No.2	<0.001	<0.001	<0.001
	No.3	0.001	<0.001	0.001	(")	No.3	0.018	0.001	0.019
	平均	0.001	<0.001	0.001	平均	0.006	0.001	0.007	
	昆布佃煮	No.1	<0.001	<0.001	<0.001	昆布佃煮	No.1	<0.001	<0.001

研究報告書

その3

汚染因子の推定

分担研究者 佐々木久美子

ダイオキシン類の食品経路総摂取量調査研究報告書（平成12年度）

主任研究者 豊田正武 国立医薬品食品衛生研究所 食品部長

その3：汚染因子の推定

分担研究者 佐々木久美子 国立医薬品食品衛生研究所

研究班構成

分担研究者：佐々木久美子 国立医薬品食品衛生研究所

協力研究者：堤 智昭、天倉吉章 国立医薬品食品衛生研究所

飯田隆雄、中川礼子、堀就英、飛石和大 福岡県保健環境研究所

内部博泰、中村宗知、柳俊彦、河野洋一 (財)日本食品分析センター

A. 研究目的

個別食品におけるダイオキシン類（PCDD/Fs及びCo-PCBs12種）の異性体組成を解析し、燃焼系排出ガス、農薬及びPCB製品に含まれるダイオキシン類異性体組成と比較検討を行い、食品における汚染因子を推定した。

B. 研究方法

1) ダイオキシン類の測定

個別食品におけるダイオキシン類測定は、本年度の報告（その2）に従った。なお、本研究ではダイオキシン類汚染因子の推定を行うため、2,3,7,8-位塩素置換体以外の各同族体の定量も行った。さらに、特定の汚染因子の解明に必要な異性体1,3,6,8-, 1,3,7,9-TCDDの定量も併せて行った。標準物質のないダイオキシン類異性体については、焼却灰抽出液のクロマトグラムを用いてRyanらが報告（1991）している異性体の溶出パターンより同定を行った。

2) 異性体組成解析とダイオキシン類汚染因子の推定

個別食品試料を、魚介類として4種（魚（加工品含む）149試料、甲殻類・軟体動物（加工品含む）31試料、貝13試料及び海草8試料）、食肉・乳製品類として4種（牛肉35試料、豚肉37試料、鶏肉・鶏卵45試料及び乳製品53試料）、野菜類として4種（果菜類14試料、穀物24試料、根菜類7試料及び葉菜類18試料）に分類し、各々のダイオキシン類異性体組成を解析した。各食品のダイオキシン類測定データは、本研究の既報の「個別食品中ダイオキシン汚染濃度等に関する調査研究」（平成10～11年度）及び本年度の個別食品の実態調査結果を使用した。なお、PCDD/Fsにお

ける2, 3, 7, 8位塩素置換体以外の各同族体の定量値は、今回はじめて分析担当機関から入手して用いた。従って、これら同族体の定量値が入手できなかった個別食品データは、本研究に含めていない。

異性体組成の解析は、PCDD/Fsについては各同族体の実測濃度における占有率を算出した。また、詳細な異性体解析のため、2, 3, 7, 8位塩素置換体である17種の異性体、及び1, 3, 6, 8-, 1, 3, 7, 9-TCDDsの占有率も併せて算出した。さらに、魚介類、食肉・乳製品類等のトータルダイエツトスタディにおいてCo-PCBs摂取への寄与が高い食品群については、Co-PCBs類の異性体組成の解析も併せて行った。Co-PCBs類の解析についてはノンオルト体及モノオルト体の12種について各Co-PCBsの実測濃度における占有率を算出した。

ダイオキシン類汚染因子の推定は、食品の異性体組成と、燃焼系排出ガス、農薬（CNP、PCP及び2, 4-D）及びPCB製品（カネクロール）に含まれるダイオキシン類の異性体組成を比較検討して行った。なお、農薬に不純物として含まれるダイオキシン類異性体組成については益永らの報告（2001）、PCB製品については高菅らの報告（1995）を引用した。

C. 研究結果及び考察

1. 魚介類（魚、甲殻・軟体動物、貝、海藻）中の異性体組成の解析と汚染因子の推定

図1-1に魚介類のPCDD/Fs各同族体の占有率、及び各Co-PCBsの占有率を示した。魚、甲殻・軟体動物及び貝では、PCDD/FsとCo-PCBsにおける占有率のパターンは類似していた。すなわち、PCDD/FsについてはTCDDsとTCDFsの占有率が高く、PCDD/Fs各同族体が少しずつ現れる傾向があった。さらに、TCDDs中では、1, 3, 6, 8-及び1, 3, 7, 9-TCDDの占有率が高く、これらの異性体により大部分が占められた。

