

Table 3-11 Inhalation levels of PAHs (n = 14).

Subjects No.	Inhalation level (ng/day)														GM <sup>a</sup>	GSD <sup>a</sup>	Median	Range	Estimations <sup>b</sup>
	1	2	3	4	5	6	7	8	9	10	11	12	13	14					
Phenanthrene	2.03	7.37	0.688	0.909	N.D.	0.319	0.480	1.20	0.515	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	2.75	0.829	2.31	0.497	N.D.-7.37	615
Anthracene	0.113	0.270	N.D.	0.047	N.D.	N.D.	N.D.	0.195	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	0.280	*	*	0.195	N.D.-0.280	24.0
Fluoranthene	2.57	8.23	1.74	2.22	2.68	0.111	0.299	2.94	0.385	0.656	1.90	0.451	1.52	7.26	1.32	3.29	1.82	0.111-8.23	97.5
Pyrene	1.89	4.52	1.63	1.29	1.29	0.0945	0.199	2.68	1.13	0.0484	0.810	0.0747	0.972	6.15	1.43	1.90	1.20	0.810-6.15	78.0
B(a)A	1.33	1.52	0.251	0.259	9.02	N.D.	0.518	0.813	N.D.	0.382	N.D.	0.103	0.646	3.20	0.499	3.74	0.445	N.D.-9.02	2.25
Chrysene	5.29	5.86	1.29	1.44	2.59	0.614	1.43	1.92	0.239	0.135	1.02	0.361	0.794	2.89	1.15	2.89	1.36	0.135-5.86	5.55
B(b)F	13.4	6.77	3.15	3.75	5.15	0.959	3.90	6.04	0.337	1.20	3.04	1.89	2.25	5.19	2.93	2.46	3.44	0.337-13.4	8.55
B(k)F	6.91	5.41	1.54	1.77	2.42	0.631	1.84	3.06	0.262	0.597	1.38	1.41	0.901	2.35	1.57	2.32	1.65	0.262-6.91	3.30
B(a)P	7.43	5.64	1.35	1.88	2.82	0.642	1.81	3.31	0.608	1.67	1.99	2.69	2.31	4.82	2.22	2.01	2.14	0.608-7.43	5.40
Db(ah)A	2.33	1.49	0.430	0.558	0.815	N.D.	0.438	1.23	N.D.	0.293	0.310	0.216	0.492	0.688	0.480	2.34	0.464	N.D.-2.33	0.990
B(ghi)P	5.69	5.31	2.29	2.21	1.99	1.24	1.65	4.05	0.796	2.61	6.26	4.36	2.86	9.23	2.95	1.93	2.73	0.796-9.23	9.45
IP	6.90	4.90	1.73	1.77	2.41	0.554	1.75	4.16	N.D.	2.33	3.82	1.59	2.09	5.81	2.56	1.72	2.21	N.D.-6.90	8.70
Total PAHs	55.9	57.3	16.1	18.1	31.2	5.16	14.3	31.6	4.27	10.0	20.5	13.1	14.8	50.6	20.8	2.18	17.8	6.58-57.8	859

<sup>a</sup> GM and GSD were calculated from half values of the highest detection limits, when there were N.D. values.

<sup>b</sup> This estimations are calculated based on air concentration data of each PAHs with dairy inhalation volume 15 m<sup>3</sup> (Ohura et al., 2002).

\* All of Anthracene data were considered as N.D. values, as they were fewer than the half value of the highest detection limit 0.780 ng/day.

### 3.5.2.1 大気中 PAHs 組成を利用した発生源解析

各対象者が調査期間中に吸っていた空気中の PAHs の組成を比較し、その特異性から空気中の PAHs の発生源を大まかに推定することを目的として解析を行なった。解析方法は、まず各 PAHs 間の相関関係を Spearman の順位相関係数を用いて検定を行なった。解析は統計解析ソフト SPSS Version 12.0J を用いた。さらに、発生源によって燃焼過程が異なることによる PAHs 組成の特異性を利用して、特定 PAHs の比による発生源解析が行なわれており、これらの手法に基づいて調査対象者が吸引していた大気中 PAHs の発生源解析を行なった（池中ら, 2004; 天野ら, 2004; Grimmer et al., 1981; Kim, et al., 1999）。

まず、各 PAHs 間の相関の検定結果を Table 3-12 に示した。多くの PAHs 間で高い相関関係が検出されたが、Anthracene に関しては、検出下限値以下が多く解析に適さないと判断し、解析対象から外した。このように PAHs 間の相関関係が高いということは、それぞれの対象者が吸っていた空気中の PAHs の組成が類似していることを表している。いずれの対象者も東京近郊が生活範囲であることを考えると、対象者が調査期間中に吸引していた空気の大部分は東京都内の大気中 PAHs 組成を反映していた可能性があり、さらに1日の約80%を室内で過ごしていたことから、室内中の空気を支配しているのは外気であることが考えられる。室内における PAHs の発生源として、調理の煙や燃焼系の暖房が挙げられるが、調査アンケートから特にそのような回答はなかったことから、室内空気中の PAHs 汚染は外気の流入が関係していると考えられる。また、Fig. 3-9 に示した各対象者の吸引した空気中の PAHs 組成からも成分比が類似していることが分かる。各 PAHs 間の経気道曝露量の相関図は A-11 に示した。

Table 3-12 Correlation matrix between PAHs (Spearman rank-correlation coefficient).

$r$ ( $p$ )	Phe	Flu	Py	B(a)A	Chy	B(b)F	B(k)F	B(a)P	Db(ah)A	B(ghi)P	IP	Total PAHs
Phe												
Flu	0.654* (0.011)											
Py	0.864** (0.000)	0.873** (0.000)										
B(a)A	0.480 (0.082)	0.744** (0.002)	0.636* (0.014)									
Chy	0.734** (0.003)	0.820** (0.000)	0.793** (0.001)	0.782** (0.001)								
B(b)F	0.716** (0.004)	0.811** (0.000)	0.744** (0.001)	0.796** (0.001)	0.956** (0.000)							
B(k)F	0.673** (0.008)	0.758** (0.002)	0.691** (0.006)	0.751** (0.002)	0.943** (0.000)	0.978** (0.000)						
B(a)P	0.501 (0.068)	0.802** (0.001)	0.620* (0.018)	0.742** (0.002)	0.785** (0.001)	0.837** (0.000)	0.833** (0.000)					
Db(ah)A	0.656* (0.011)	0.847** (0.000)	0.760** (0.002)	0.863** (0.000)	0.917** (0.000)	0.955** (0.000)	0.917** (0.000)	0.849** (0.000)				
B(ghi)P	0.359 (0.207)	0.640* (0.014)	0.460 (0.098)	0.331 (0.247)	0.442 (0.114)	0.521 (0.056)	0.451 (0.106)	0.754** (0.002)	0.480 (0.083)			
IP	0.622* (0.018)	0.798** (0.001)	0.667** (0.009)	0.605* (0.022)	0.751** (0.002)	0.833** (0.000)	0.758** (0.002)	0.866** (0.000)	0.780** (0.001)	0.885** (0.000)		
Total PAHs	0.652* (0.012)	0.908** (0.000)	0.778** (0.001)	0.758** (0.002)	0.947** (0.000)	0.943** (0.000)	0.908** (0.000)	0.859** (0.000)	0.911** (0.000)	0.648* (0.012)	0.878** (0.000)	

\* Statistically significant ( $p < 0.05$ ).

\*\* Statistically significant ( $p < 0.01$ ).

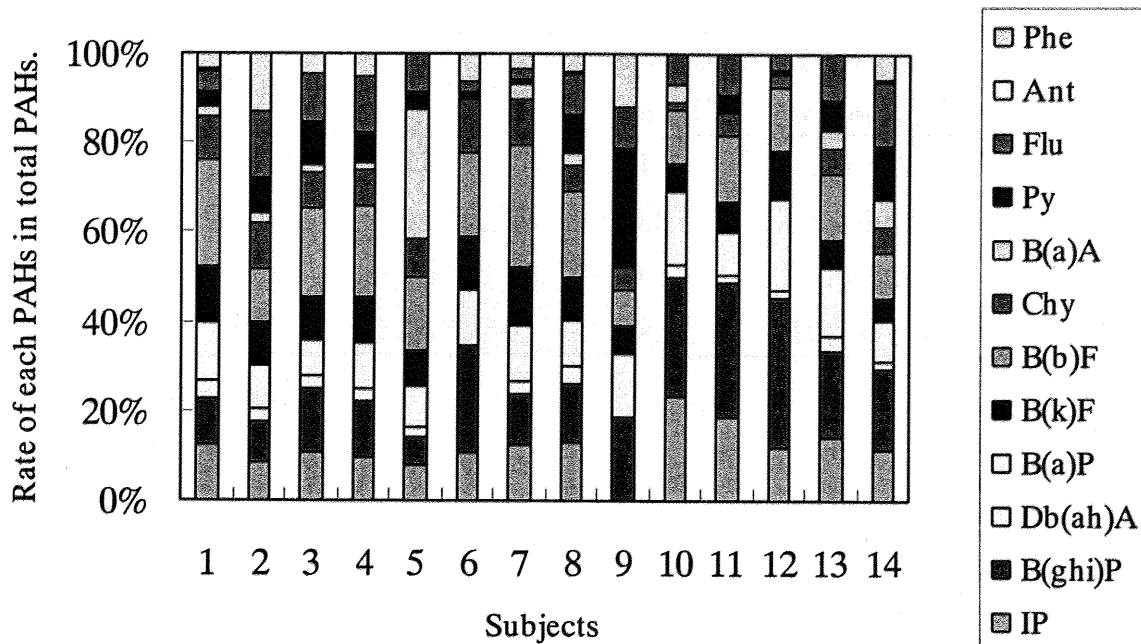


Fig. 3-9 Fractions of 12 PAHs in total PAHs for 14 subjects.

次に、特定の PAHs の比を用いて発生源を明らかにする手法に基づき解析を行った。池中らは、大気粉塵中の PAHs は、B(b)F、B(ghi)P、Chrysene が特異的に高い割合で含まれると報告しており（池中ら, 2004）、今回の調査結果では B(b)F 次いで B(ghi)P の曝露量が順に高いことから、調査期間中に対象者らが曝露していた PAHs の発生源は大気粉塵の大半を占めるとされる車の排気ガスが主であったことが推測される。また、天野らはごみ焼却炉や自動車専用トンネルといった、PAHs の排出源として考えられる固定発生源が有する特定 PAHs (B(a)A, B(b)F, B(k)F, B(ghi)P) と B(a)P との比を報告しており（天野ら, 2004）、いずれの比もごみ焼却場では 1 以上と大きく、これは各 PAHs の発生量が BaP よりはるかに多い傾向をもつということを示している。一方、自動車専用トンネルでの比はおよそ 1 前後に留まっていることがわかっている。これらの文献値と今回得られたそれらの比を比較したところ、自動車専用トンネルにおける比の値が比較的類似していたため、前述の推測と合致する検討結果となった (Table 3-13, Fig. 3-10)。

Table 3-13 Characteristic PAHs ratios per B(a)P.

PAHs / B(a)P	This study	Automobile tunnel <sup>a</sup>	Garbage incinerator <sup>a</sup>
B(a)A / B(a)P	0.43 ± 0.78	1.1	1.5-4.5
B(b)F / B(a)P	1.44 ± 0.56	0.87	9.5-46.5
B(k)F / B(a)P	0.76 ± 0.26	0.31	2.6-8.6
B(ghi)P / B(a)P	1.44 ± 0.61	2.3	10.1-91.3

<sup>a</sup> 天野ら, 2004

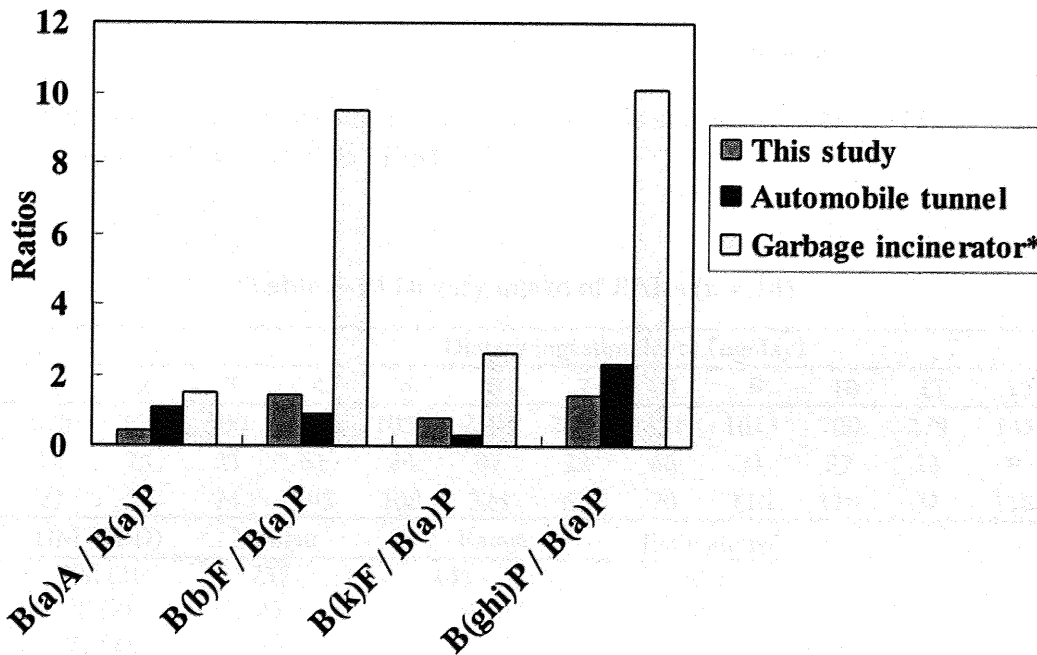


Fig. 3-10 Comparisons of the characteristic ratios of each PAHs.  
\* This value indicates the minimum ratios in Table 3-13.

### 3.5.3 食事からの PAHs 曝露量

陰膳試料分析結果より、式5を用いてPAHsの経口曝露量を算出した (Fig. 3-11及びTable 3-14)。分析値は、添加回収率で補正した値を用いた。試算値は第1章のTable 1-10と同様の値を用いた。

経口曝露量 (ng/day) =  
陰膳試料中濃度 (ng/g dry weight) × 含水率 × 1日摂食量 (g)     …… 式5

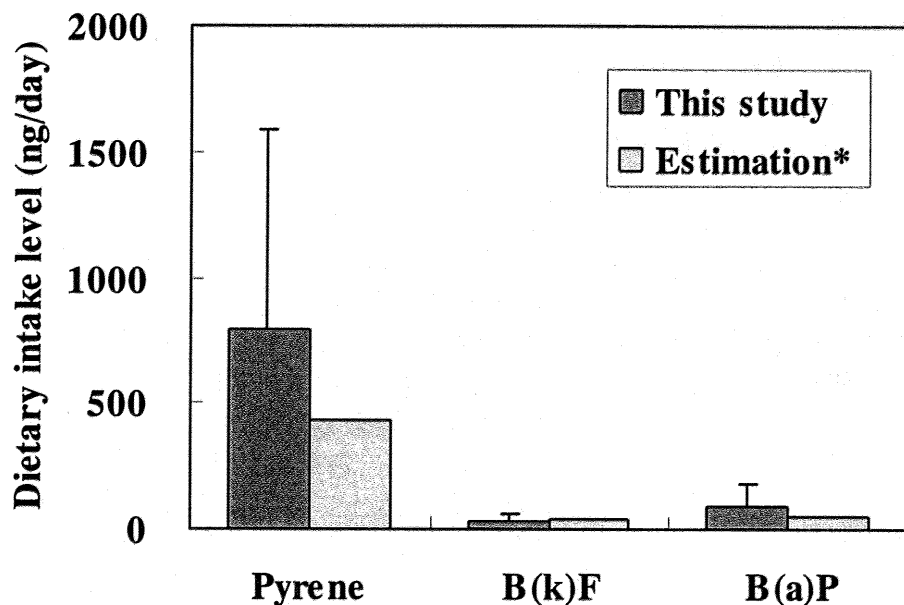


Fig. 3-11 Mean dietary ingestion levels of PAHs and estimations (n=14).  
\* Calculated from 尾花ら, 1984.

Table 3-14 Dietary intake of PAHs (n = 14).

Subject No.	Dietary ingestion level (ng/day)													
	1	2	3	4	5	6	7	8	9	10	11	12	13	14
Py	628	764	500	2616	1058	2301	2087	431	1615	700	279	145	862	750
B(k)F	14	25	23	61	24	97	22	66	31	27	23	9	27	22
B(a)P	27	51	74	195	108	324	67	70	116	118	72	118	60	114
Subject No.	GM (GSD)		Median		Range		Estimations <sup>a</sup>							
Py	796 (2)		757		145 - 2616		433							
B(k)F	28 (2)		25		9 - 97		40							
B(a)P	91 (2)		90		27 - 324		47							

<sup>a</sup> This estimations are calculated based on PAHs concentrations of each food group and intake data. (尾花ら, 1984)

いずれの PAHs でもおよそ試算値と同じレベルの経口曝露量であった。若干、本研究で得られた曝露量の方が高い原因として、試算値はあくまでも調理を考慮に入れていないため、実際よりも過少評価されていることが考えられる。また、はじめに述べたように B(a)P の OSF から算出した VSD 68 ng/day (生涯発ガンリスク  $10^{-5}$  の場合) と今回の調査での平均 B(a)P 経口曝露量 91 ng/day とを比較すると、同じレベルの B(a)P を食事から曝露していることが分かった。今回の調査で最も高い曝露量は 324 ng/day であり、これは  $5 \times 10^{-5}$  の発ガンリスクを有しており、発ガン物質の規制基準を定める際に一般的に設定される許容リスク  $10^{-5}$  を超過する懸念がある。今後一般公衆の PAHs の経口曝露についても曝露評価を十分に行なってゆき、規制の対象として視野に入れることが望まれる。

また、他国で報告されている一般公衆の PAHs の経口曝露量と比較してみると同じ陰膳法を取り入れた調査と同レベルの結果であった (Table 3-15)。各国で食事習慣が異なるため、PAHs の経口曝露にもその影響が現れることが予想されるが、Table 3-13 からはそこまで大きな差は見られない。また、本研究の導入部で取り上げた尾花らや Shiraishi らの 1980 年代になされた食事からの B(a)P 摂取に関する報告は他国及び本研究の結果と比較すると低い見積もりとなっていた。そのため、現存の日本における数少ない食品中 PAHs データを元に算出した試算や摂取量報告は、過少評価されている可能性が考えられる。よって、本研究で得られた陰膳試料分析結果は、日本人の食事からの B(a)P 曝露量に関する重要な知見である。

一方、調査で得られた食事に関するアンケート結果 (A-10) と経口曝露量の傾向とを比較すると、一番高かった対象者の食事内容に牛ステーキが含まれており、脂質を含みさらに加熱調理が施されているため、この食品が経口曝露量に大きく寄与している可能性が考えられる。しかし、他の対象者でもハンバーグなど肉に加熱調理を加えた食品を摂食しており、PAHs 曝露が予測されるが、分析結果に反映されている傾向はみられなかった。このことから、同じような食品でも調理の方法や脂質含有率等で PAHs 含有量が影響を受けることが考えられる。その一例として、日本食の代表格ともいえる焼魚が挙げられる。焼魚は基本的に網焼きにされるので、直接火に触れることにより、PAHs が生成しやすい状況となることが考えられ、鉄板焼きやオープン調理よりも PAHs が多く生成されることが館野により報告されている (館野, 1998)。

**Table 3-15** Mean dairy intake of B(a)P compared with results obtained in other studies.

Country	Method	Intake <sup>a</sup> (ng/day)	Reference
Japan	market basket study	50 (11-230)	Obana et al., 1984
Japan	duplicated portion study	58 (25-131)	Shiraishi et al., 1981
Japan	duplicated portion study	70 (27-118)	Kanno et al., 2005
Japan	duplicated portion study	108(AM), 91(GM) (27-324)	This study, 2005
Canada	duplicated portion study	178 (n.d.-278)	Viau et al., 2002
U.S.A	duplicated portion study	94 (6-575) <sup>b</sup>	Bulter et al., 1993
U.S.A	duplicated portion study	123 <sup>c</sup>	Waldmasn et al., 1991
Spain	market basket study	128 <sup>c</sup>	Falco et al., 2003
Netherlands	market basket study	(120-290) <sup>b</sup>	Vos et al., 1990
U.K.	market basket study	250 (60-560)	Dennis et al., 1983

<sup>a</sup> AM (range).

