数種野菜におけるダイオキシン類の土壌からの吸収・移行について

東尾久雄^{1*}・一法師克成²・伊藤秀和³・東 敬子³

¹ 茨城大学農学部 300-0393 稲敷郡阿見町中央

² 農業・食品産業技術総合研究機構本部 305-8517 つくば市観音台

³ 農業・食品産業技術総合研究機構野菜茶業研究所 514-2392 津市安濃町草生

Absorption and Transfer of Dioxins from Soil in Several Vegetables

Hisao Higashio^{1*}, Katsunari Ippoushi², Hidekazu Ito³ and Keiko Azuma³

¹ Faculty of Agriculture, Ibaraki University, Ami, Inashiki, Ibaraki 300-0393

² National Agriculture and Food Research Organization, Tsukuba, Ibaraki 305-8517

³ National Institute of Vegetable and Tea Science, Tsu, Mie 514-2392

Abstract

We examined the absorption and transfer of dioxins from the soil to cucumber, zucchini, carrot, and daikon (Japanese radish). Dioxins were detected in all the vegetables examined, although the amounts detected in the roots and shoots were extremely small. The amounts of dioxins absorbed by roots from the soil and transferred to shoots were relatively large in zucchini. Dioxins were also detected in the transpiration fluid from zucchini.

Key Words : carrot, cucumber, daikon, transpiration, zucchini

キーワード : ダイコン, 蒸散, キュウリ, ニンジン, ブッキーニ

緒 言

近年, ゴミ焼却時に発生するダイオキシン類による農産物への汚染が社会問題化した. このため, 汚染土壌で栽培された時の農産物におけるダイオキシン類の挙動を明らかにすることが急務となり, わが国における主要な農産物を対象に土壌からのダイオキシンの作物体への吸収・移行について多くの調査研究が行われた. しかし, 環境中のダイオキシン類の濃度は一般に土壌 > 大気 > 水の順であり, 農産物に土壌が付着していると土壌中のダイオキシン類を計測することになることから, 農産物に存在するダイオキシン類の濃度が見かけ上高くなることがある (殷, 2003). また, これまでの調査研究を通じて, ダイオキシン類は水に難溶性であり, 多くの作物において土壌からのダイオキシン類の吸収が極めて少なく, 食材としての安全性に問題のないことが明らかにされている (井上ら, 2002; 草ら, 2007; 佐藤ら, 2006; Schroll・Scheunert, 1993; 田村, 2004). しかし, 野菜の中にはウリ科作物のように, 根からのダイオキシン類の吸収・移行の強いことが示唆されている作物もある (Hülster ら, 1994).

そこで, 著者らは塩化ビニルフィルムを燃焼させて発生

するダイオキシン類を人為的に付着させた土壌を使い, 土壌からのダイオキシン類の飛散による影響を抑制し, かつ閉鎖環境の人工気象環境下でキュウリ, ブッキーニ, ニンジンおよびダイコンを栽培し, 土壌からのダイオキシン類の吸収・移行について調査・解析を行った. また, 土壌からの吸収・移行が指摘されているブッキーニを対象に, 蒸散作用とダイオキシン類の吸収・移行との関係を検討した.

なお, 本研究は農林水産省プロジェクト研究「農林水産業における内分泌かく乱物質の動態と作用機構に関する総合研究」(1999～2002年度)として, 当時の農業環境技術研究所が中核機関となり, 農林水産省傘下の各試験研究機関が対象作物を分担する形で取り組んだ成果の一部である.

材料および方法

土壌から作物へのダイオキシン類の移行・蓄積特性を解析するため, 汚染土壌 (1,595 pg/乾土 g) を調製した. すなわち, ステンレスふるい (径 200 mm, 深さ 45 mm, 目開き 1 mm) に粒径 1～2 mm のクレハ園芸培土 (クレハ) を入れ, ドラフトの中で農業用ビニルとして広く利用されている塩素化合物の塩化ビニルフィルム (厚さ 0.1 mm, 三菱化学 MKV) を燃焼させ, 培養土の表面が変色するまで攪拌しながら直火加熱して作出した. 次に, 処理で得られた培養土を十分に攪拌した後, 供試土壌量を確保するため, 無処理のクレハ園芸培土 4 に対して処理培養土 1 の比率で