図2には文献値より得られた農薬及びPCB製品に含まれるダイオキシン類の異性体組成を参考データとして示した。なお、排ガスの異性体組成については、詳細なデータが入手出来ず図2には含めなかったが、PCDD/Fsについては各同族体が全て現れることが知られている（Murayama et al., 2000）。異性体組成の解析結果から、魚、甲殻・軟体動物及び貝ではPCDD/Fs各同族体の汚染因子として燃焼系排ガス、1, 3, 6, 8-及び1, 3, 7, 9-TCDDの汚染因子として過去に使用された農薬であるCNPが疑われた。また、TCDFsの汚染因子としては、現在も使用されている農薬である2, 4-Dの影響が考えられたが、汚染指標異性体である2, 4, 6, 8-TCDF等の個別分析を行っていないため、推定は困難であった。なお、現在使用されている農薬については不純物として含まれるダイオキシン類含有量のチェックが進んでおり、その含有量は検出限界以下と考えられる。

一方、海草では他の魚介類と異性体組成が異なり、PCDD/FsにおいてはTCDDsとOCDDの占有率が高かった。海藻におけるPCDD/Fs汚染因子としてはCNP及び過去に使用された農薬であるPCP（OCDDの汚染源）が大きく影響していると考えられる。なお、海草のTCDDsにおいて、その他の異性体の割合が、他の魚介類と比較し高くなっているが、これは1,3,7,9-TCDDsの個別定量を行わず、その他の異性体に含めたためと考えられる。また、海草と他の魚介類の異性体パターンが異なった理由は不明であるが、代謝及び蓄積性の相違があると考えられる。

Co-PCBs異性体組成については、魚、貝及び甲殻・軟体動物で#118の占有率が高く約60%を示し、#105と併せると約80%の占有率を示した。これらの異性体組成は、カネクロール混合物（図2）と良く一致することから、おそらく過去に使用されたPCB製品が汚染因子に影響していると考えられる。燃焼系排ガスで占有率が高くなるとされている#169は（Sasaki et al., 2001）、これらの食品においてそれほど高い占有率は見られないため、Co-PCBs汚染に対して燃焼系は大きく影響していないと考えられる。また、農薬中に不純物として含まれるCo-PCBsについては、PCPのように異性体組成の近いものがみられるが、図3に示したように農薬中総ダイオキシン類（PCDD/Fs+Co-PCBs）に占めるCo-PCBsの占有率はきわめて小さい。一方、魚介類の総ダイオキシン類中のCo-PCBs占有率は大きく、農薬不純物由来の全体的なダイオキシン組成を反映していないことから、影響は小さいと考えられる。

海草においては他の魚介類と比べると、#77が若干、高い占有率を示したが、全体の傾向としてはカネクロール混合物に近い組成を示した。#169の占有率も低いことから、他の魚介類同様に、Co-PCBs汚染因子としてはPCB製品が主要であると考えられる。

東京湾の魚のダイオキシン類汚染調査（Sasaki et al., 2001）によると、それらのCo-PCBs汚染が過去に使用されたPCB製品に由来することが報告されている。今回の結果は、同様の傾向が魚介類全般に対し見られることを示唆している。

なお今回、魚試料において魚種毎の異性体組成は示していないが、魚種によっても異性体組成が多少異なる傾向があった。しかし、同一種内での測定値のばらつきや、さらには食物連鎖中の位置、代謝能力の差等の要因も考えられ、異性体組成の違いが汚染因子に基づくものであるか今後さらに解析が必要であると考えられる。

2. 食肉類及び乳製品類（牛肉、豚肉、鶏肉・鶏卵及び乳製品）中の異性体組成の解析と汚染因子の推定

図1 - 2に食肉類及び乳製品類中のPCDD/Fs各同族体の占有率、及び各Co-PCBsの占有率を示し

た。PCDD/Fsについては、牛肉、鶏肉・鶏卵及び乳製品で良く似た異性体割合を示し、OCDDの占有率が最も高く、PCDD/Fs各同族体が現れる傾向があった。また、TCDDsの占有率も高く、1, 3, 6, 8-及び1, 3, 7, 9-TCDDでそのほとんどを占めていた。汚染因子としては燃焼系排ガス、CNP及びPCP等が主要であると考えられる。豚肉においても同様な傾向があったが、OCDDの割合がその他の肉・乳製品類に比べて高かった。従って、その他の食肉・乳製品類よりもPCPが汚染因子として影響していることが考えられる。