<sup>b</sup> unavailable AM data.

<sup>c</sup> unavailable range data.

また、食品中 PAHs 間の相関を Pearson の積率相関係数を用いて検討した (Table 3-16)。統計解析ソフト SPSS Version 12.0 J (SPSS Inc.) を用い、分析結果を対数変換して解析を行なった。Pyrene と B(a)P との組み合わせ以外は有意な相関があった ( $p < 0.05$ ) (A-12)。Pyrene と B(a)P との間に有意な相関がなかった理由として、加熱処理を施すことによって PAHs 組成が変化しうることと、Pyrene が比較的気相中に多く存在することから、調理の過程で食品中に蓄積せず空気中へ放散されてしまった可能性が考えられる。

**Table 3-16** Correlations between 3PAHs  
(Pearson's product moment correlation coefficient).

<i>r</i> ( <i>p</i> )	Pyrene	B(a)P	B(k)F
Pyrene			
B(a)P	0.39 (0.17)		
B(k)F	0.60 (0.02)	0.56 (0.04)	



## 3.5.4 一般公衆における各経路からの PAHs 曝露量

総 PAHs 曝露量における Pyrene、B(k)F、B(a)P の大気及び食事からの曝露量及び総 PAHs 曝露量に対する寄与率を Table 3-17 に示した。3.5.2 及び 3.5.3 の結果からも明らかだが、食事からの Pyrene 曝露量は大気と比較して数倍か 1000 倍近く高い曝露量であり、総 PAHs 曝露量の内 Pyrene、B(k)F、B(a)P いずれも 90% 以上を食事からの曝露が占めていることが分かった。また、TEF を用いて総 PAHs 曝露量を B(a)P に換算したところ、総曝露量は 5.2 ng/day となり、12 種類の PAHs を B(a)P として総和しても食事からの曝露量を下回ることがわかった。これらの結果から、一般公衆かつ非喫煙者の PAHs 曝露量をやはり食事からの PAHs 曝露の方が大気からの曝露よりも今回対象とした物質に関しては高いことが明らかとなった。また、人を対象とした Pyrene 投与研究において得られた 48 時間以内の平均尿中 1-OHP 排泄率 3.67% を用いて (Viau et al., 1995)、今回得られた尿中 1-OHP 排泄量から Pyrene の平均経口曝露量を予測すると、およそ 808 ng/day となり、実測値 796 ng/day に近い値となった。このことから、本調査における代謝時間を考慮した、少なくとも食事及び尿のサンプリング方法が適切であったことが考えられる。

Table 3-17 Exposure levels of PAHs via each media.

	Pyrene		B(k)F		B(a)P	
	Air	Food	Air	Food	Air	Food
GM (GSD) (ng/day)	1.43 (1.90)	796 (2)	1.57 (2.32)	28 (2)	2.22 (2.01)	91(2)
Median (ng/day)	1.20	757	1.65	25	2.14	90
Min. (ng/day)	0.81	145	0.26	9	0.61	27
Max. (ng/day)	6.15	2616	6.91	97	7.43	324
Contribution (%)	0.2	99.8	6.0	94.0	2.5	97.5

## 3.5.5 統計学的解析

PAHsの内、発ガン性が強いB(a)Pの体内への取り込み量を反映する尿中1-OHPに、より支配的に影響を与える因子を検討するため、Pearsonの積率相関係数を用いて、尿中1-OHP排泄量と各曝露経路からのPyrene、B(a)P及びB(k)F曝露量との相関関係を検討した。統計解析にはSPSS Version 12.0 J (SPSS Inc.)を用い、各変数は対数変換して取り扱った。尿中1-OHP排泄量と各曝露量との相関関係及び統計解析結果をFig. 3-12から3-17及びTable 3-18に示した。

Pyrene、B(a)P及びB(k)Fの経気道及び経口曝露量と尿中1-OHP排泄量に関して相関分析を行なったところ、尿中1-OHP排泄量と食事からのPyrene、B(a)P及びB(k)F曝露量との間に有意な相関関係があった ( $p < 0.05$ )。一方、大気からのPyrene、B(a)P及びB(k)F曝露量と尿中1-OHP排泄量との間には、有意な相関関係はなかった ( $p > 0.05$ )。Pyreneについては、過小評価されている可能性が高いため、この気相分を加えた場合に相関関係が変化し、Pyreneの経気道曝露量と尿中1-OHPとに関連が見出される可能性が考えられるが、Pyreneの経気道曝露量の試算値は78 ng/dayであり、経口曝露のおよそ10分の1であることから、恐らく相関関係に変化はないと予測される。このことから、尿中1-OHP排泄量により支配的に影響を与える因子は、食事からのPyrene、B(a)P及びB(k)F曝露量であることが明確となった。さらに、尿中1-OHP排泄量の変動のおよそ30-40%を食事からの曝露が説明することが示唆された。一方、大気からのB(a)P、Pyrene及びB(k)F曝露量で尿中1-OHP排泄量を説明することは難しいことが明らかとなり、一般公衆かつ非喫煙者を対象に、尿中1-OHPを経気道曝露のバイオマーカーとして用いることは適当でない可能性が示された。

また、各食品群中PAHs濃度に関する文献値 (Falco et al., 2003) よりPAHs組成を解析したところ、各PAHs間に概ね有意な相関関係が見られることから (1章、Table 1-8)、今回陰膳試料で定量することができなかったPAHsについても、尿中1-OHPとの間にPyreneやB(a)P、B(k)Fと同様、相関関係があることが予想される。そのため、尿中1-OHP排泄量は、PyreneやB(a)P、B(k)Fだけでなく、総PAHsの経口曝露のバイオマーカーとしても有用である可能性も考えられる。

Table 3-18 Correlations of urinary excretion level of 1-OHP with each exposure levels.

	Pyrene	B(k)F	B(a)P
1-OHP / Inhalation level	$r = 0.13$	$r = -0.47$	$r = -0.32$
	$p = 0.67$	$p = 0.07$	$p = 0.27$
1-OHP / Ingestion level	$r = 0.62$	$r = 0.65$	$r = 0.56$
	$p = 0.02$	$p = 0.01$	$p = 0.04$

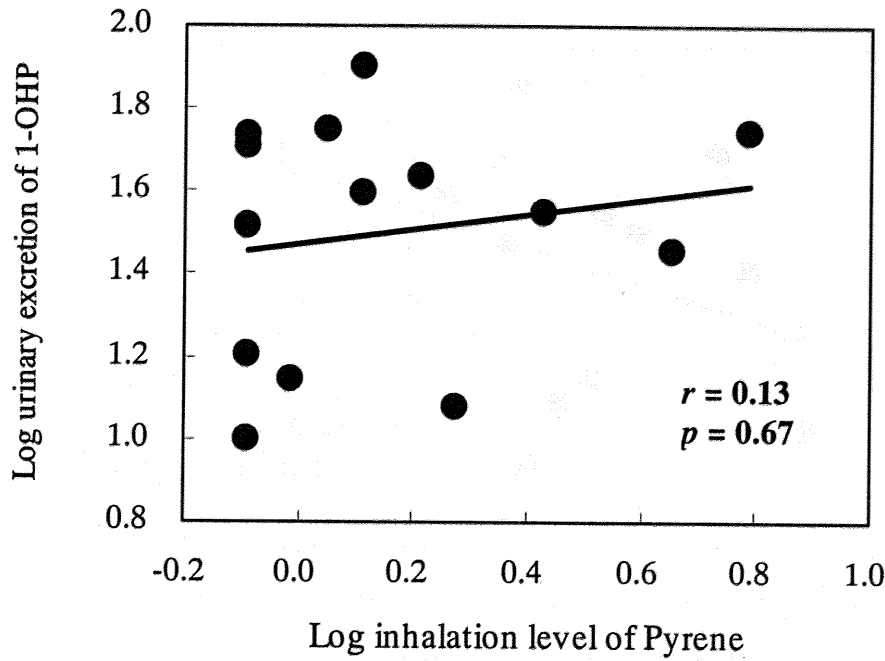


Fig. 3-12 Correlation of urinary excretion of 1-OHP with inhalation level of Pyrene (n=14).

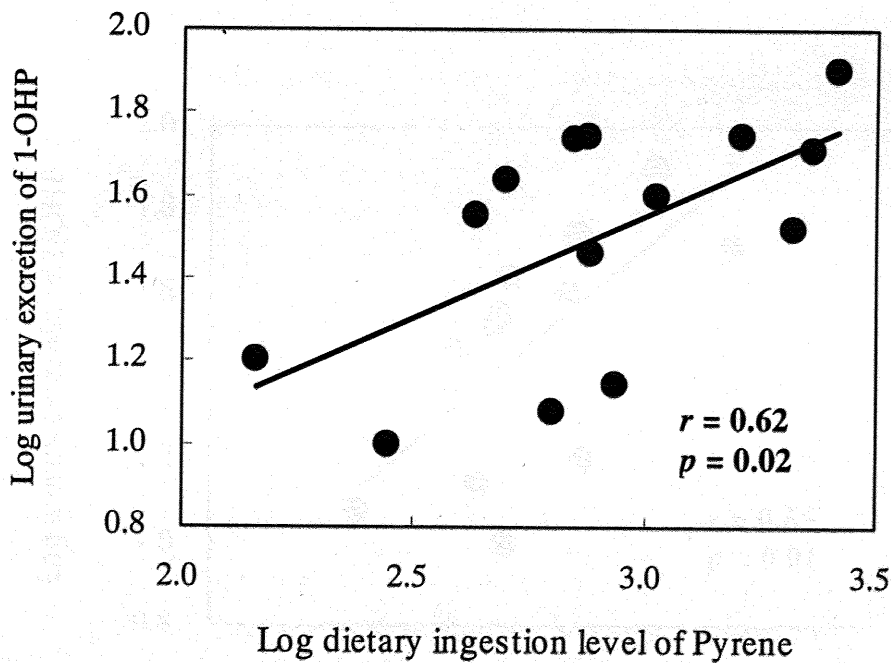


Fig. 3-13 Correlation of urinary excretion of 1-OHP with dietary ingestion level of Pyrene (n=14).

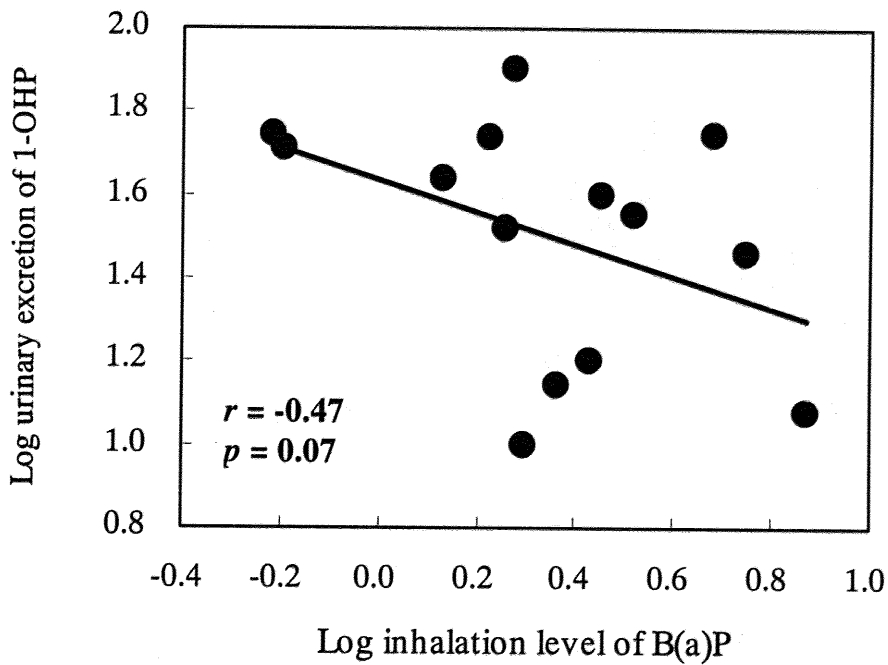


Fig. 3-14 Correlations of urinary excretion of 1-OHP with inhalation level of B(a)P (n=14).

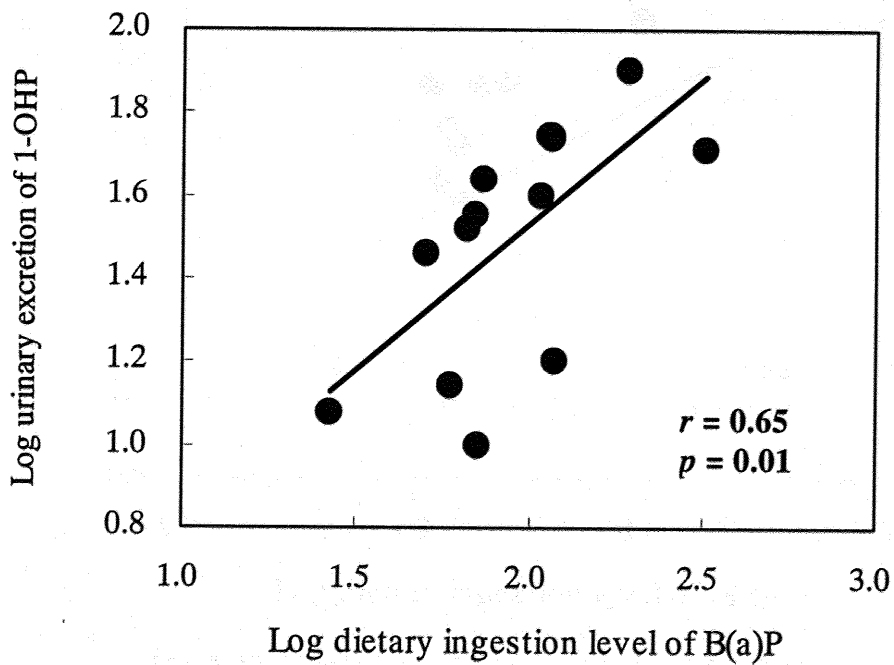


Fig. 3-15 Correlations of urinary excretion of 1-OHP with dietary ingestion level of B(a)P (n=14).

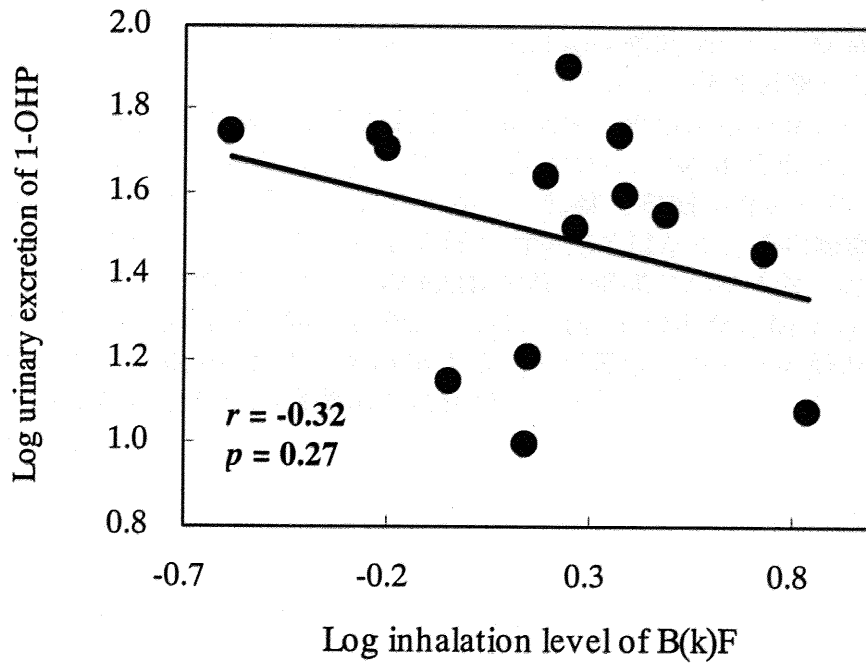


Fig. 3-16 Correlations of urinary excretion of 1-OHP with inhalation level of B(k)F (n=14).

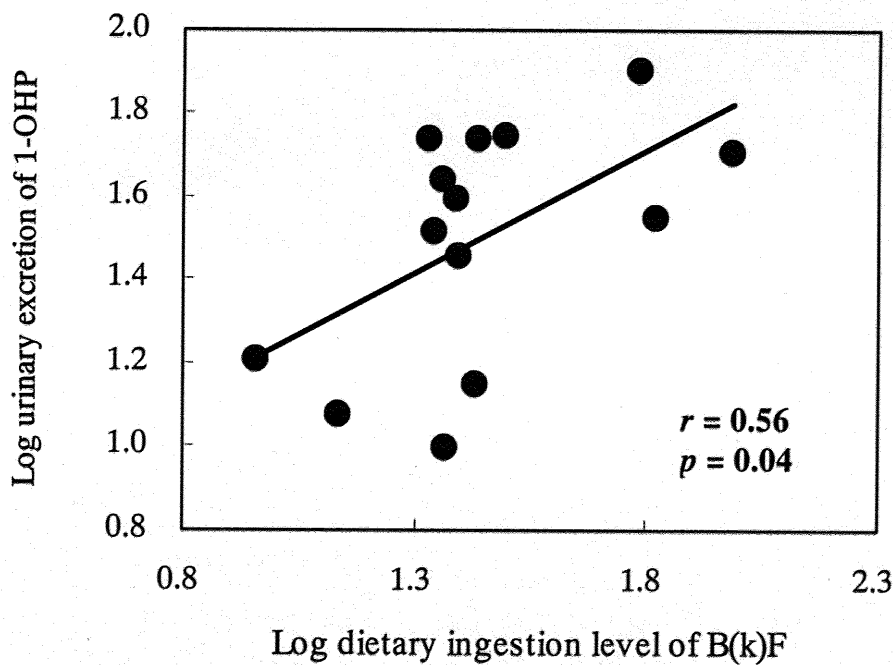


Fig. 3-17 Correlations of urinary excretion of 1-OHP with dietary ingestion level of B(k)F (n=14).