混合して増量調製した（以下、「調製培養土」と呼称する）。そして、この調製培養土 10 L を 1/2,000 a ワグネルポットに詰め、ダイコン（‘耐病総太り’）、ニンジン（‘向陽二号’）、キュウリ（‘シャープ 1’）、ズッキーニ（‘ダイナ’）を栽培した。なお、対照土壌として、無処理のクレハ園芸培土を使用した（以下、「無処理培養土」と呼称する）。各作物とも、試験に供したワグネルポットは一処理あたり 1 ～ 2 個で、供試株数は 1 ～ 6 株、各試験は反復を設けなかった。

このワグネルポットを、外部環境から隔離する 2 台の人工気象室（LIB-301H, IWAKI）内に静置した。その時の設定気象環境条件は 12 h 日長、昼温 25°C、夜温 20°C、CO₂ 濃度 1,000 ppm、照度 20,000 lx であった。また、土壌からのダイオキシン類の飛散・付着の影響を避けるために灌水を底面吸水とし、さらに土壌表面からの舞い上がりの影響を抑えるため、ポットの土壌表面を厚さ 0.1 mm の塩化ビニルフィルムで被覆した。播種後 62 ～ 73 日の間に作物ご

とにそれぞれ一斉収穫し、作物体を茎葉、果実、主根（可食部、以下「根」と呼称）の各部位別に解体し、ダイオキシン類分析用試料を調製した。なお、空中の飛散物による付着あるいは土壌付着が考えられる果実については、表皮を 1 ～ 2 mm 程度薄く剥皮した試料を分析に供した。また、土壌は暗所で一定重量となるまで風乾してから、ダイオキシン類の分析に供した。蒸散流による作物体内の移動を調べる試験においては、ポット栽培したズッキーニの地上部のみを厚さ 0.03 mm の白色ポリエチレン袋で覆い、数時間日光に当て、袋内面に結露した蒸散液を下垂した白色ポリエチレン袋先端部でトラップし、試験溶液を得た。

ダイオキシン類の分析は、すべて（財）日本食品分析センターに委託した。なお、分析試料は処理区ごとに混合し、いずれも一点分析で行った。その時のダイオキシン類の検出限界は、第 1 表に示す通りである。

第 1 表 各種試料におけるダイオキシン類の検出限界

	作物 * (pg • g ⁻¹ wet wt.)	水 * (pg • g ⁻¹)	土壌 ** (pg • g ⁻¹ dry wt.)
ダイオキシン			
2,3,7,8-TeCDD	0.003	0.002	0.07
1,3,6,8-TeCDD	0.006	0.004	0.07
1,3,7,9-TeCDD	0.003	0.004	0.07
1,2,3,7,8-PeCDD	0.002	0.002	0.07
1,2,3,4,7,8-HxCDD	0.006	0.004	0.1
1,2,3,6,7,8-HxCDD	0.007	0.005	0.1
1,2,3,7,8,9-HxCDD	0.007	0.004	0.1
1,2,3,4,6,7,8-HxCDD	0.007	0.004	0.1
OCDD	0.02	0.02	0.3
ジベンゾフラン			
2,3,7,8-TeCDF	0.003	0.002	0.07
1,2,3,7,8-PeCDF	0.003	0.002	0.07
2,3,4,7,8-PeCDF	0.004	0.002	0.07
1,2,4,7,8-HxCDF	0.007	0.004	0.1
1,2,3,6,7,8-HxCDF	0.007	0.004	0.1
2,3,4,6,7,8-HxCDF	0.007	0.004	0.1
1,2,3,4,6,7,8-HpCDF	0.005	0.004	0.1
1,2,3,4,7,8,9-HpCDF	0.007	0.013	0.1
OCDF	0.02	0.01	0.3
コプラナー PCB			
3,4,4',5'-TeCB	0.008	0.004	0.1
3,3',4,4'-TeCB	0.008	0.005	0.1
3,3',4,4',5'-PeCB	0.007	0.004	0.1
3,3',4,4',5,5'-HxCB	0.008	0.004	0.1
2',3,,4,4',5'-PeCB	0.1	0	0.1
2,3,,4,4',-PeCB	0.1	0	0.1
2,3,3',4,4'-PeCB	0.1	0	0.1
2,3,4,4',5'-PeCB	0.1	0	0.1
2,3,4,4',5,5'-HxCB	0.1	0	0.1
2,3,3',4,4',5'-HxCB	0.1	0	0.1
2,3,3',4,4',5'-HxCB	0.1	0	0.1
2,3,3',4,4',5,5'-HpCB	0.1	0	0.1