乳製品のダイオキシン類汚染については、牛乳のPCDD/Fs汚染が大気に由来し、飼料を介して牛乳を汚染する可能性が報告されている (Nakano et al., 2000)。今回の乳製品の異性体組成でも、燃焼系に類似している割合が高いことから、その可能性が示唆された。

Co-PCBs異性体組成については、全ての肉・乳製品類で同様な異性体組成を示し、#118が最も占有率の高い異性体であった。カネクロール混合物の異性体組成 (図2) に類似していることから、汚染因子としてはPCB製品が主要であると推察された。また、これら食品中の#118の占有率がカネクロール混合物よりも多少高くなっているのは、検出下限以下の異性体が多く見られたため相対的に#118の割合が大きくなっているものと考えられる。燃焼系排ガスの影響については#169の占有率が低いことから影響は少ないと考えられる。また、農薬不純物の影響についても、図3に示すように、これら食品の総ダイオキシン量中のCo-PCBs占有率が、農薬と大幅に異なることから影響は小さいものと考えられる。

3. 穀物・野菜類 (穀物、果菜類、根菜類及び葉菜類) 中の異性体組成の解析と汚染因子の推定

図1-3に穀物・野菜類のPCDD/Fs各同族体の占有率を示した。なお、ここではCNPの汚染指標異性体の一つである1, 3, 7, 9-TCDDを個別定量せず、その他の異性体に含めている。異性体組成のパターンをみると、全ての食品においてTCDDsの占有率が最も高く、CNPが汚染因子として大きく影響している可能性が高かった。また、根菜類においてはOCDDの割合も高いことから、PCPの影響も強く受けていると考えられる。特に、穀物、果菜類及び根菜類では、TCDDsとOCDDを併せた占有率が90%以上あり、過去に使用された農薬中に含まれるダイオキシン類が主要となっていた。これら農薬中不純物に由来するダイオキシン汚染は、土壌における農薬汚染を反映しているものと考えられる。

また、葉菜類においては、PCDD/Fs各同族体がみられることから、汚染因子として燃焼系排出ガスの影響も大きいと考えられる。その他の穀物・野菜類については、PCDD/Fs各同族体の占有率は極めて小さく、燃焼系排出ガスの影響はほとんどないと考えられる。ハウレン草などの葉菜

類が燃焼系排出ガスの影響を受けやすいことは我々が既に報告 (Tsutsumi et al., 2001) しており、その結果と一致するものとなった。

E. 結論

魚介類、食肉・乳製品及び葉菜類のPCDD/Fs汚染については、燃焼系排ガス、過去に大量に使用された農薬 (PCP、CNP) 由来の不純物が汚染因子である可能性が示唆された。葉菜類以外の野菜類及び穀物ではPCDD/Fs汚染における燃焼系排ガスの影響は小さく、農薬 (PCP、CNP) 由来の不純物が主要な汚染因子と疑われた。魚介類、食肉・乳製品のCo-PCBs汚染については、過去に使用されたPCB製品 (カネクロール等) が主要な汚染因子と推定された。

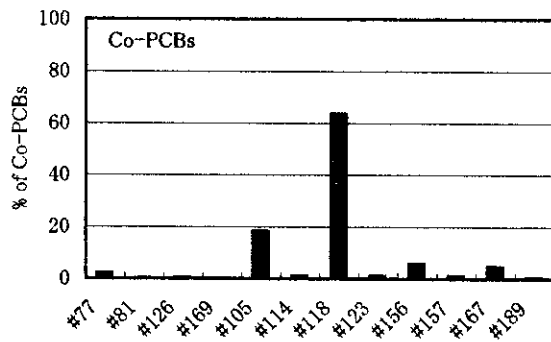
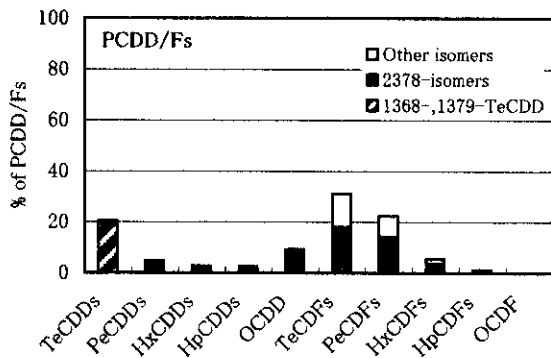
食品中ダイオキシン類低減化には、燃焼系排出ガスにおけるダイオキシン類発生の抑制と共に、保管中PCB製品の環境中への放出を防いでいく必要があると考えられる。また、各食品における詳細なダイオキシン汚染経路の解明も必要になると考えられる。