### 3.6 結論

日本人の一般公衆かつ非喫煙者において、総 PAHs 曝露量の内、食事からの曝露が 90%以上を占めることが示唆されると共に、人体に対して健康影響を与えうる用量を反映する尿中 1-OHP 排泄量の変動のおよそ 30-40%を食事からの B(a)P 及び Pyrene 曝露量が説明しうることが示唆された。また、食事からの B(a)P 摂取量と尿中 1-OHP との間に、有意な相関関係が見られたことから、特殊な曝露がない一般公衆においては、尿中 1-OHP が、発ガン性の高い B(a)P の経気道曝露ではなく、経口曝露の指標として有用であることが示されると共に、総 PAHs の経口曝露のバイオマーカーとしても用いることができる可能性が示唆された。これは、B(a)P のみなど個々の PAHs で評価を行なうのではなく、総 PAHs として評価することが重要であるとの最近の PAHs 曝露研究における動向に対しても意義のある知見である。

### 3.7 参考文献

- 天野冨子ら, “都内環境大気における多環芳香族炭化水素類について”, 東京都環境科学研究所年報 2004, 94-98, 2004.
- 池中良徳ら, “諏訪湖底質柱状堆積物から見たダイオキシン類, 多環芳香族炭化水素類の発生源に関する研究”, 第13回環境化学討論会要旨集, 2004.
- 尾花裕孝ら, “食品経路による多環芳香族炭化水素の摂取量について”, 食品衛生学雑誌, 25 (1), 35-40, 1984.
- 環境省、環境保健部、環境安全課、モニタリング調査マニュアル、2002、  
<http://www.env.go.jp/chemi/kurohon/http2003/02moni-manu/000moni-manu.htm>.
- 館野つや子, “調味料で味付けした魚の丸焦による Polycyclic aromatic hydrocarbons の生成”, 東京家政大学研究紀要, 38, 117-121, 1998.
- 館野つや子, “日本人の食事からの多環芳香族炭化水素の調査”, 東京家政大学研究紀要, 45 (2), 35-41, 2005.
- C. Viau et al., “Urinary excretion kinetics of 1-hydroxypyrene in volunteers exposed to pyrene by the oral and dermal route”, 163, 179-186, 1995.
- E. Menichini et al., “Monitoring of carcinogenic PAHs in air under mild – warm ambient temperatures: relative importance of vapour – assessing exposure and risk”, Int. J. Environ. Anal. Chem., 83 (11), 897-908, 2003.
- G. Falco et al., “Polycyclic aromatic hydrocarbons in foods : human exposure through the diet in Catalonia, Spain”, J. Food Protection, 66 (12), 2325-2331, 2003.
- G. Grimmer et al., “Comparison of the profiles of polycyclic aromatic hydrocarbons in different areas of a city by glass-capillary-gas-chromatography in the nanogram-range”, Intern. J. Environ. Anal. Chem., 10, 265-276, 1981.
- G. Wang et al., “Accelerated solvent extraction and gas chromatography/mass spectrometry for determination of polycyclic aromatic hydrocarbons in smoked food samples”, J. Agric. Food Chem., 47, 1062-1066, 1999.
- J. M. Waldman et al., “Analysis of human exposure to benzo(a)pyrene via inhalation and food ingestion in the total human environmental exposure study (THEES)”, J. Expo. Anal. Environ. Epidemiol., 1(2), 193-225, 1991.
- J. P. Bulter et al., “Assessment of carcinogenic risk from personal exposure to Benzo(a)pyrene in the Total Human Environmental Exposure Study (THEES)”, J. Air Waste Manage. Assoc., 43, 970-977, 1993.
- M. J. Dennis et al., “Analysis of polycyclic aromatic hydrocarbons in UK total diets”, Fd. Chem. Toxic., 21, 569-574, 1983.

M. J. Nieva-Cano et al., "Determination of PAH in food samples by HPLC with fluorimetric detection following sonication extraction without sample clean-up", *Analyst*, 126, 1326-1311, 2001.

N. T. Kim O. et al., "Emission of polycyclic aromatic hydrocarbons and particulate matter from domestic combustion of selected fuels", *Environ. Sci. Technol.*, 33, 2703-2709, 1999.

P. L. Lu et al., "Urinary 1-hydroxypyrene levels in workers exposed to coke oven emissions at various locations in a coke oven plant", 57, 255-261, 2002.

R. H. D. Vos et al., "Polycyclic aromatic hydrocarbons in dutch total diet samples", *Fd. Chem. Toxic.*, 28(4), 263-268, 1990.

T. J. Buckley et al., "An examination of the time course from human dietary exposure to polycyclic aromatic hydrocarbons to urinary elimination of 1-hydroxypyrene", *Br. J. Ind. Med.*, 49, 113-124, 1992.

T. Ohura et al., "Simultaneous liquid chromatographic determination of 39 polycyclic aromatic hydrocarbons in indoor and outdoor air and application to a survey on indoor air pollution in Fuji, Japan", *J. AOAC Int.*, 85(1), 188-202, 2002.

Y. Shiraishi et al., "Estimation of Intake of Benzo(a)pyrene by Japanese from the Analysis of Meals", *J. Food. Hyg. Soc. Japan*, 22(5), 1981.



## 第4章

### 結言及び今後の展望

## 第4章 結言及び今後の展望

本研究において、特異的な曝露のない一般公衆かつ非喫煙者の総 PAHs 曝露量の内、90%以上が食事からの曝露が占めていることが示され、各々の経路からの曝露量は試算値とほぼ一致する曝露量であった。また、PAHs の体内への取り込み量を反映する汎用的バイオマーカーである尿中 1-OHP 排泄量のより支配的な因子は食物であることが明らかとなり、統計学的解析の結果尿中 1-OHP 排泄量のおよそ 30-40%を食事からの Pyrene、B(a)P 及び B(k)F 曝露量が説明することが示唆された。一方、大気からの Pyrene 及び B(a)P 曝露量と尿中 1-OHP 排泄量との間には有意な相関関係は見られず、経気道曝露量が尿中 1-OHP 排泄量を説明することは難しいことが明確となった。そのため、今回のような対象者の場合、尿中 1-OHP を経気道曝露よりむしろ経口曝露のバイオマーカーとして用いる方が適当である可能性が示された。

リスクの観点から、発ガン性が高いとされている B(a)P の経口曝露量を評価すると、今回得られた平均 B(a)P 経口曝露量 91 ng/day は許容できる生涯リスクが  $10^{-5}$  のときの VSD 68 ng/day と同じレベルであり、最も高い曝露量であった 324 ng/day に関しては、発ガンリスクが  $5 \times 10^{-5}$  と発ガン物質の規制基準の設定に際する一般的な許容レベルを超える結果となった。このように明らかに食事からの B(a)P 曝露が高いにも係らず、食事中 B(a)P に対する規制等の動きはなく、今後食事からの曝露を含めた PAHs のリスクアセスメントが望まれる。特に、今回対象としたのは、健康状態が良好である一般成人男性であったが、今後焦点を当てるべき集団として感受性の高い乳幼児や胎児を含めた妊婦が挙げられる。冒頭でも述べたが、B(a)P は発ガン性物質としてだけではなく、内分泌攪乱物質としても取り上げられており、影響に着目した経気道曝露及び経口曝露の両方から評価を行なう必要性が考えられる。

## 謝 辞

本研究を進めるに当たり、多くの方々よりご協力・ご教示頂いた事をこの場をお借りして厚く御礼申し上げます。

特に、お忙しい中懇切丁寧なご指導と有益なご助言を頂きました指導教官である吉永淳助教授には心から感謝しております。

同専攻の柳沢研究室の方々には、貴重なご助言頂いたこと感謝意を表します。

ASE装置の利用に際しましては、国立環境研究所の柴田先生、並びに日本ダイオネクス株式会社の永田様のご好意に深く感謝いたします。

国立保健医療科学院の遠藤先生、小谷野さん、角田さんには研究を始めるに当たり、様々なご助言頂いた事に感謝しております。

本研究が完成する上で貴重な試料を提供して下さいました皆様には、その惜しみないご協力に深謝いたしております。

最後になりましたが、吉永研究室の先輩、同輩ならびに後輩の方々には、2年間研究のみならず様々な場面で大変お世話になりました。改めて心から御礼申し上げます。

# Appendix

No. \_\_\_\_\_

### 行動記録表

名前: \_\_\_\_\_

サンプリング日: \_\_\_\_\_ / ( ) ~ \_\_\_\_\_ / ( )

天気: 1日目( ) 2日目( )

☆空気サンプリング中の主な行動を記録してください。

イベント	/ ( )				/ ( )									
	18:00	20:00	22:00	24:00	2:00	4:00	6:00	8:00	10:00	12:00	14:00	16:00	18:00	
自宅														
学校(職場)														
遊戯場(ハチノ等)														
調理														
食事														
公共交通(バス・電車)														
運転(自動車)														
運転(バイク)														
暖房														

暖房の種類は?? ガス・石油・電気・エアコン・オイルヒーター・その他 ( )

☆その他、サンプリング中に行った煙たい場所等をお書きください。(例: 葬儀場に行った、煙たい道路脇を歩いた などなど)

A-1

調査期間中の食事に関するアンケート

氏名 \_\_\_\_\_.

2005/ / ( )	食事内容	量
朝食		
昼食		
夕食		
間食		
飲料		

## 調査マニュアル

今回は、食事・空気・尿の3つを提供して頂きます。サンプリングは3日間に渡って実施します。

### ☆サンプリングスケジュール☆

	1日目( / , )	2日目( / , )	3日目( / , )
空気		← 18:00 →	
食事		← 朝食 → 夕食	
尿		← 2番尿 →	早朝尿

### 【大気サンプル】

#### ◆お配りしたもの◆

- ① セット済みポンプ 1台
- ② バッテリー 1台
- ③ 工具(ドライバー) 1本
- ④ 防音ケース 1個
- ⑤ 行動記録表

#### ◆サンプリング期間◆

1日目( / , )の18:00から24時間

#### ◆サンプリング方法◆

##### (1) バッテリーの交換

- ・ 就寝前にバッテリーを交換してください。
- ・ 学校到着時のバッテリー交換はこちらで行います。
- ・ バッテリーの交換方法は別紙を参照ください。

※交換時の積算稼働時間を必ずアンケートに記入してください。

#### ☆注意

- ・ ポンプが停止してしまった場合、必ずアンケートに詳細を記入してください。

##### (2) ポンプの再稼働

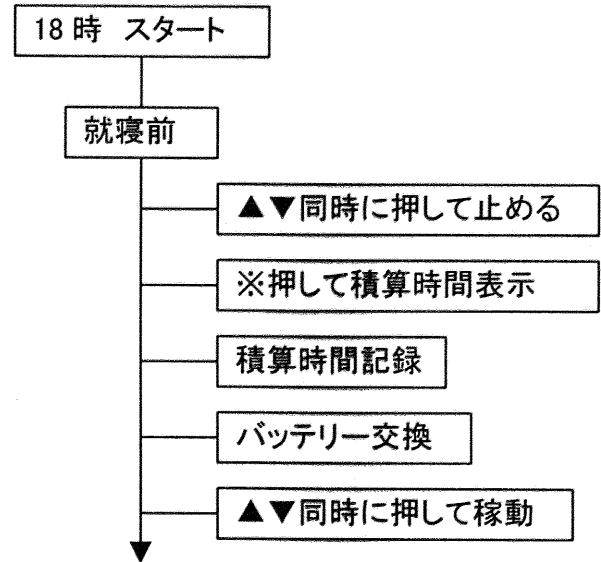
ポンプが停止してしまった場合、操作ボタン▲と▼を同時に押して再稼働させてください。

##### (3) 捕集の終了

2日目( / , )の18:00にポンプを停止・回収にお伺いします。

##### (4) 行動記録表

空気捕集中の簡単な行動記録をお渡しした『行動記録表』にご記入ください。



## 【 食事サンプル 】

## ◆お配りしたもの◆

- ・ ジップロック 4枚(大3枚, 小1枚)
- ・ 飲料用ボトル 1個
- ・ 包装容器類保存用ビニール袋 5枚

## ◆サンプリング期間・対象◆

2日目( / , )の朝食～夕食(夜食)までのすべての食事

## ◆サンプリング方法◆

(1) 各食事を2食分用意し、1食分の実際食べた分だけを提供用としてください。

**自炊食**

- ・ 同じ食事を2食分用意し、1食の食べた分をジップロックに入れ冷蔵庫で保存してください。

**購入弁当, コンビニのパンやおにぎり, お菓子**

- ・ 同じ商品を2つ購入し、食べ残し分は取り除き容器ごとビニール袋に入れ冷蔵庫で保存してください。

**缶・パック・ペットボトル飲料**

- ・ 同じ飲料を2つ購入し、開封せずに冷蔵保存し飲んだ量をアンケート用紙に記入してください。

**非購入飲料(インスタントコーヒー, ティーパック紅茶等)**

- ・ 同じ飲料を2つ用意し、飲んだ量分を飲料用ボトルに移してください。

**薬の服用**

- ・ 薬はサンプル対象とは致しませんが、錠剤及び粉末薬を服用した際の水・お茶等は対象となります。

(2) 食事に関するアンケート

各食事内容をお配りしたアンケートにご記入下さい。



## 【尿】

## ◆お配りしたもの◆

- ① 茶色のボトル(小) 2個
- ② 白色のボトル(大) 1個
- ③ 液体入りボトル(小) 1個
- ④ クーラーボックス(保冷剤入り)

## ◆サンプリング期間◆

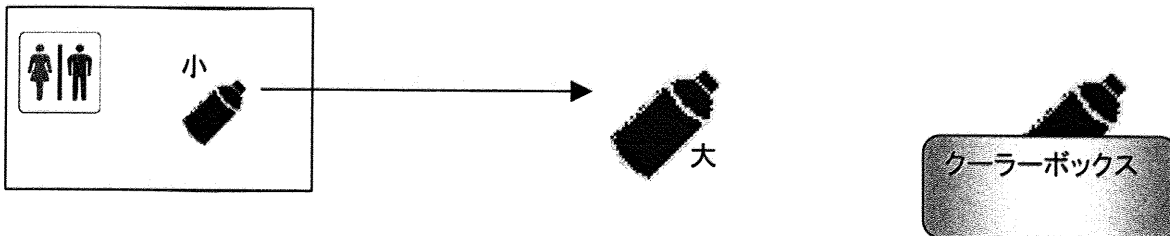
2日目( / , )の朝一番尿の次の尿から3日目( / , )の朝一番尿までのすべての尿を採取してください。

## ◆サンプリング方法◆

一回分の尿を直接茶色のボトル(小)に取り、その都度白色のボトル(大)に移してください。

※その際、液体の入った小さなボトルのふたを同様に開け閉めして下さい。

！茶色のボトルは絶対に洗わないでください



## ◆保存方法◆

- ・尿を貯めている白色のボトル(大)は常時氷の入ったクーラーボックスで冷やして保存してください。  
※保冷剤の交換に / ( ) 頃お伺いします。
- ・自宅での採尿は、茶色のボトル(小)に入れたまま涼しい場所(玄関など)で保存し、運搬用保存パックに入れてお持ちください。
- ・採尿し忘れた場合は必ずアンケートに記入してください。

## 【アンケート】

サンプリングに関する簡単なアンケートです。忘れないうちに必要事項をご記入ください。

☆ご不明な点やお困りの場合は、下記までご連絡下さい。

東京大学 新領域創成科学研究科  
環境健康システム学分野研究室 鈴木香織

居室：工学部5号館034号室

TEL：03-5841-7312(内線 27312)

携帯電話：090-8642-4637

E-mail：k\_suzuki@envhlth.k.u-tokyo.ac.jp

## 調査に関するアンケート

今回は食事・空気・尿のサンプリングにご協力いただきありがとうございます。このアンケートは調査結果を解析する際に参考にさせていただきます。尚、記載情報については他の目的で使用することは一切ございません。

【氏名】

【年齢】       才   【男・女】

【体重】       kg   【身長】       cm

【実施日】 2005年   月   日～2005年   月   日

【喫煙履歴】 以前していた(今はしていない)；喫煙歴       年  
吸ったことがない

<空気>.....

【開始時間】   日 午前・午後   時   分

【停止時間】   日 午前・午後   時   分

【バッテリー交換①時積算稼働時間】       分(就寝前)

【バッテリー交換②時積算稼働時間】       分(学校到着時)

【停止時積算稼働時間】       分(停止時)

【ポンプが途中で止まりましたか？】 いいえ・はい

“はい”と答えた方はこちらへ

【停止時の積算時間は？】

1回目：       分

2回目：       分

3回目：       分

【再度ポンプを稼働させましたか？】

1回目： いいえ・はい

2回目： いいえ・はい

3回目： いいえ・はい

【受動喫煙】 空気のサンプリング中に受動喫煙をしましたか？ はい・いいえ

“はい”と答えた方はこちらへ

【受動喫煙の程度は？】 低い・高い

低い： 数分程度

高い： 喫煙所での滞在  
遊技場(パチンコなど)で長時間滞在したりとき

&lt;食事&gt; ..... A-4-1 .....

## 【朝食】

食事内容	量	未採取

## 【昼食】

食事内容	量	未採取

## 【夕食】

食事内容	量	未採取

## 【間食】

食事内容	量	未採取

## 【飲料】

食事内容	量	未採取

&lt;尿&gt; .....