表中の*は供試した作物体および水溶液における平均検出下限濃度、**は供試した混合培養土における検出下限濃度をそれぞれ示す

結 果

1. 調製培養土のダイオキシン類濃度

第1図は、無処理培養土および調製培養土に含まれていたダイオキシン類濃度の測定結果である。無処理培養土にも、ダイオキシンの一種である OCDD が比較的高い濃度で含まれ、その他に濃度は低いものの、TeCDD および微量のコプラナーPCB 化合物群が含まれていた。一方、農業用ビニルとして広く利用されている塩素化合物の塩化ビニルフィルムを燃焼させると、発生したダイオキシン類が培養土粒子に付着し、OCDD を除くダイオキシン、ジベンゾフランおよびコプラナーPCB 化合物群の各異性体化合物の濃度が高くなった。また、付着したダイオキシン組成を見ると、分子内の塩素数との関係が認められ、塩素数の少ないダイオキシン化合物群が多く付着する異性体プロファイルを示した。一方、ジベンゾフランおよびコプラナーPCB 化合物群においては、一定の傾向は見られなかった。

2. 野菜の部位別ダイオキシン類濃度

第2図、第3図、第4図および第5図は、それぞれダイコン、ニンジン、キュウリ、ズッキーニの部位別ダイオキシン類濃度を分析した結果である。

無処理培養土で栽培した場合、いずれの作物においても、作物体中に検出されたダイオキシン類濃度は極めて低かった。また、一般に根（剥皮）や果実よりも茎葉で高かった。一方、化合物群別では、ダイオキシンおよびジベンゾフランに比べ、コプラナー化合物群が多い傾向にあった。

次に、調製培養土の場合を見ると、コプラナーPCB の化合物群では、作物間および作物部位で一定の傾向が見られなかった。しかし、ダイオキシンとジベンゾフランの化合物群は、剥皮したダイコンおよびニンジンの根、キュウリの果実においても微量ながら検出された。特に、ズッキーニの茎葉および果実においては、ダイオキシンおよびジベンゾフランとも、塩素数の少ない異性体化合物ほど明らかに高くなる傾向がみられた。

第1図 無処理培養土および調製培養土に含まれるダイオキシン類濃度

第2図 ダイコン茎葉および根（剥皮）中のダイオキシン類濃度

第3図 ニンジン茎葉および根(剥皮)中のダイオキシン類濃度

第4図 キュウリ茎葉および果実中のダイオキシン類濃度

3. ズッキーニのダイオキシン類の吸収・移行と蒸散との関係について

試験に供した作物の中で、ダイオキシン類濃度が比較的高く検出されたズッキーニを使って、作物体中で検出され

たダイオキシン類が根により土壌から吸収されたものに由来することを明らかにするため、蒸散液に含まれるダイオキシン類濃度を分析した。第6図はその結果である。1,3,6,8-TeCDD および 1,3,7,9-TeCDD については、濃度が大きく低

第5図 ブッキーニ茎葉および果実中のダイオキシン類濃度

第6図 灌水用水およびブッキーニの蒸散液中のダイオキシン類濃度

下しているが調製培養土に含まれる個々の濃度(第1図)に比例して、ブッキーニ蒸散液(第6図)にもその存在が明らかに認められた。しかし、OCDDは調製培養土に高濃度で含まれたが、蒸散液にはほとんど存在しなかった。

考 察

ダイオキシン類は、強い発がん作用および催奇形成などを有する有害化合物とされ、ダイオキシン、ジベンゾフランおよびコプラナーPCBの三種類の化合物群から構成されている。また、環境中に存在するダイオキシン類は、主としてゴミ焼却および農薬製造時の副産物に由来していると考えられている。これまでの研究を通じて明らかにされている諸点として、股(2003)が取りまとめているように、環境中のダイオキシン類濃度は一般的に土壌 > 大気 > 水の順であり、農産物に土壌が大量に付着していると土壌中

のダイオキシン類の影響を受け、農作物に存在するダイオキシン類の濃度が見かけ上高くなることが明らかにされている。このため、本試験においては、閉鎖空間である人工気象室で作物を栽培し、かつ土壌からの飛散・付着の影響を避けるために灌水を底面給水とし、土壌表面は透明ビニルで被覆した。また、作物体で検出されたダイオキシン類が土壌由来であることを明らかにするため、市販の園芸培土を購入し、塩化ビニルを燃焼させて人為的に土壌粒子にダイオキシン類を付着させて調製した土壌を使用することとした。