参考文献

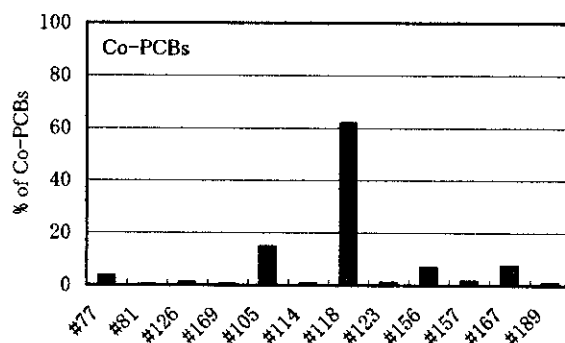
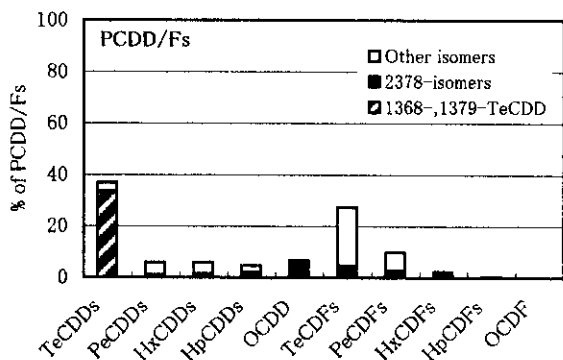
- 1) 個別食品中ダイオキシン濃度及び調理加工の影響(平成10年度)報告書
- 2) 野菜、魚介類等個別食品中のダイオキシン濃度等に関する調査研究(平成11年度)報告書
- 3) Masunaga, S., Takumi, T., Nakabayashi, J., 2001. Dioxin and dioxin-like PCB impurities in some Japanese agrochemical formulations. *Chemosphere* 44, 873-885.
- 4) 村山 等、茨木 剛、種岡 裕、高井 透、谷川 義夫, 2000. 環境試料中ダイオキシン類の異性体成分比の特徴 (I) -大気環境-, 第9回環境化学討論会講演要旨集, 268-269.
- 5) 中野 益男、劉 愛民、高田 真樹子、高菅 卓三, 2000. 牛乳中のダイオキシン類の汚染源について、第9回環境化学討論会講演要旨集, 444-445.
- 6) Ryan, J.J., Conacher, H.B.S., Panopio, L.G., Lau, B.P.-Y., Hardy, J.A., 1991. Gas chromatographic separations of all 136 tetra- to octa- polychlorinated dibenzo-*p*-dioxins and polychlorinated dibenzofurans on nine different stationary phases. *J. Chromatography*, 541, 131-183.
- 7) 佐々木 裕子、飯村 文成、津久井 公昭、吉岡 秀俊、東野 和雄、安藤 晴夫、柏木 宣久, 2001. 東京湾におけるダイオキシン類汚染(2) -組成検討-, 第10回環境化学討論会講演要旨集, 272-273.
- 8) 高菅 卓三、井上 毅、大井 悦雅, 1995. 各種クリーンアップ法とHRGC/HRMSを用いたポリ塩化ビフェニル(PCBs)の全異性体詳細分析方法. *環境化学*, 5, 647-675.

9) Tsutsumi, T., Iida, T., Hori, T., Nakagawa, R., Tobiishi, K., Yanagi, T., Kono, Y., Uchibe, H., Matsuda, R., Sasaki, K., Toyoda, T., Recent survey and effects of cooking processes on levels of PCDDs, PCDFs and Co-PCBs in leafy vegetables in JAPAN. Chemosphere (in press)

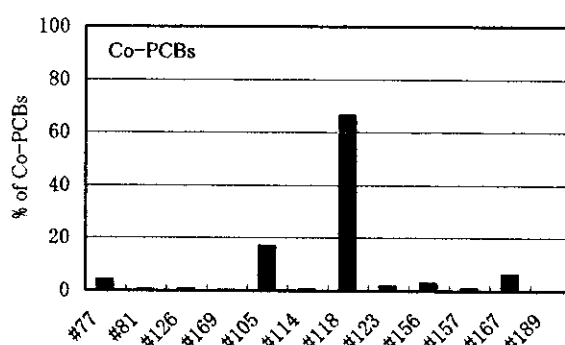
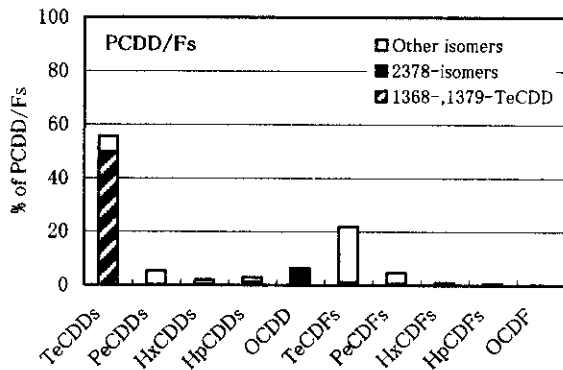
魚 (加工品含む)