【採尿のし忘れはありますか？】 ありません ・ あります

◇その他何かお気づきの点やご感想等ございましたらお書き下さい。  
A-4-2

◇今後またこのような調査があった場合、参加して頂けますか？

◇もしよろしければ連絡先メールアドレスをご記入ください。(携帯電話不可)

\_\_\_\_\_ @ \_\_\_\_\_

ご協力ありがとうございました。

<連絡先>

東京大学 新領域創成科学研究科 環境学専攻  
環境健康システム学分野 鈴木 香織

TEL : 03-5841-7312 (内線:27312)

居室場所 : 工学部 5号館地下 034号室

携帯電話 : 090-8642-4637

E-Mail : k\_suzuki@envhlth.k.u-tokyo.ac.jp

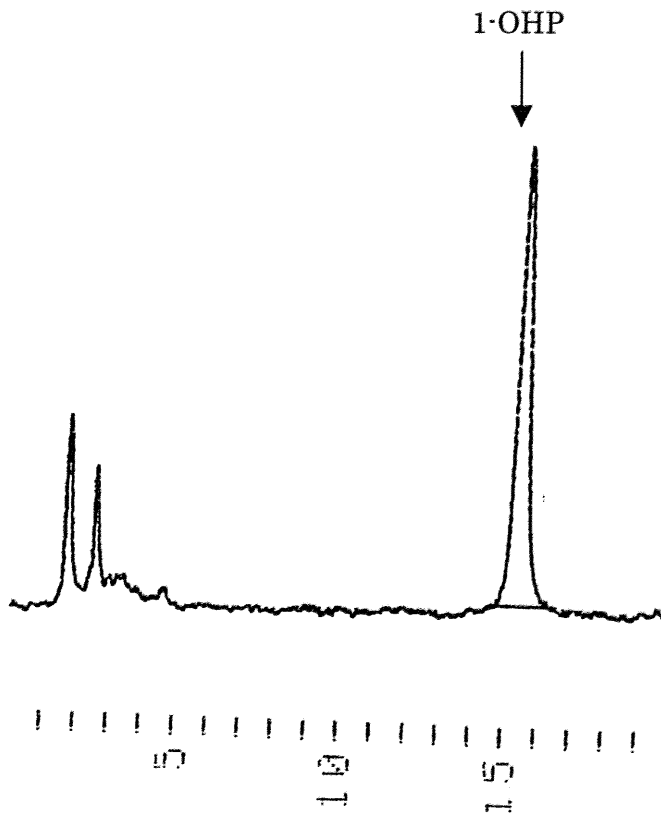


Fig.A-5-1 Chromatogram of measurement of 1-OHP standard.

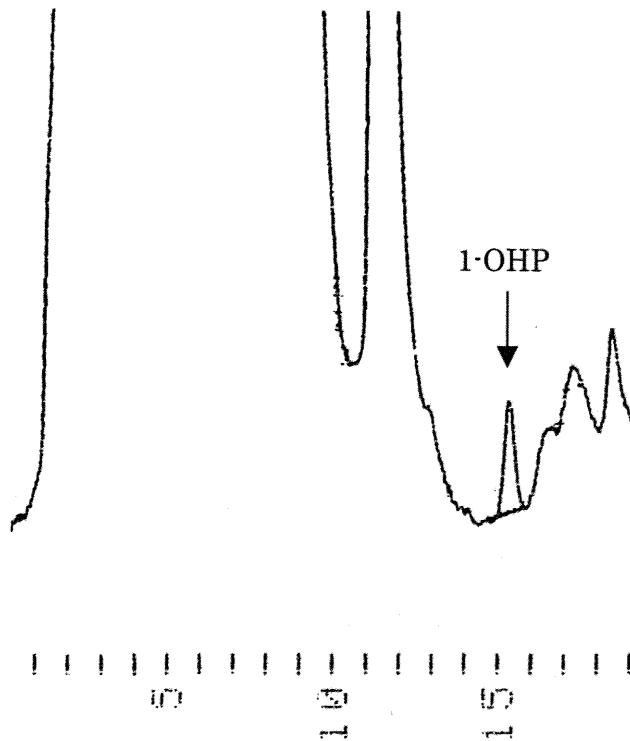


Fig.A-5-2 Chromatogram of measurement of urine sample.

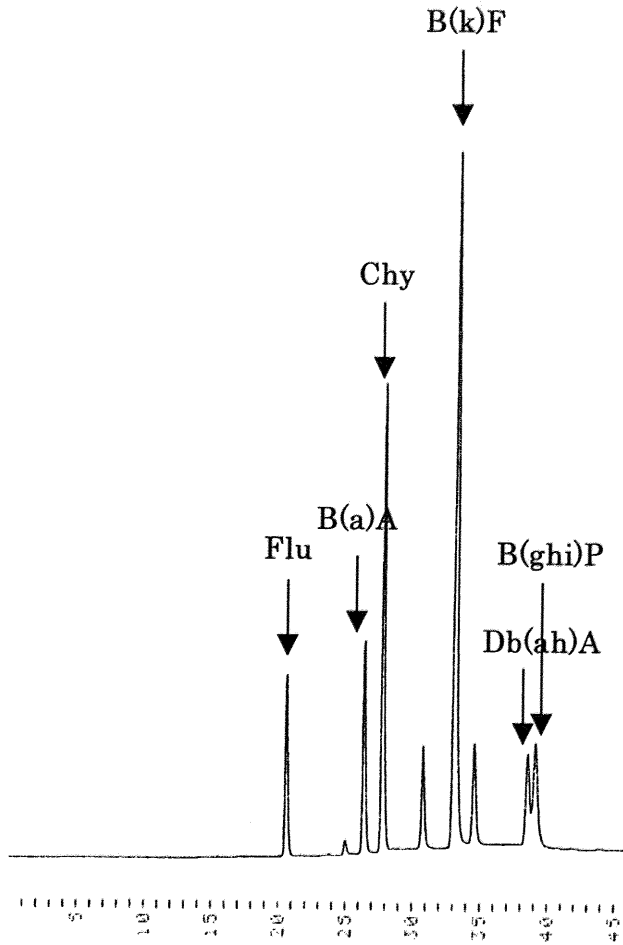


Fig.A-6-1 Chromatogram of measurement of PAHs standard with method 1.

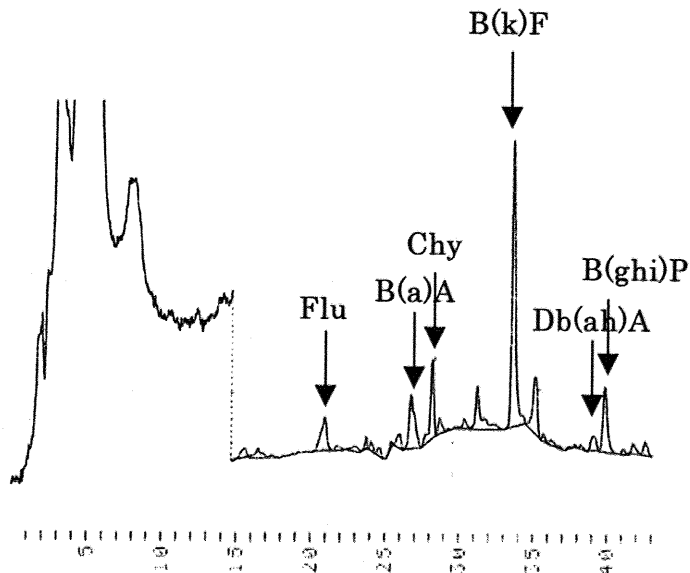


Fig.A-6-2 Chromatogram of measurement of PAHs in air sample with method 1.

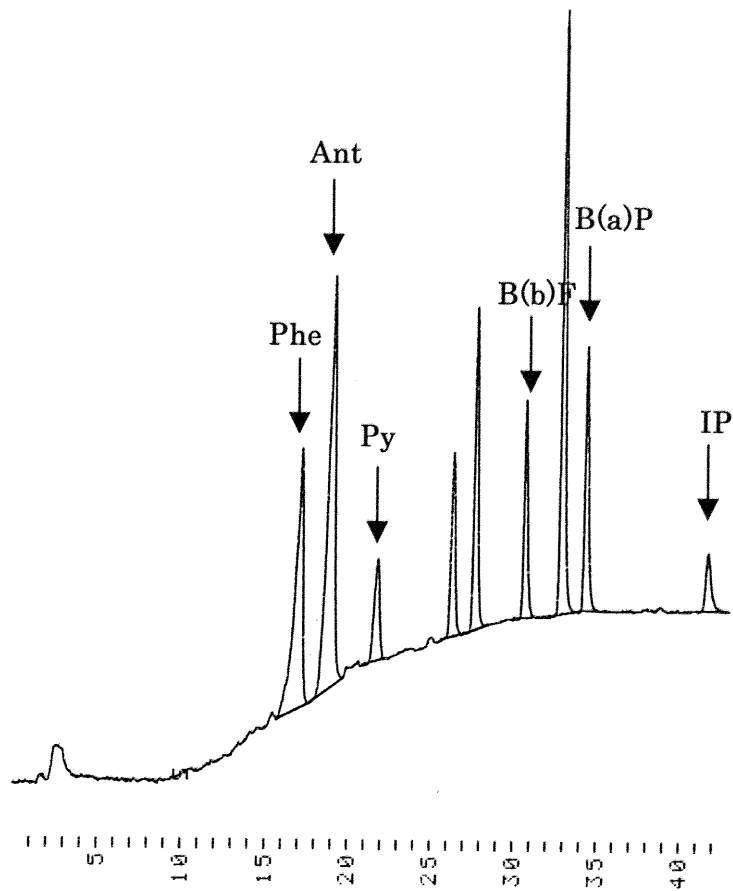


Fig.A-7-1 Chromatogram of measurement of PAHs standard with method 2.

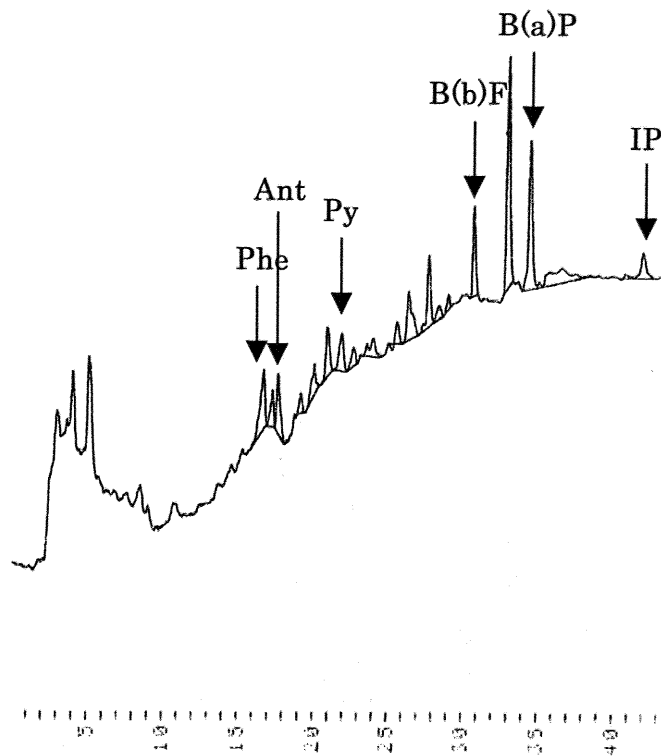


Fig.A-7-2 Chromatogram of measurement of PAHs in air sample with method 2.

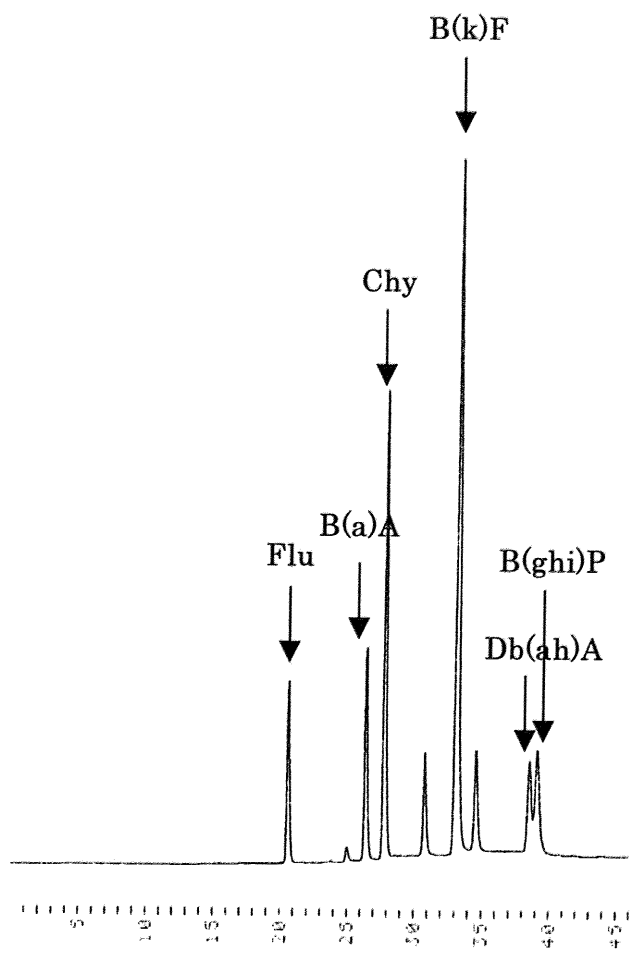


Fig.A-8-1 Chromatogram of measurement of PAHs standard with method 1.

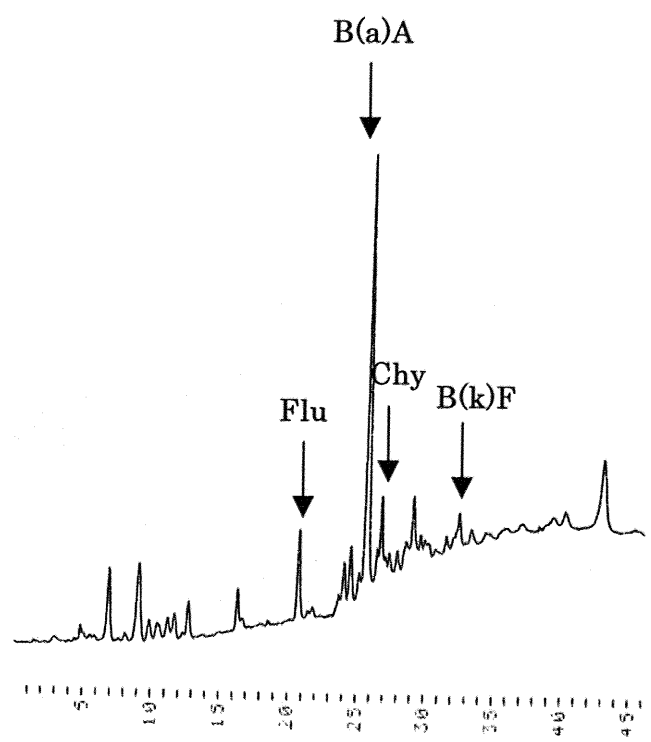


Fig.A-8-2 Chromatogram of measurement of PAHs in food sample with method 1.



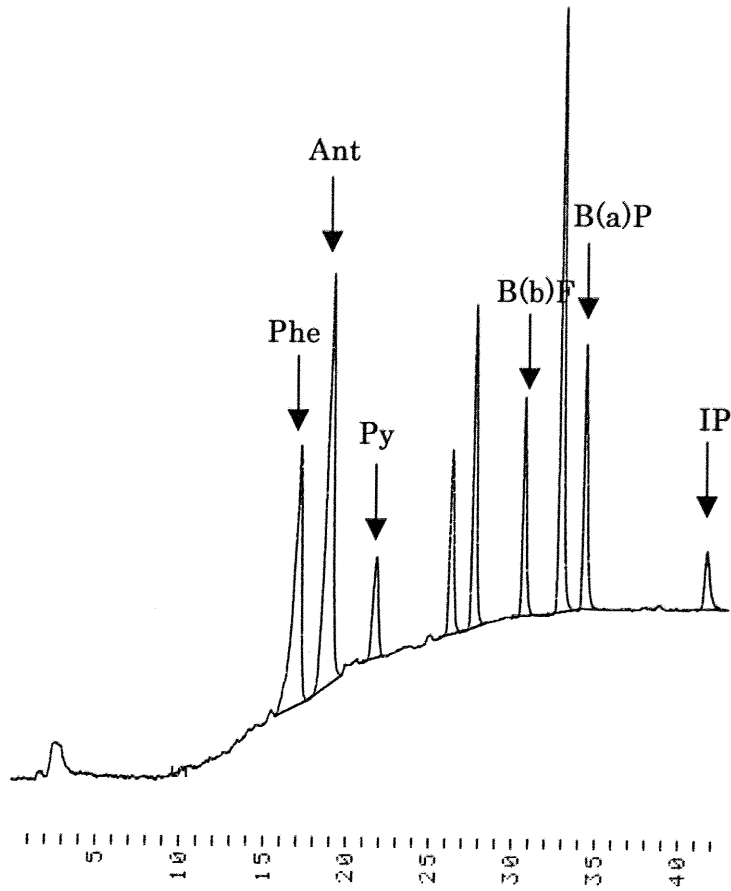


Fig.A-9-1 Chromatogram of measurement of PAHs standard with method 2.