塩化ビニルは、低温条件において燃焼した場合にはダイオキシン類が発生する。今回の試験において、供試した調製培養土のダイオキシン類の測定結果から、ダイオキシン、ジベンゾフランおよびコプラナーPCBの3種の化合物群の土壌への付着が認められた。特にダイオキシンにおいては、

無処理培養土と調製培養土との間でOCDD濃度に大きな相違がみられなかったが、塩素数の少ない化合物で明らかに高い濃度で付着する傾向が認められた。このため、塩素数の少ない異性体のダイオキシンに注目すれば、サンプリング誤差の影響を考慮せずとも調製培養土から供試作物への移行を評価できるものと考えられた。なお、調製培養土中で最も高濃度で検出されたダイオキシン類は、ダイオキシンの一種であるものの毒性が極めて低いOCDDであった。ただし、これは無処理の培養土においても検出されていることから、塩化ビニル燃焼に由来するものではないと考えられた。

Schroll・Scheunert (1993) は、 ^{14}C 化合物 (OCDD) を使った精密な試験結果から、根から葉へ、あるいは葉から根への移行が起こっていないこと、汚染土壌では飛散した土壌の付着で葉が汚染されることを明らかにしている。一方、殷 (2003) はニンジンやトンネルマルチ栽培すると、ダイオキシン類の異性体プロファイルは変わらず、茎葉部のダイオキシン類濃度が露地栽培、マルチ栽培、トンネル栽培の順に低下することから、茎葉部で検出されるダイオキシン類は主に空中に飛散した土壌粒子の付着によるものであると推定した。また、根部のダイオキシン類濃度は剥皮すると極めて低いレベルとなることから、土壌から作物体へ吸収・移行する量は極めて少ないと結論づけている。同様に、佐藤ら (2006) もニンジンおよびダイコンの根について、剥皮することでダイオキシン類濃度が低下することから、土壌から作物体へ吸収・移行する量は極めて少ないと判断している。著者らの結果もほぼ類似した結果となった。すなわち、ダイコンおよびニンジンの茎葉では、土壌の飛散を防ぐためにマルチをすると、ダイオキシン類濃度は対照と変わらなくなるか、コプラナーPCB化合物群においては、調製培養土でむしろ減少する傾向が見られた。しかし、いずれの作物においても、剥皮した根部のダイオキシン類濃度をみると、調製培養土で栽培されると多くのダイオキシン類、特に塩素数の少ないCDDが高くなっており、土壌からの吸収・移行量は極めて低いレベルにあるが、明らかに吸収・移行が起こっていると考えられた。一方、キュウリを調製培養土で栽培すると、茎葉部でダイオキシン類濃度が高くなる傾向が見られた。果実においてはダイオキシン類濃度が低くなるものの、剥皮果実においても微量ながら塩素数の少ないダイオキシンが検出され、土壌から吸収・移行していることが推定された。なお、無処理培養土で、一部のコプラナーPCB化合物群がキュウリ果実において高い濃度で検出されたが、その原因は不明である。Hülsterら (1994) は、ウリ科作物におけるダイオキシンおよびベンゾフラン化合物群の土壌から植物体への移行について汚染土壌を使って解析し、キュウリと異なり、ズッキーニおよびカボチャでは土壌中のこれら化合物群が作物根により吸収され、地上部に移行することを報告している。本試験においても、ズッキーニを調製培養土で栽培すると、

茎葉および果実のいずれの部位においてもダイオキシン類濃度が高くなり、特に、塩素数の少ないダイオキシンが明らかに高い濃度で検出された。また、検出濃度は低いが、同様な分布はダイコンの根、ニンジン茎葉および根、キュウリの茎葉、果実でも観察された。ダイオキシン類は水への溶解性が極めて低く、親油性を示すオクタノール/水分配係数は、塩素数が増加すると数値が大きくなる (上路, 2000)。このことは、塩素数が増加すると水に溶け難いことを示す。本試験の結果は、疎水性の高いダイオキシンほど蓄積が起これないとする乾ら (2008) の試験結果とも一致する。しかし、乾ら (2007) は、ダイオキシン類の中ではコプラナーPCBがダイオキシンおよびジベンゾフランよりも蓄積しやすいとしているが、本試験においては、ジベンゾフランの検出濃度は高くなく、コプラナーPCBは必ずしもダイオキシンよりも高い濃度で検出されていない。ダイオキシン類の吸収・移行にはそれらの化合物に含まれる塩素数、いわゆる水への溶解度が大きく影響すると思われるため、異性体を個々に解析することは適切かつ必要である。なぜズッキーニがダイオキシン類を多く吸収するのか、また、その吸収機構については現在においても解明されていないが、興味深い現象である。佐藤ら (2006) は、吸収され易いダイオキシン類化合物種がニンジンやダイコン類とキュウリやカボチャなどのウリ科作物で異なることから、作物の科間で異なる吸収機構が働いていると推察している。しかしながら、本研究においては、そのような明瞭な関係を見いだせなかった。佐藤ら (2006) は、供試土壌のダイオキシン類の異性体組成を明らかにしていないが、この試験結果の相違は、試験土壌に含まれるダイオキシン類異性体組成の相違を反映していると思われる。