甲殻・軟体動物 (加工品含む)



貝



海藻

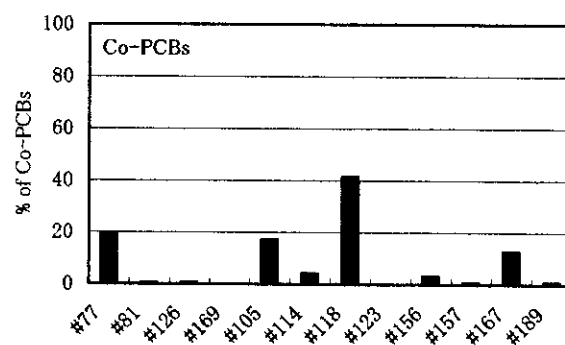
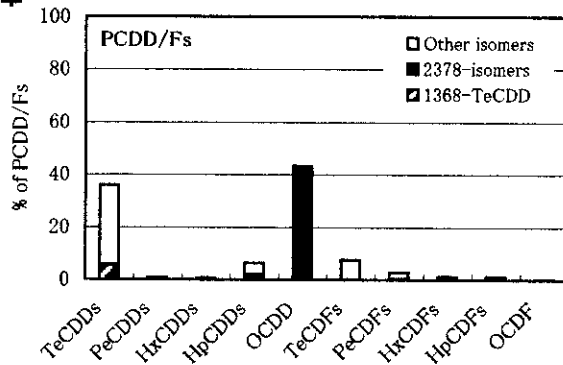
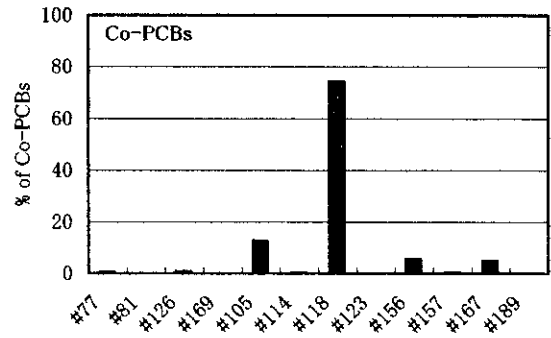
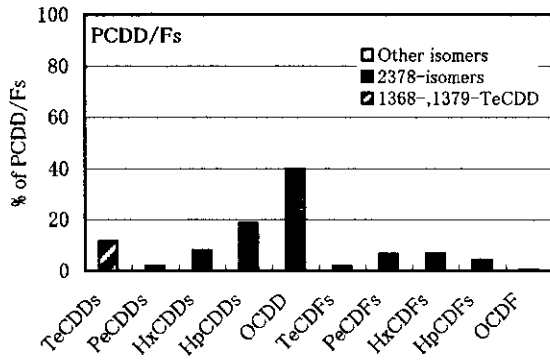
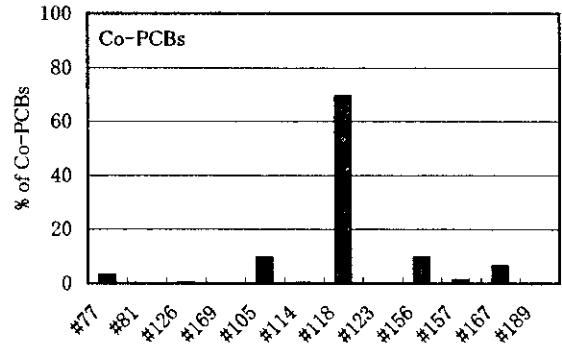
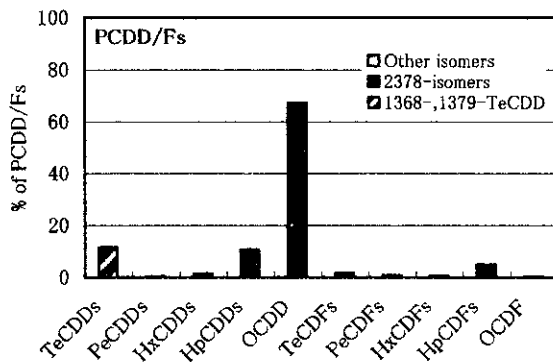


図1-1 食品におけるダイオキシン類異性体組成 (魚介類)