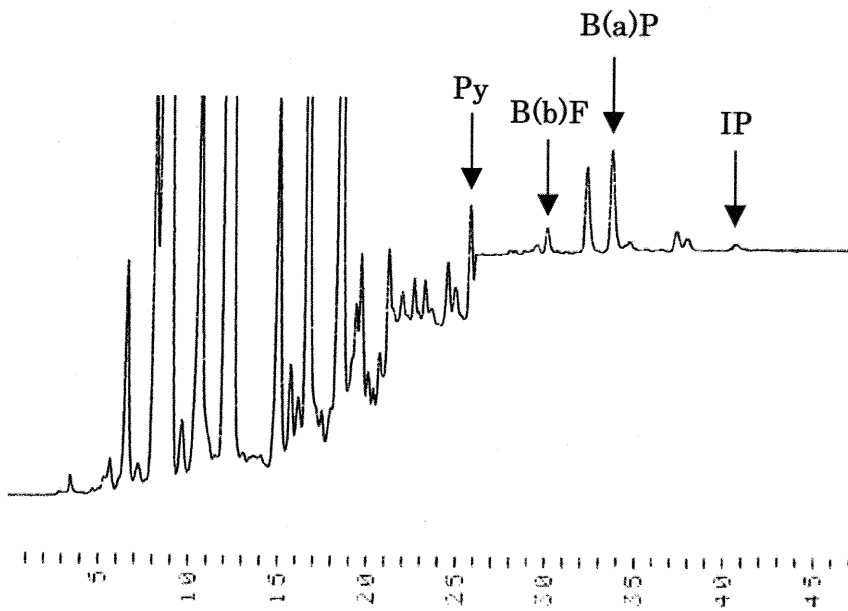
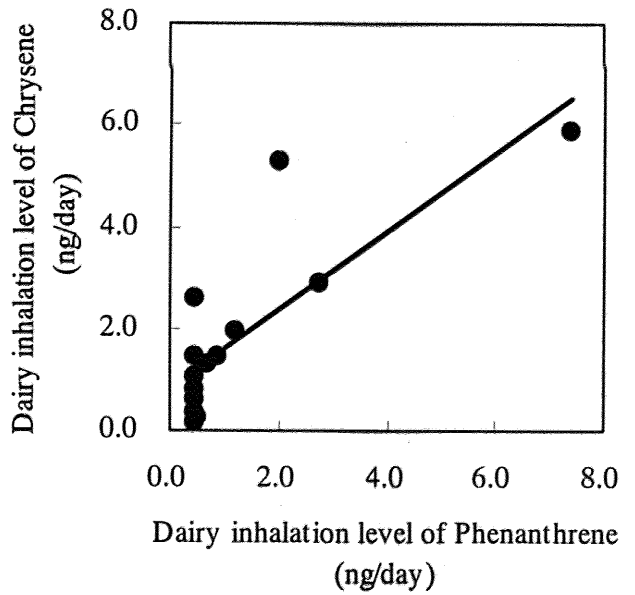
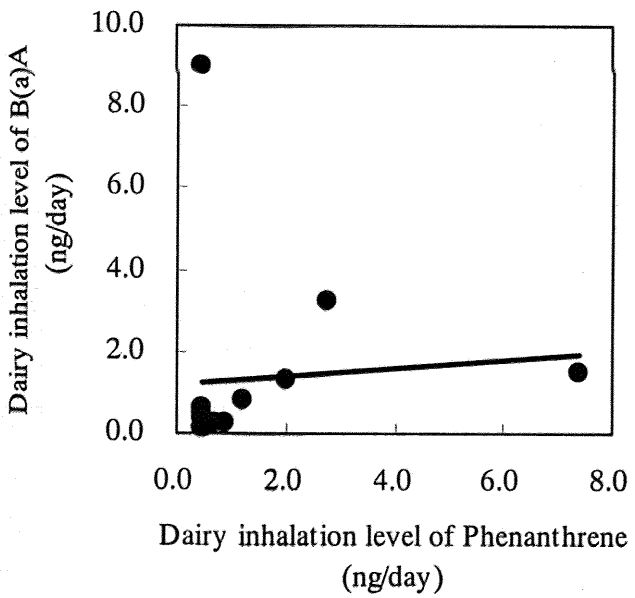
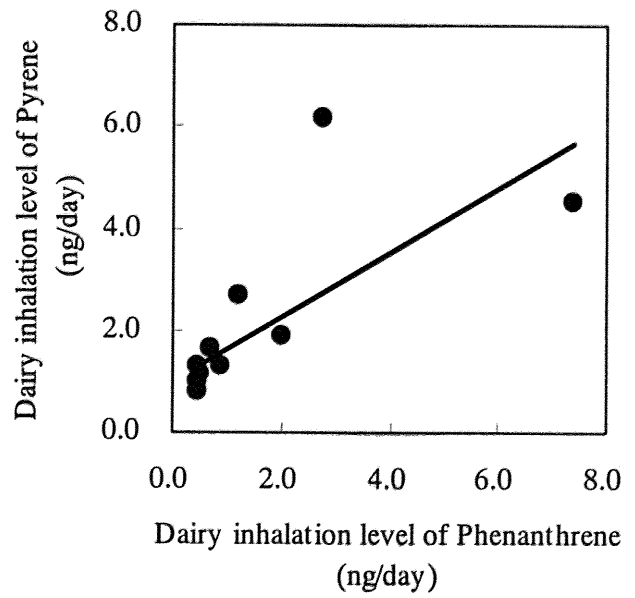
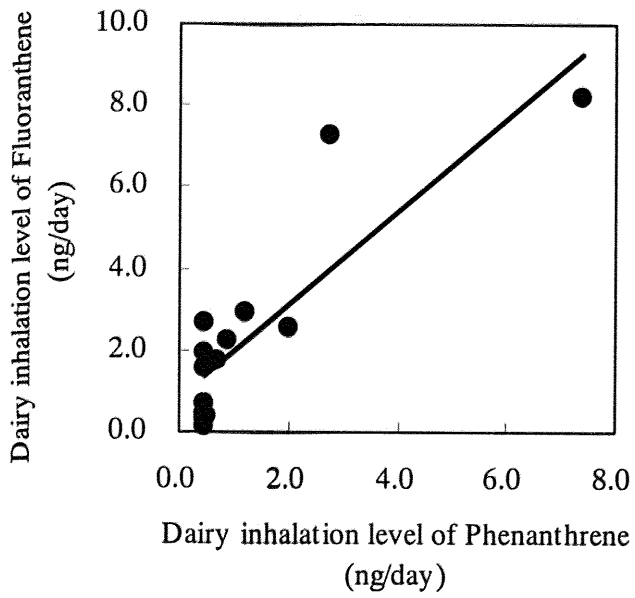


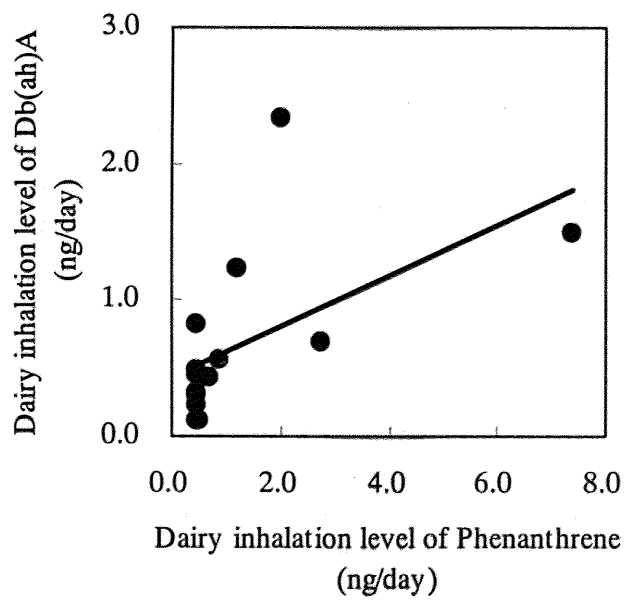
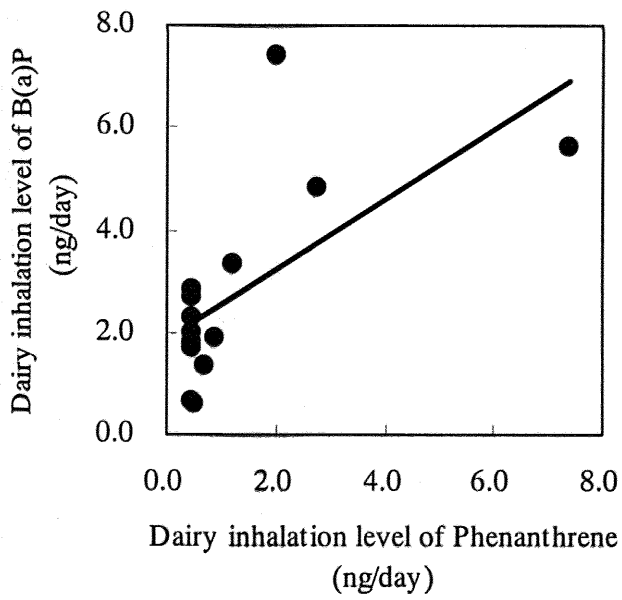
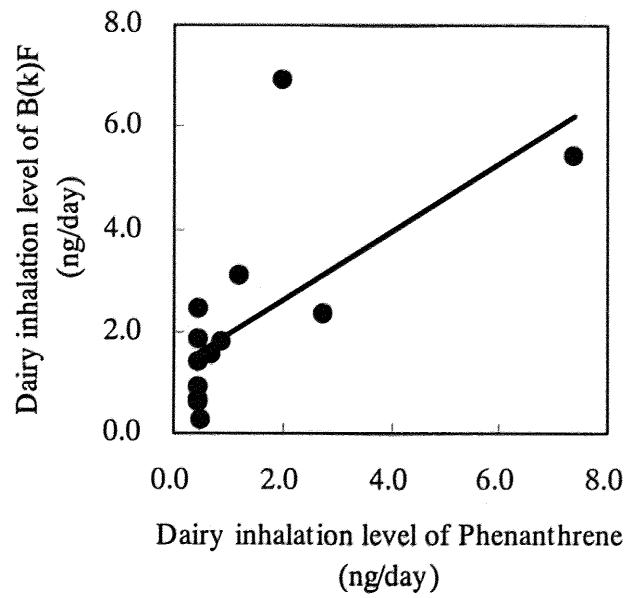
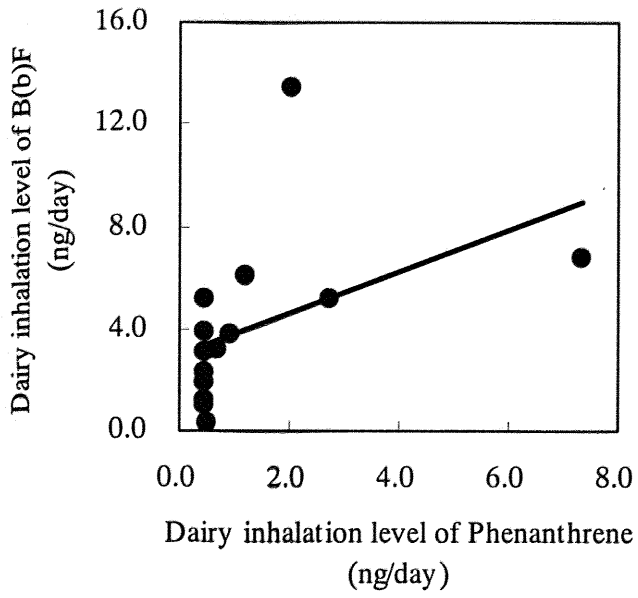
Fig.A-9-2 Chromatogram of measurement of PAHs in food sample with method 2.

A-10 Results of questionnaire.

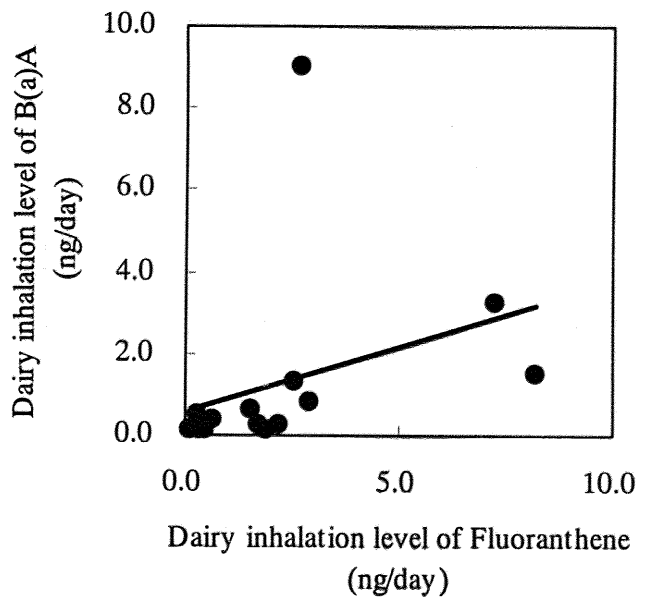
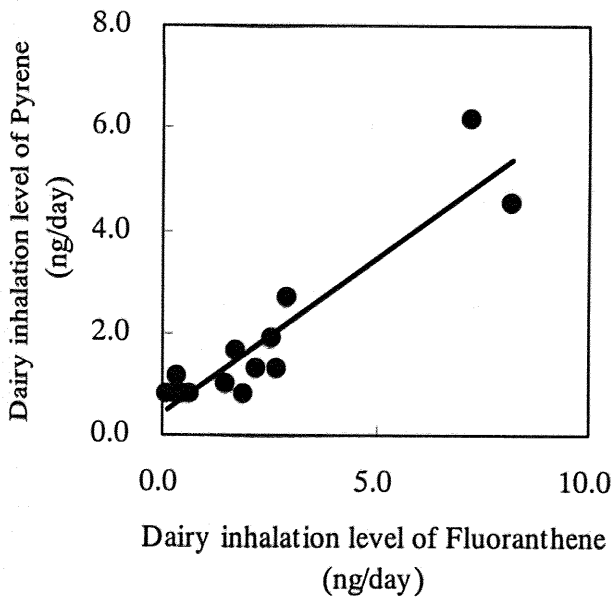
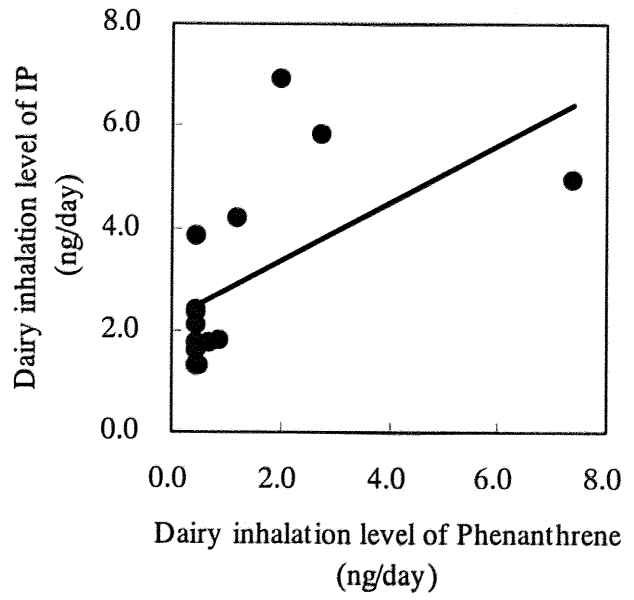
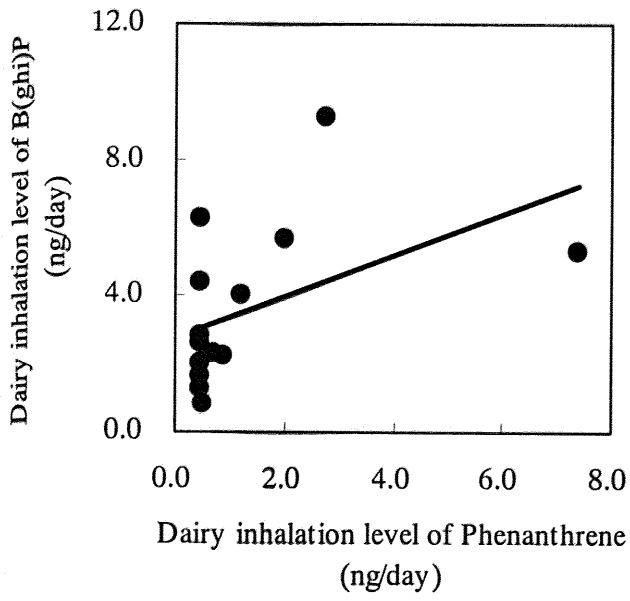
No.	age	height (cm)	weight (kg)	BMI	smoking history	food (g)	urine (mL)	dietary menu	time spent in doors (hr)	passive smoking
1	28	163	53	19.9	×	1915	752	パン、照り焼きチキン、ポテトサラダ、つけもの、ライス、パスタ、キャベツ、きゅうり、ハンバーグ、ポテト、お茶、コーヒー	75	×
2	30	170	59	20.4	×	1400	586	レズンカツ、ヨーグルト、りんご、から揚げ、ライス、炒飯、ハラス、焼肉弁当、ヨーグルム、かみ、ビスケット、コーヒー	83	×
3	24	166.5	57	20.6	×	2055	1276	サラダ、食パン、牛乳、ヨーグルト、焼きそば、炒飯、フランクフルト、チキン、きんぴらごぼう、ライス、味噌汁、ポテト炒飯、紅茶	83	×
4	22	168	55	19.5	×	1835	646	お好み焼き、ワッフル、そば、肉、豆乳、ヨーグルト、乳飲料、ステーキ	79	×
5	23	171	53	18.1	×	3275	1876	パン、コンビニ弁当、炒飯、ミントかみ、水、お茶、野菜ジュース	79	×
6	25	183	120	35.8	×	4880	3176	白米、玉子、納豆、ヨーグルト、マック炸鸡、チズカツ、かみ、フライドポテト、白米、から揚げ、菓子、おにぎり、水、ハチカ、緑茶	92	×
7	24	158	48	19.2	○ (former)	2015	1136	ご飯、お味噌汁、鶏肉、スパゲッティ、ほうれん草の胡麻和え、豚肉炒め物、ほっけ、小ろん包、豚汁、漬物、お茶	88	low
8	23	179	72	22.5	×	3670	1316	カツ、ハチカ、ケール、マトレーヌ、キハダ、チズ、ハム、トマト、牛乳、弁当、お茶、野菜ジュース、発酒、クッキー、チョコ、スナック、豆乳	96	×
9	25	173	62	20.7	×	1480	856	白米、のり、弁当、チョコ、コーヒー、お茶	92	×
10	24	180	61	18.8	×	3270	850	おにぎり、から揚げ、納豆、ゴマ、白米、水、お茶、黒酢	88	×
11	24	183	65	19.4	×	2290	754	カツ、水、マック炸鸡、炒飯、フライドポテト、チキン、餃子、スプ、みかん	88	×
12	25	170	57	19.7	×	1415	544	グレープフルーツ、カツ、とんかつ、ハムカツ、ドーナツ、カクレムコロッケ、トマト、ご飯、チョコ、紅茶、お茶	83	×
13	23	182	64	19.3	×	1805	1394	カツ、ビーフステーキ、ナス焼、卵焼き、おにぎり、トマト、焼きそば、ポテトコロッケ、みかん、チョコ、くんせい、コーヒー、炒飯	92	×
14	24	175	68	22.2	×	1690	1044	ねぎとろ丼、チズカツ、かみ、お茶	92	×
mean	25	173	64	21	-	2357	1158	-	86	-
SD	2	7	17	4	-	992	664	-	6	-