次に、著者らは土壌からの吸収・移行が認められたズッキーニを使って、その吸収・移行に作物体の蒸散作用が関わっていると考え、積極的に蒸散作用をさせた葉より排泄された蒸散液を採取し、分析を行った。その結果、調製培養土で栽培したズッキーニの採取蒸散液中に、高い濃度のダイオキシン類が検出された。中でも、塩素数の少ないダイオキシンおよび一部のコプラナーPCB濃度が高かった。しかし、調製培養土に含まれるジベンゾフラン化合物群は、検出されなかった。また、蒸散液中のコプラナーPCB化合物群は、調製培養土に含まれる個々の濃度に比例して含まれていなかった。試験結果を考察するうえで参考となる情報は少ないが、その要因の一つとして、化合物間における水溶性の相違が考えられる。いずれにしても、土壌から吸収されたダイオキシン類は蒸散流に乗って植物体内を移動し、一部は大気中に放出されていることが明らかとなった。本知見は、植物体内におけるダイオキシン類の挙動について新たな情報を提供するものであり、今後の研究展開が期待される。

摘 要

キュウリ, ズッキーニ, ダイコンおよびニンジンについて, ダイオキシン類の土壌からの吸収・移行性を検討した. その結果, 根や植物体で検出されたダイオキシン類の量は極めて低かった. しかし, いずれの作物においてもダイオキシン類は検出され, とりわけズッキーニで土壌から根に吸収され, 地上部に移行するダイオキシン類量の多いことが明らかとなった. また, 調整培養土で栽培したズッキーニの蒸散液中にダイオキシン類が認められた.

引用文献

- Hülster, A., J. F. Müller and H. Marschner. 1994. Soil-plant transfer of polychlorinated dibenzo-*p*-dioxins and dibenzofurans to vegetables of the cucumber family (*cucurbitaceae*). Environ. Sci. Technol. 28: 1110–1115.
- 股 熙洙. 2003. 土壌中のダイオキシン類の農産物への影響. 農及園. 78: 548–552.
- 井上興一・江頭直義・野馬幸夫・染谷 孝. 2002. 水耕ホウレンソウによるダイオキシン類吸収と葉部への移行. 佐賀大農彙. 87: 105–110.
- 乾 秀之・若井丈人・祇園景子・金 倫碩・股 熙洙. 2007. 残留性有機汚染物質を効率よく吸収するズッキーニにおけるダイオキシン類の吸収・蓄積. 日本農薬学会講演要旨集. 32: 91.
- 乾 秀之・若井丈人・祇園景子・金 倫碩・股 熙洙. 2008. 残留性有機汚染物質を効率よく吸収するズッキーニにおけるダイオキシン類の吸収・移行メカニズム. 日本農薬学会講演要旨集. 33: 44.
- 草 佳那子・森泉美枝子・土屋一成・上垣隆一. 2007. ダイオキシン類濃度が大きく異なる土壌で栽培したコムギ茎葉中のダイオキシン類濃度の比較. 土肥誌. 78: 61–67.
- 佐藤賢一・佐藤岩夫・成田伊都美・中村幸二. 2006. 土壌からの水稻・野菜へのダイオキシン類の吸収・移行. 埼玉農総研報. 6: 5–16.
- Schroll, R. and I. Scheunert. 1993. Uptake pathways of octachlorodibenzo-*p*-dioxin from soil by carrots. Chemoaphere 26: 1631–1640.
- 田村有希博. 2004. 土壌中ダイオキシン類がダイズに及ぼす影響. 農及園. 79: 652–655.
- 上路雅子. 2000. ダイオキシンとは何か. 農林水産技術研究ジャーナル. 23: 5–11.