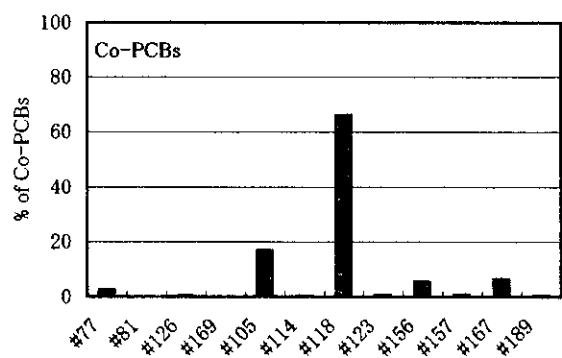
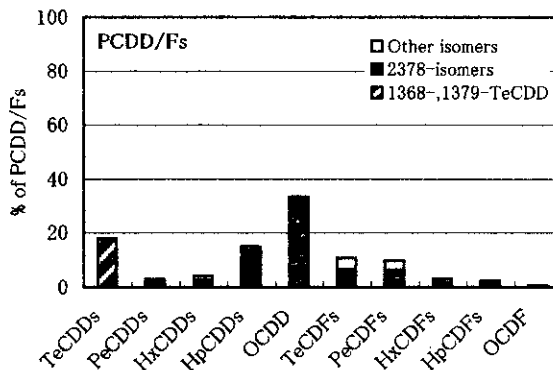
牛肉



豚肉



鶏肉・鶏卵



乳製品

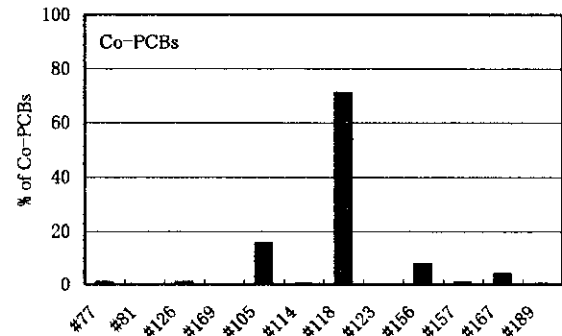
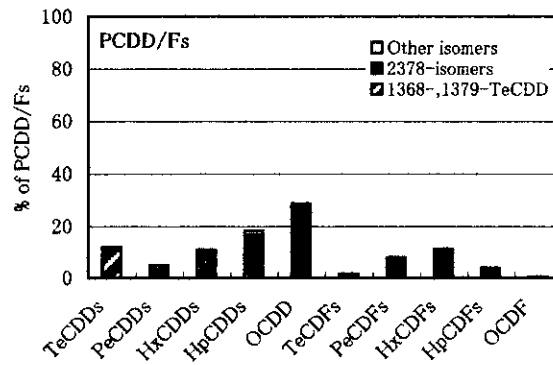
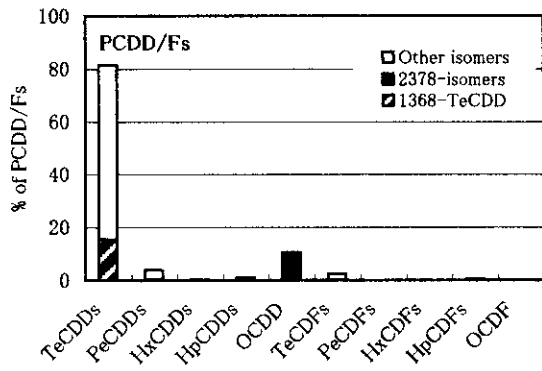
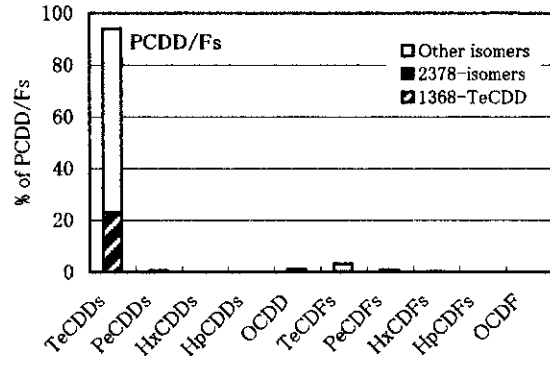


図1-2 食品におけるダイオキシン類異性体組成 (食肉・乳製品類)