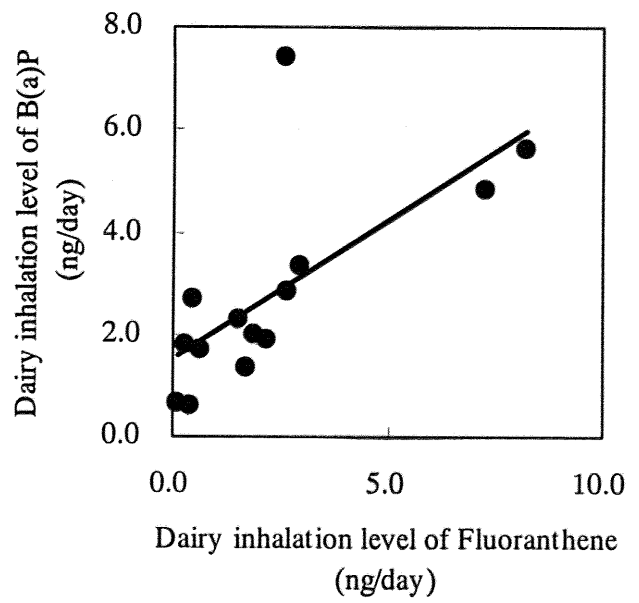
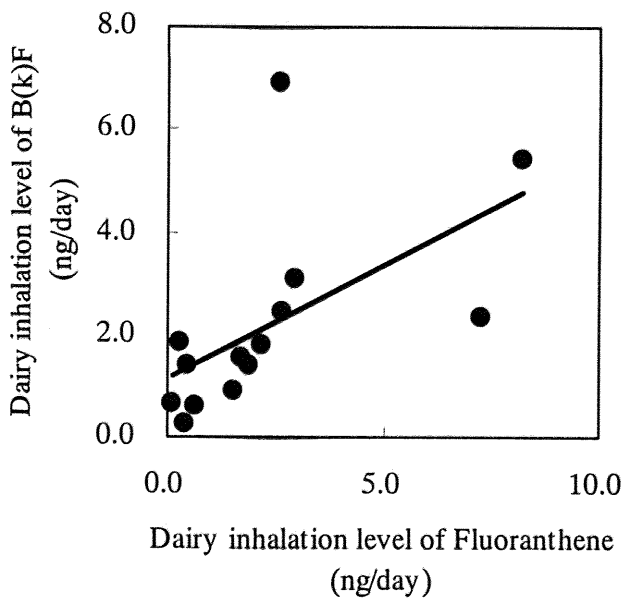
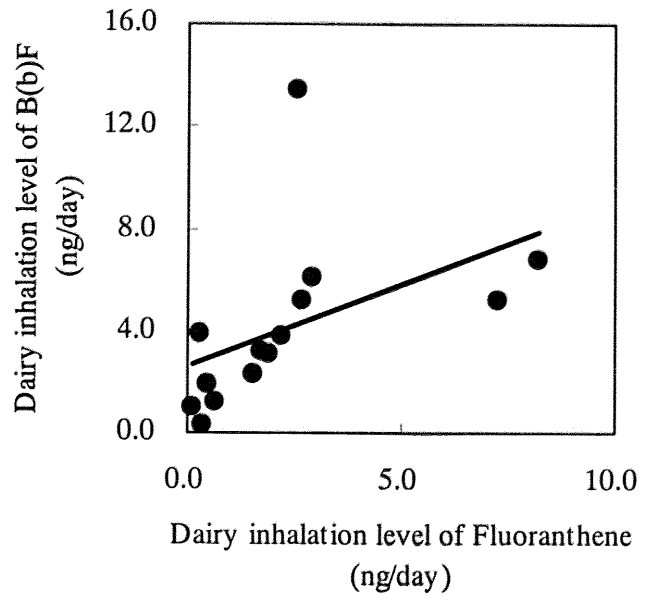
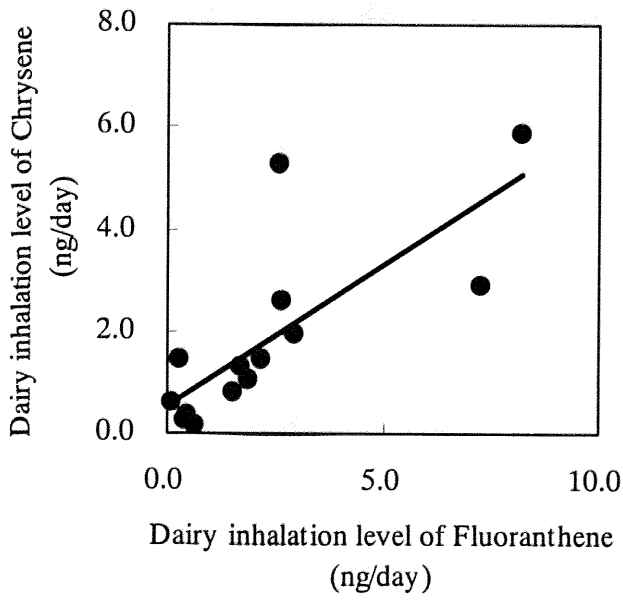
A-11-1 Correlations between PAHs (n=14).



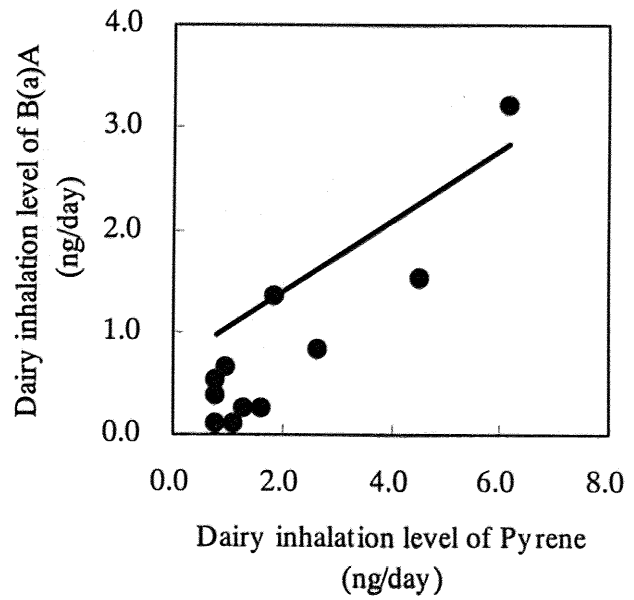
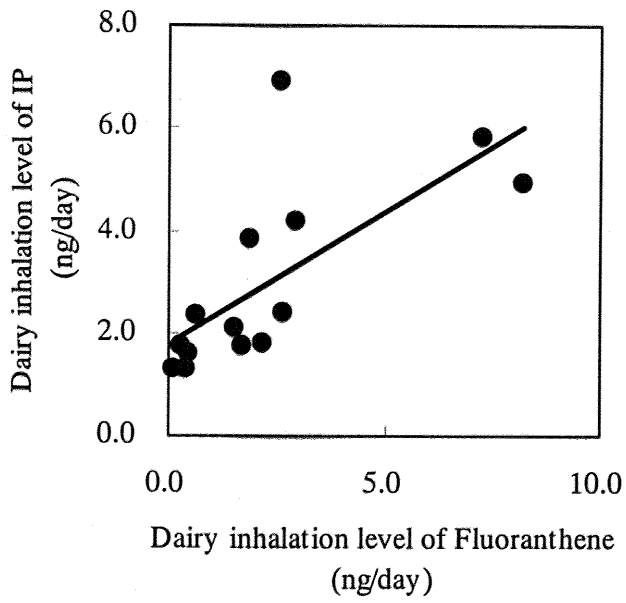
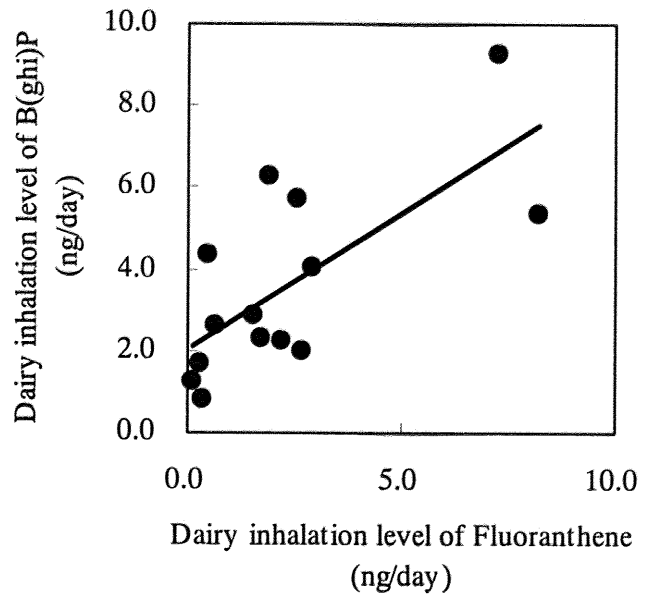
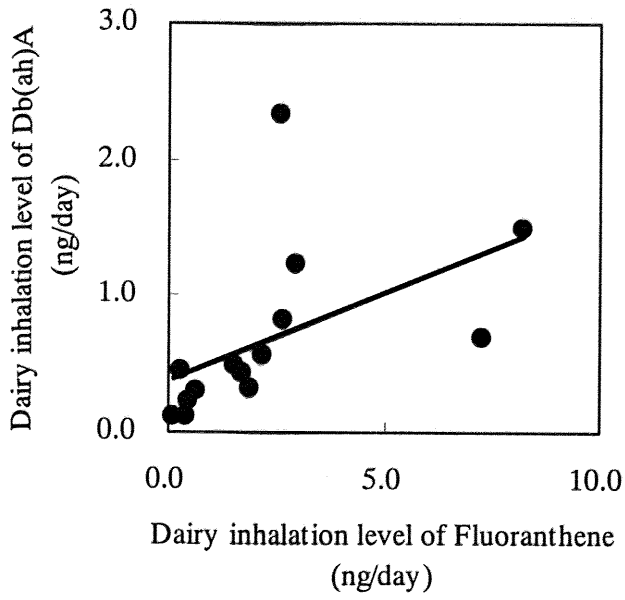
A-11-2 Correlations between PAHs (n=14).



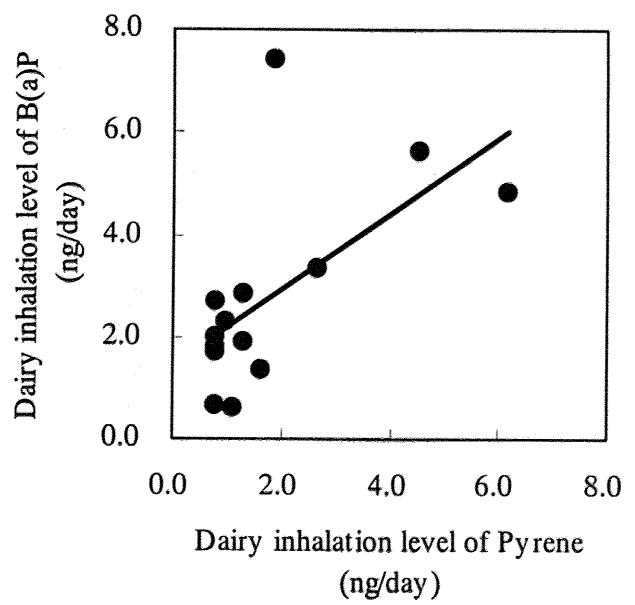
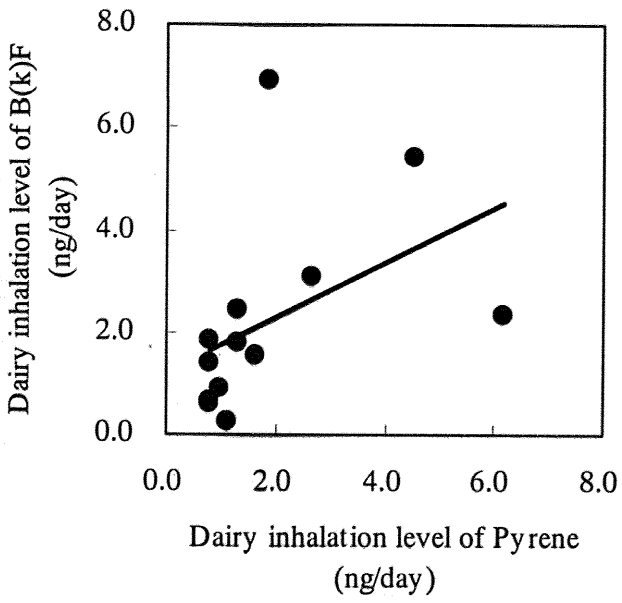
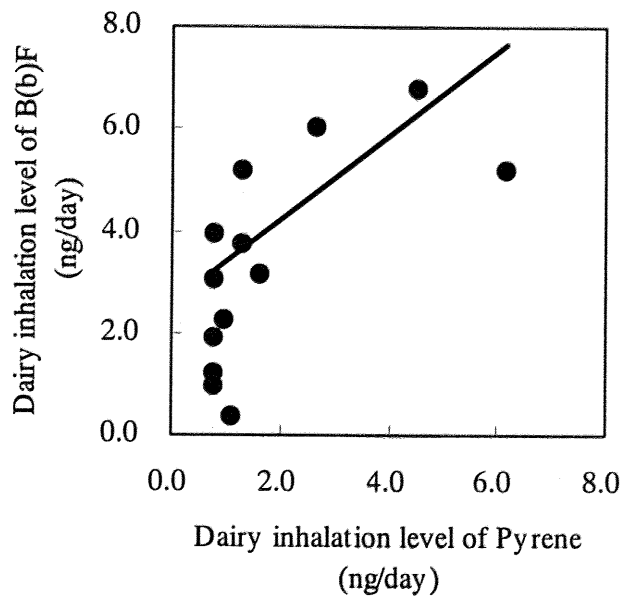
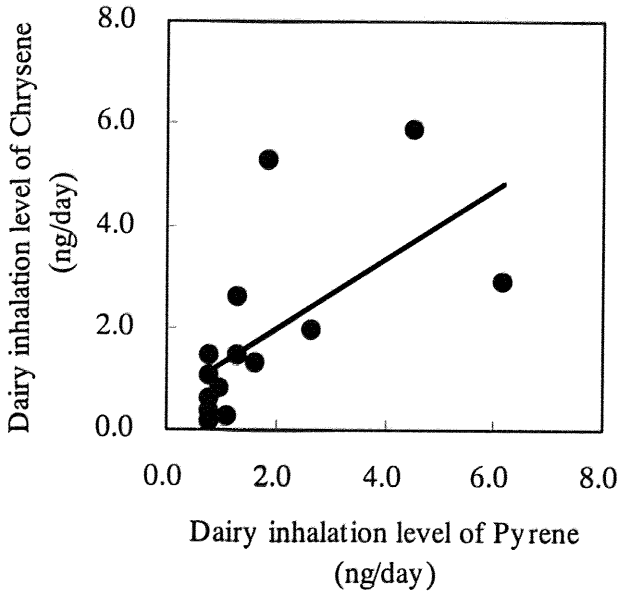
A-11-3 Correlations between PAHs (n=14).



A-11-4 Correlations between PAHs (n=14).

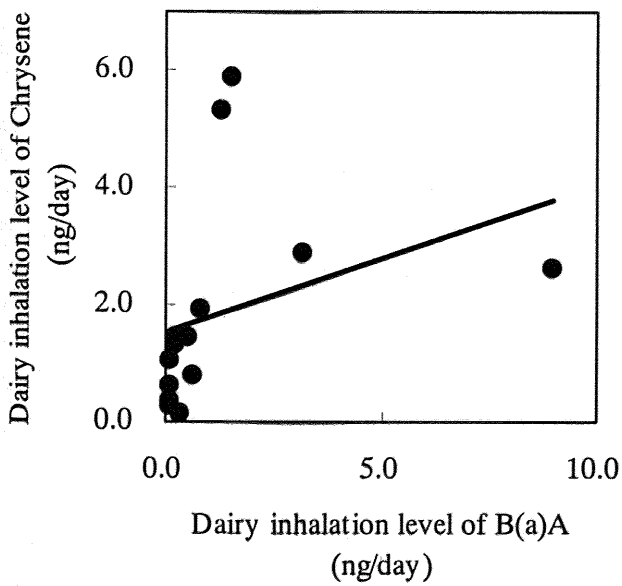
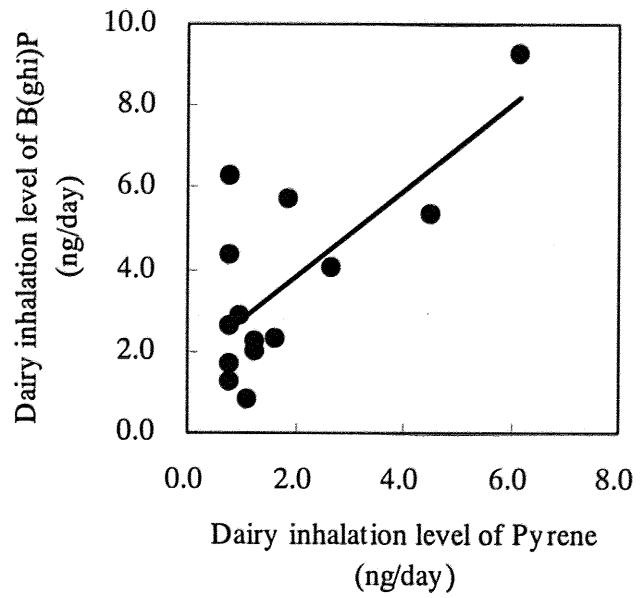
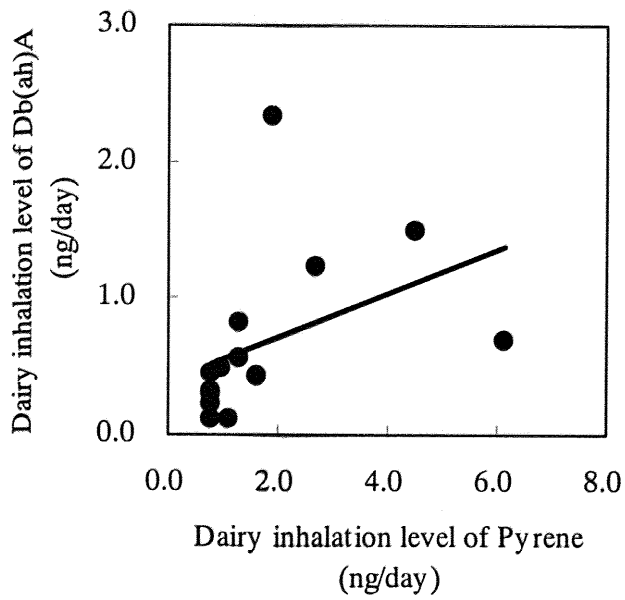