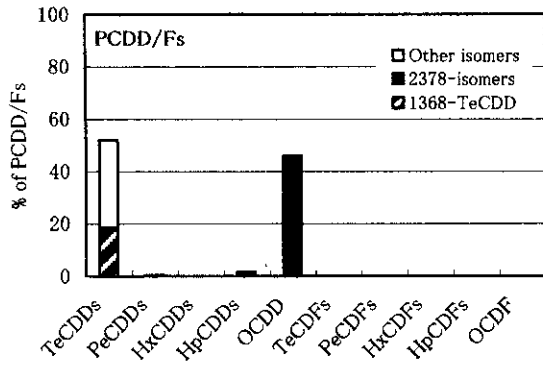
穀物



果菜類



根菜類



葉菜類

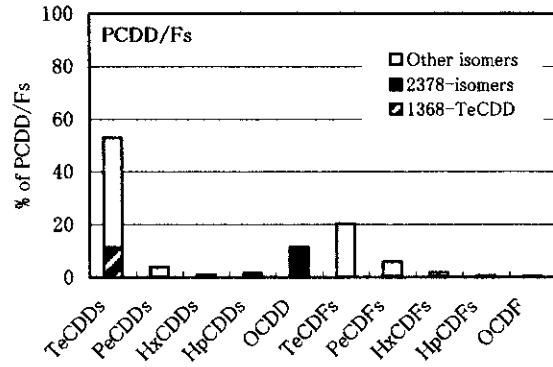
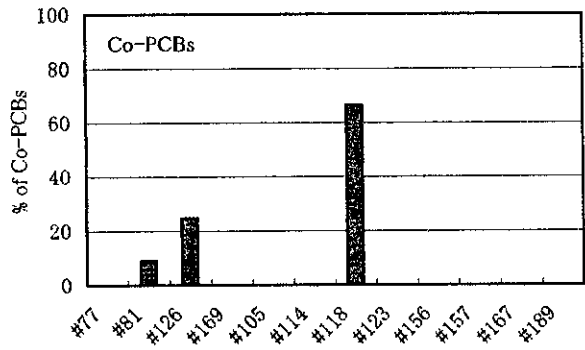
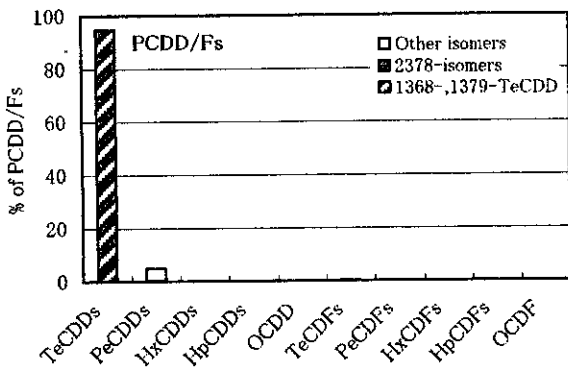
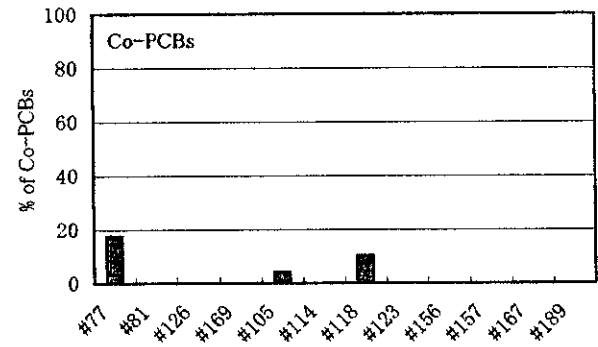
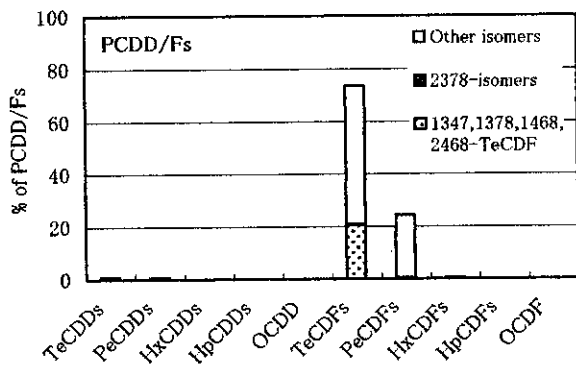


図1-3 食品におけるダイオキシン類異性体組成 (穀物・野菜類)