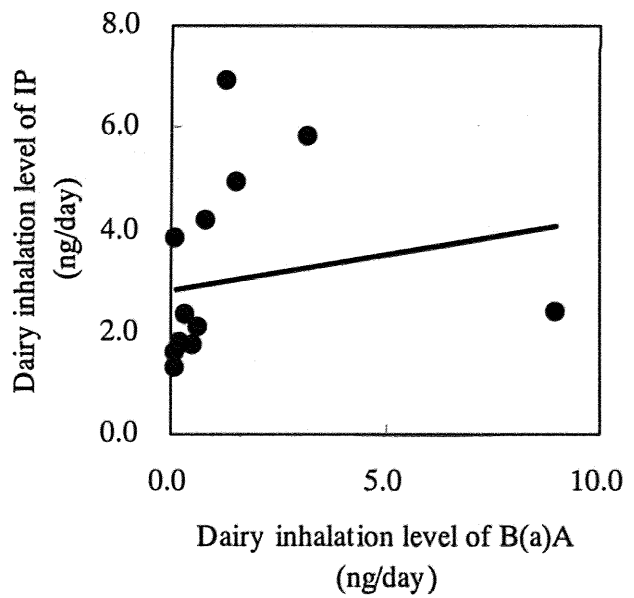
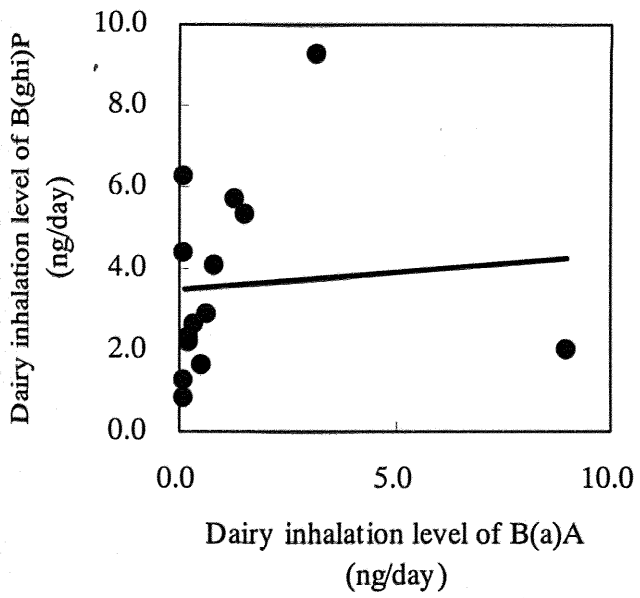
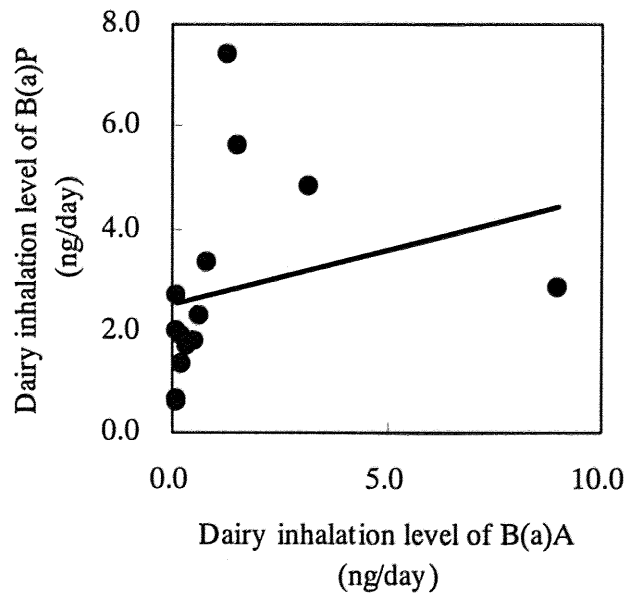
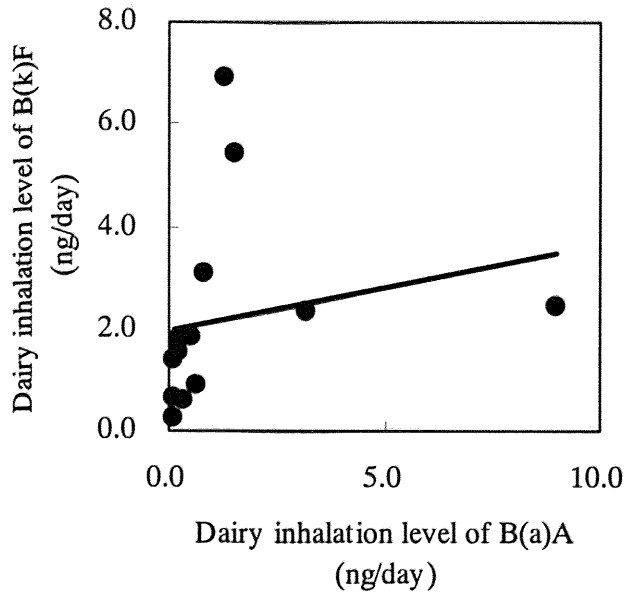
A-11-5 Correlations between PAHs (n=14).



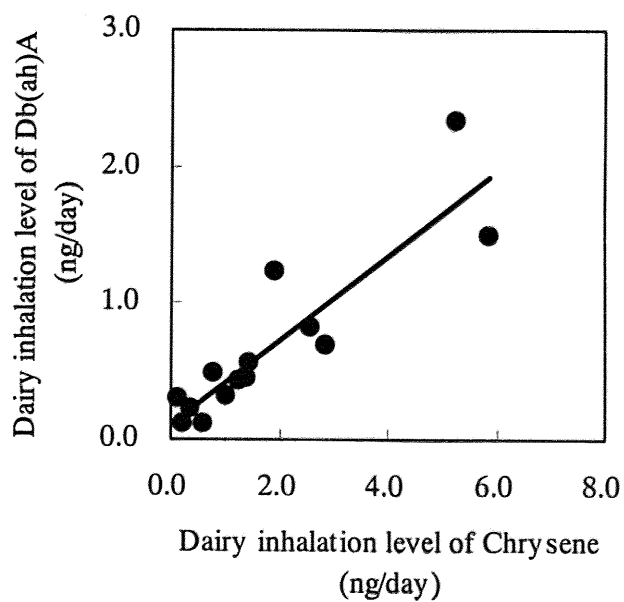
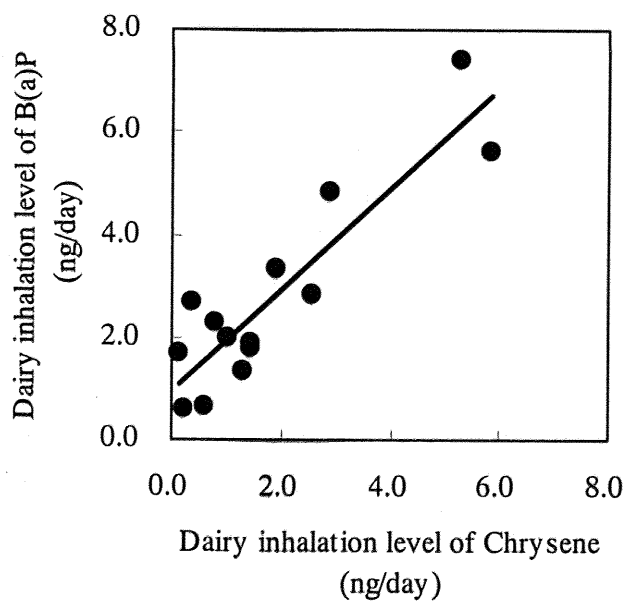
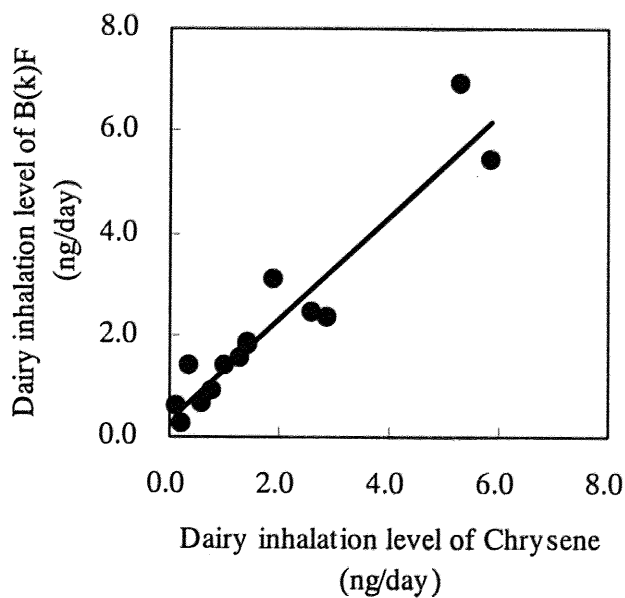
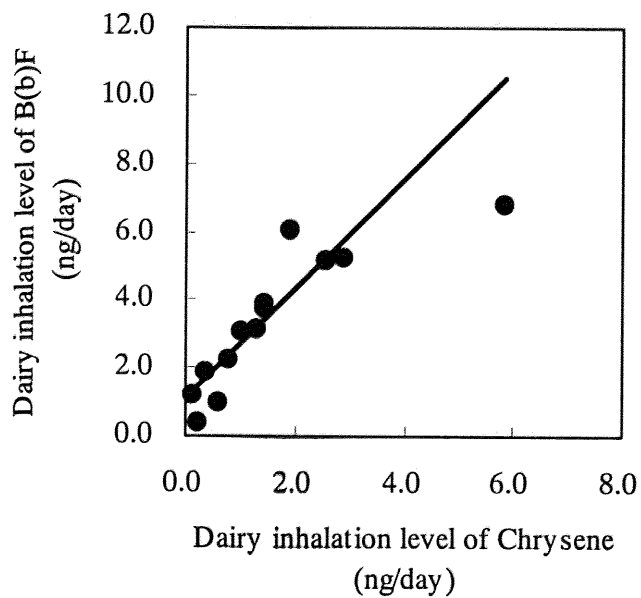
A-11-6 Correlations between PAHs (n=14).



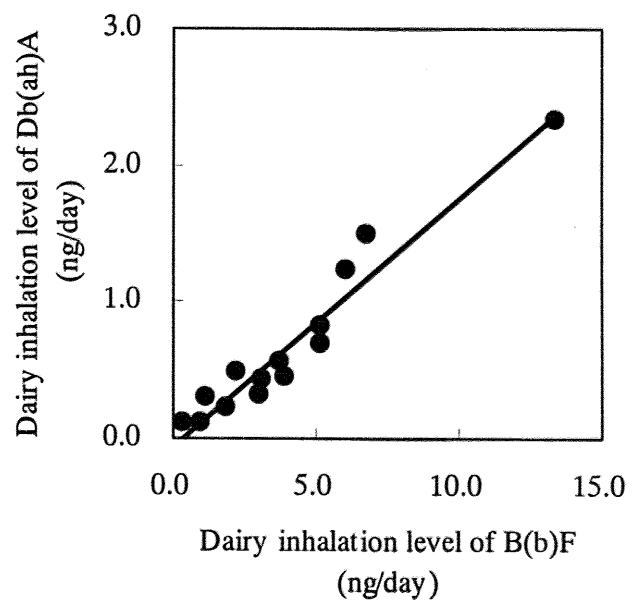
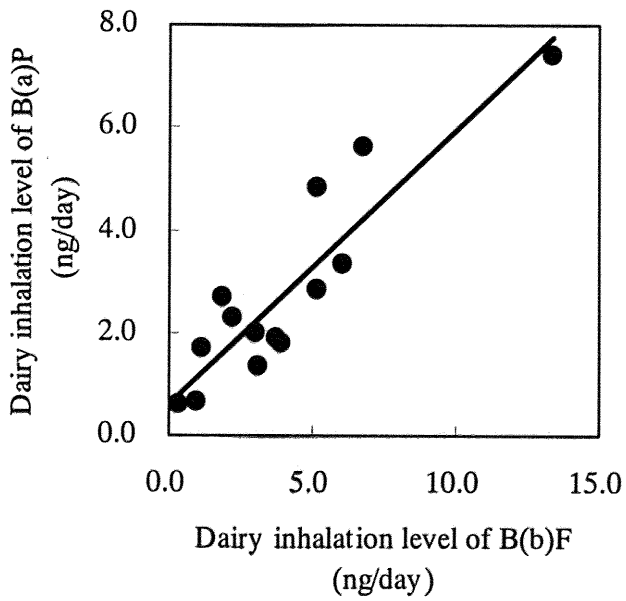
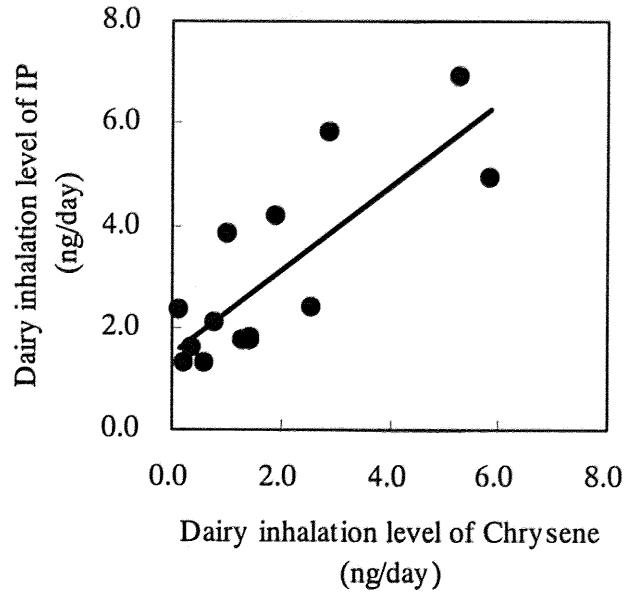
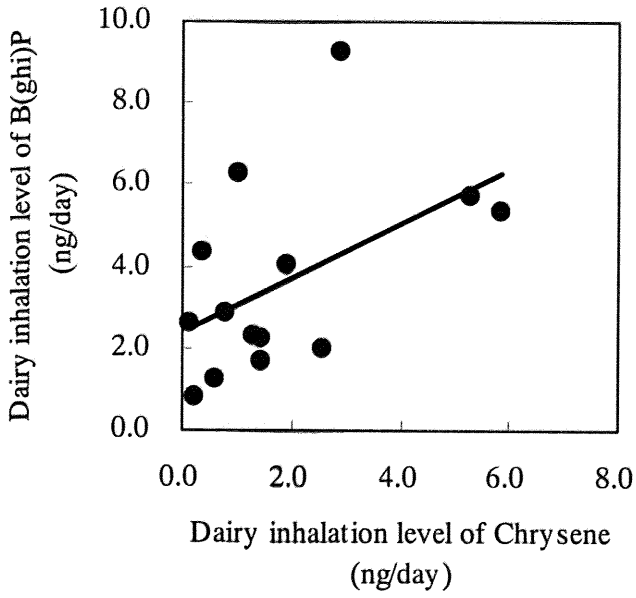




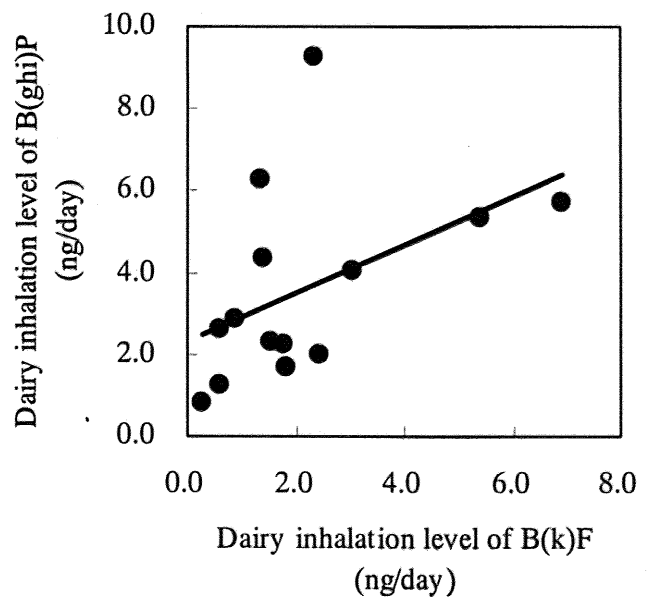
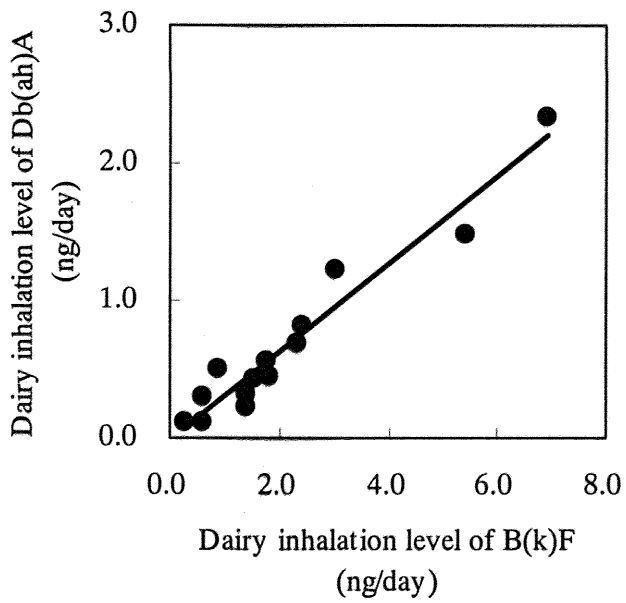
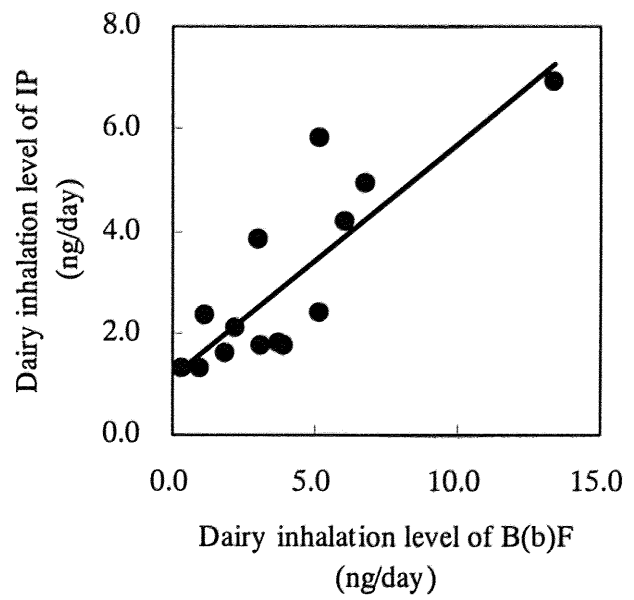
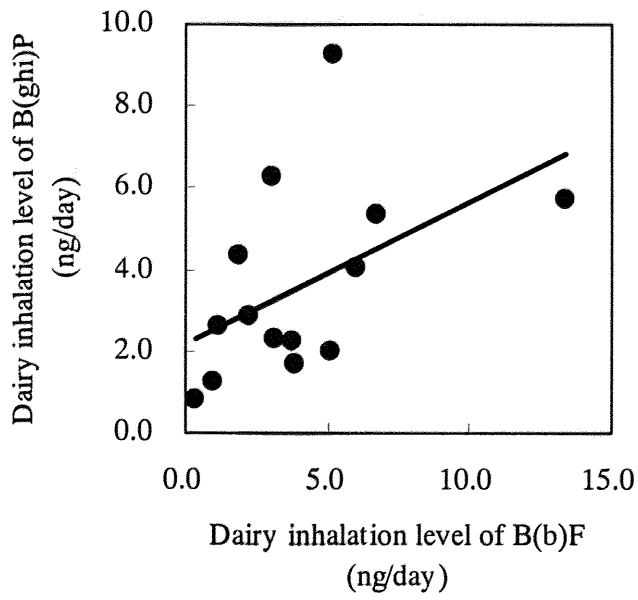
A-11-8 Correlations between PAHs (n=14).