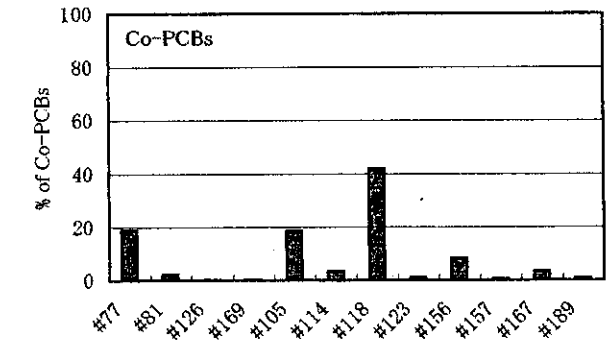
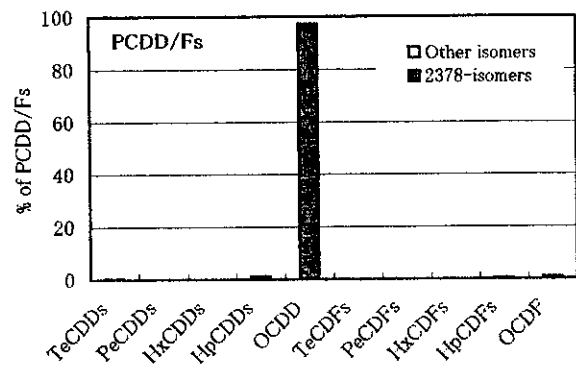
CNP



2,4-D



PCP



カネクロール混合物

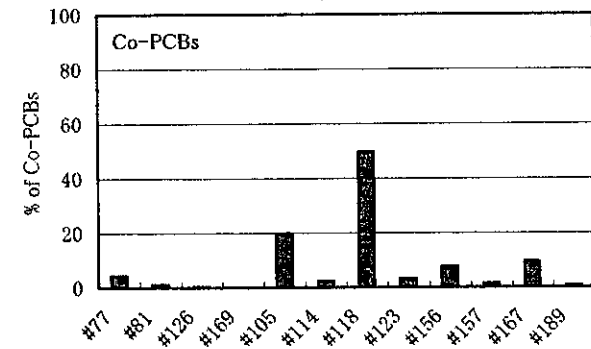


図2 農薬、カネクロール混合物におけるダイオキシン異性体組成^{3,8)}

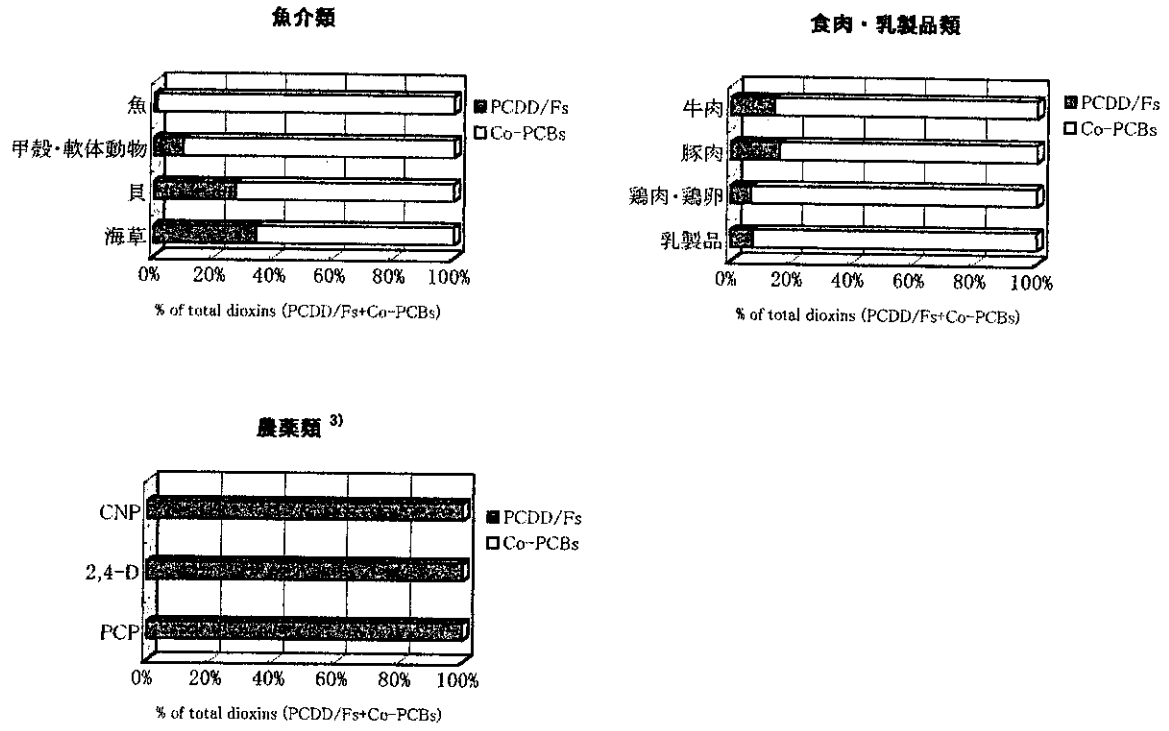


図3 食品、農薬におけるダイオキシン類の存在比