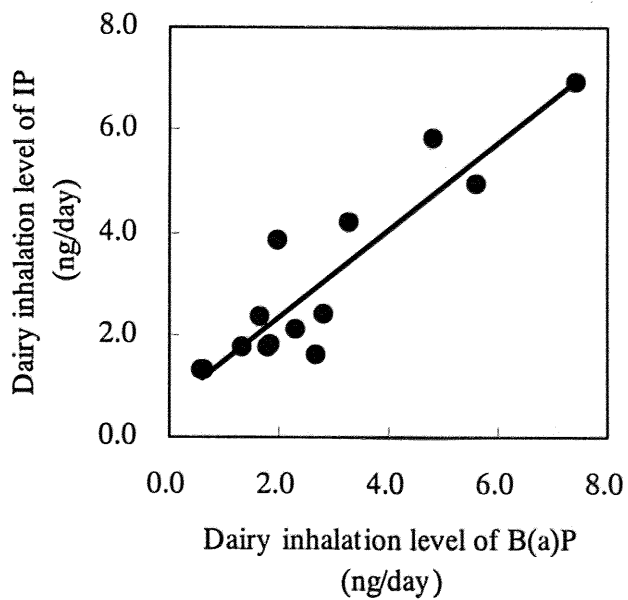
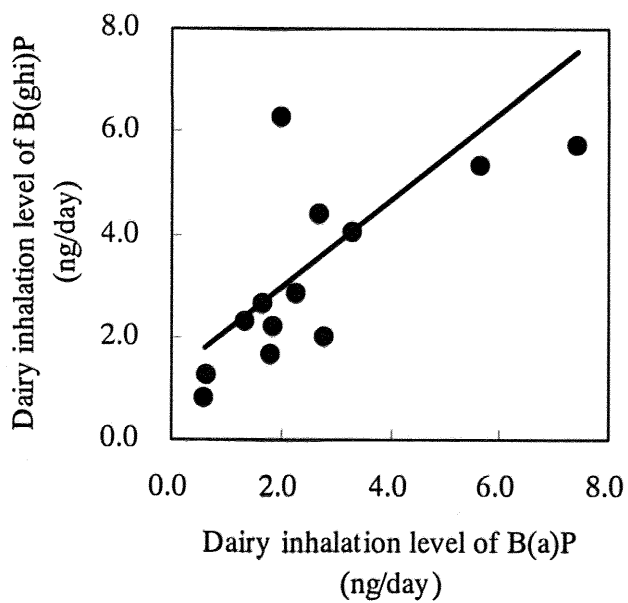
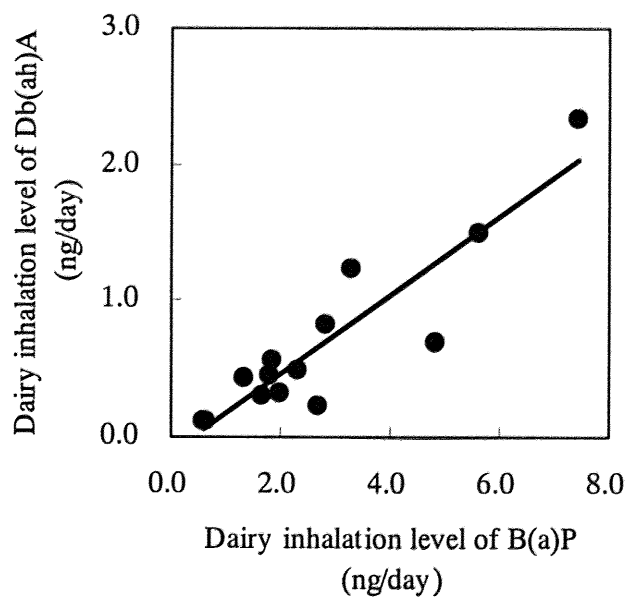
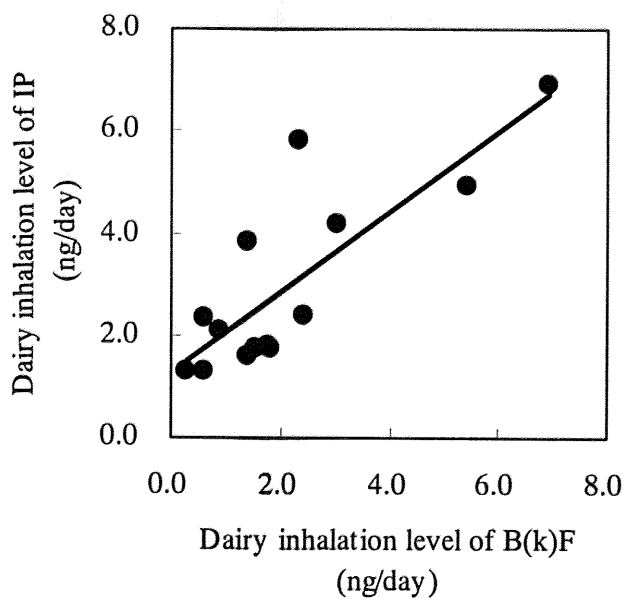
A-11-9 Correlations between PAHs (n=14).



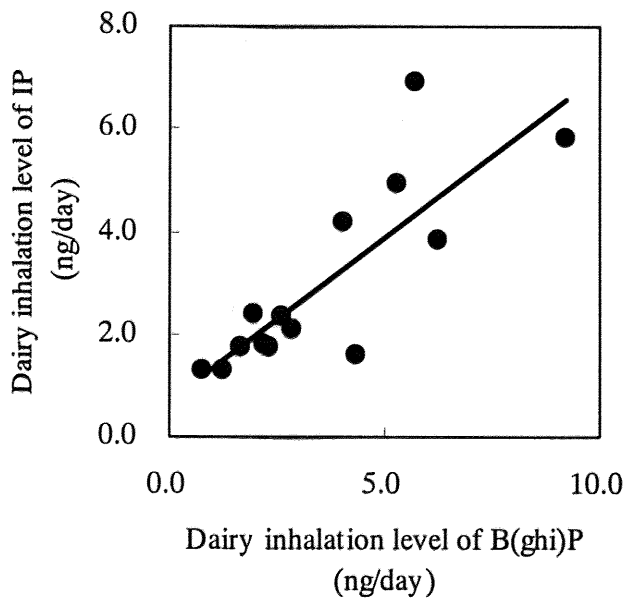
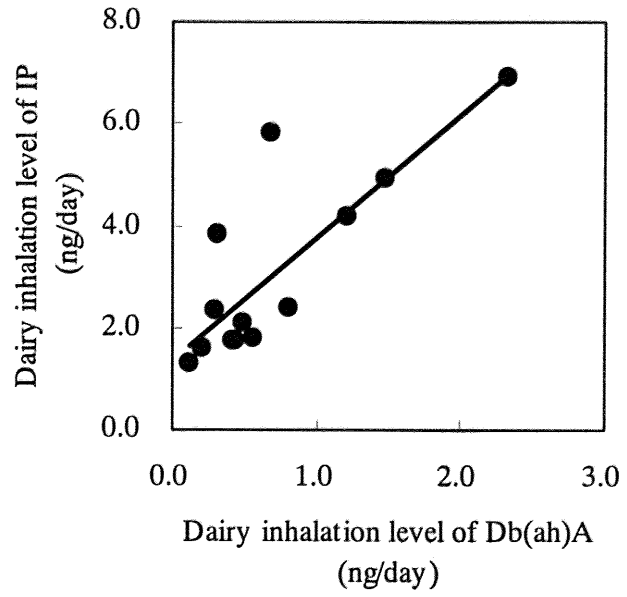
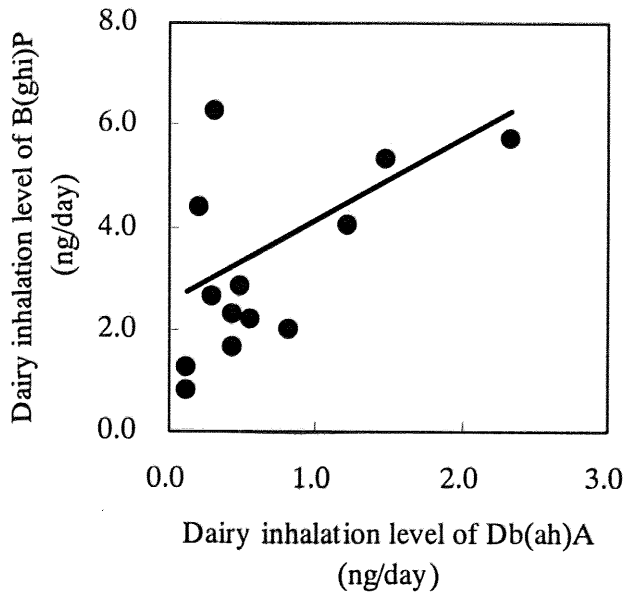
A-11-10 Correlations between PAHs (n=14).



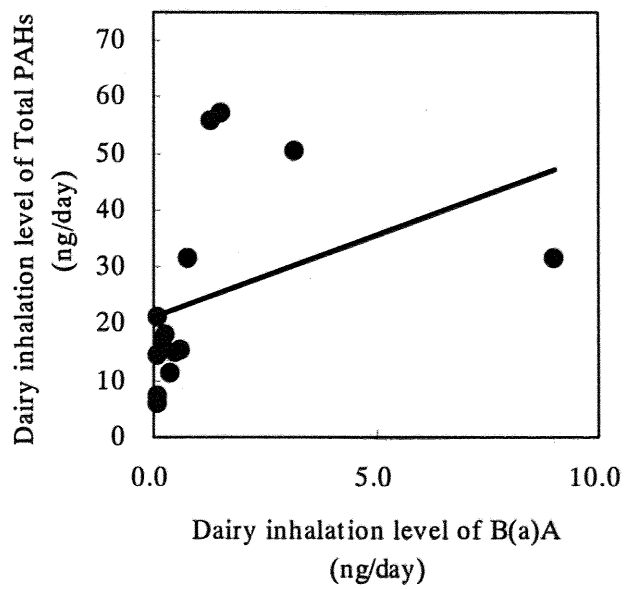
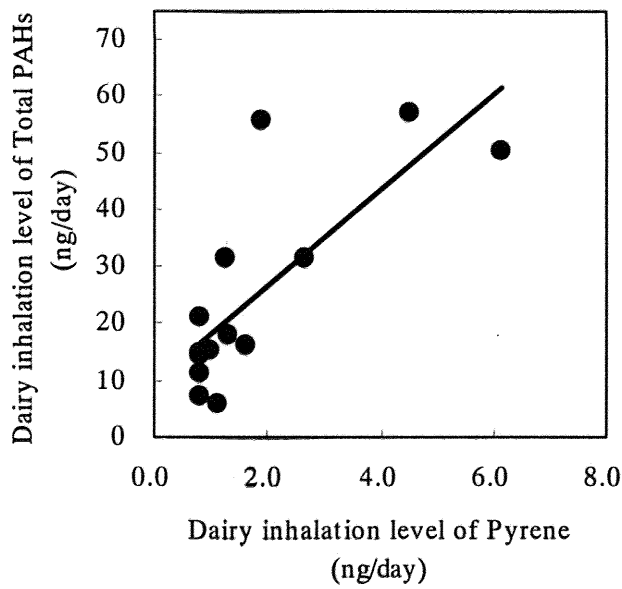
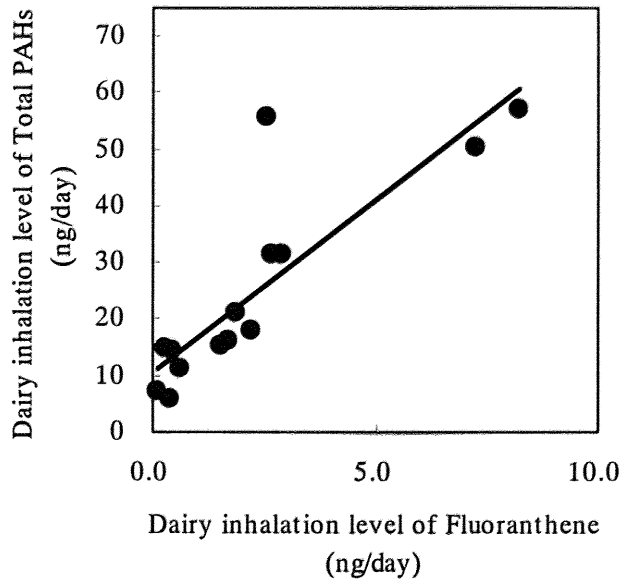
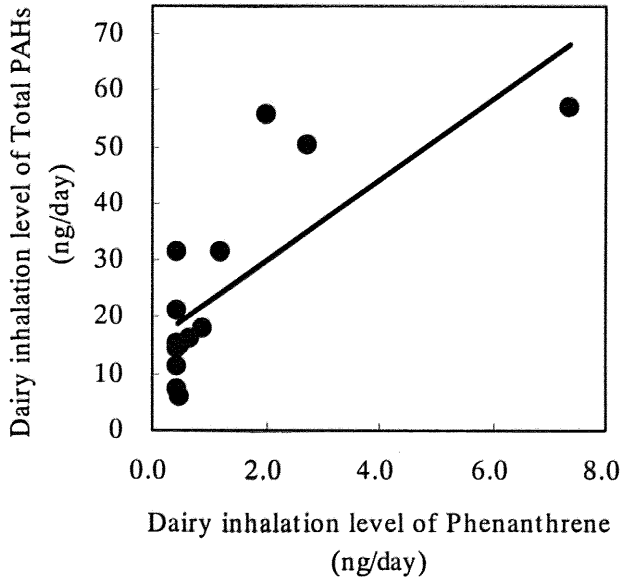
A-11-11 Correlations between PAHs (n=14).



A-11-12 Correlations between PAHs (n=14).

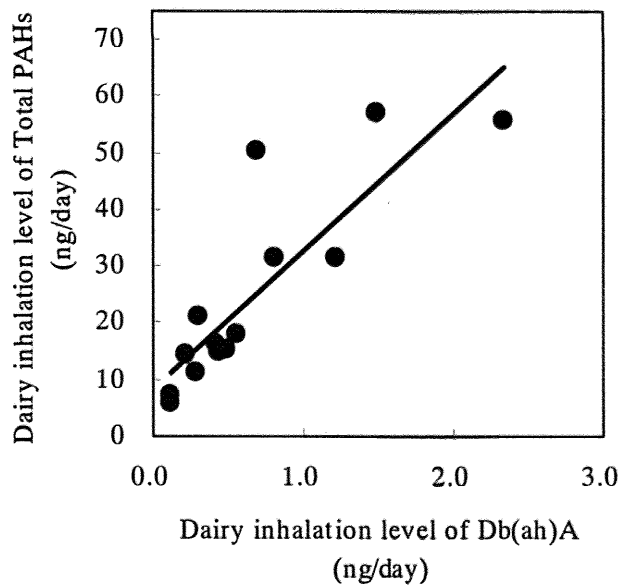
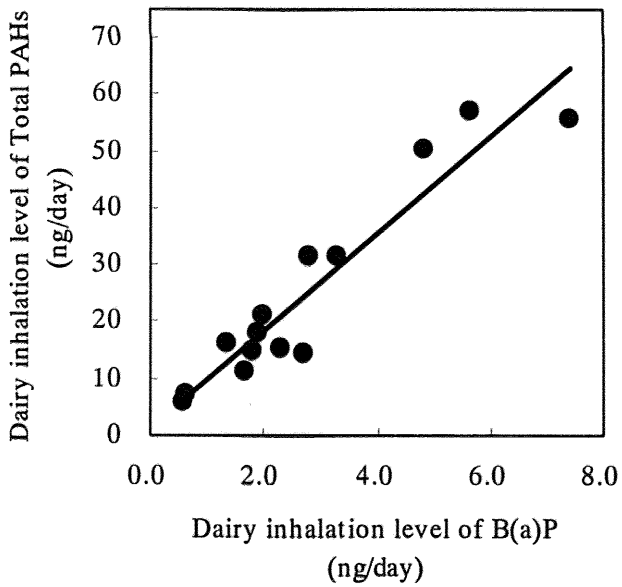
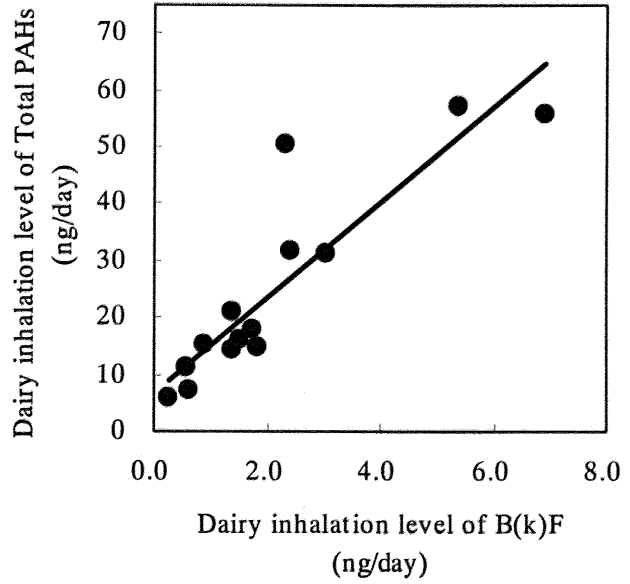
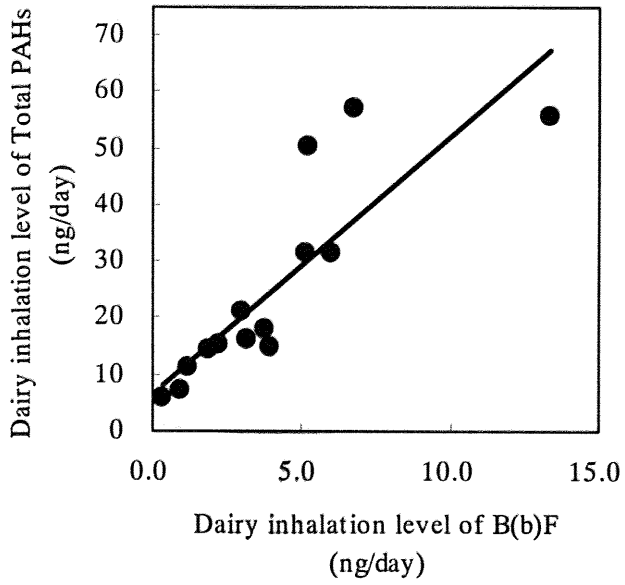


A-11-13 Correlations between PAHs (n=14).

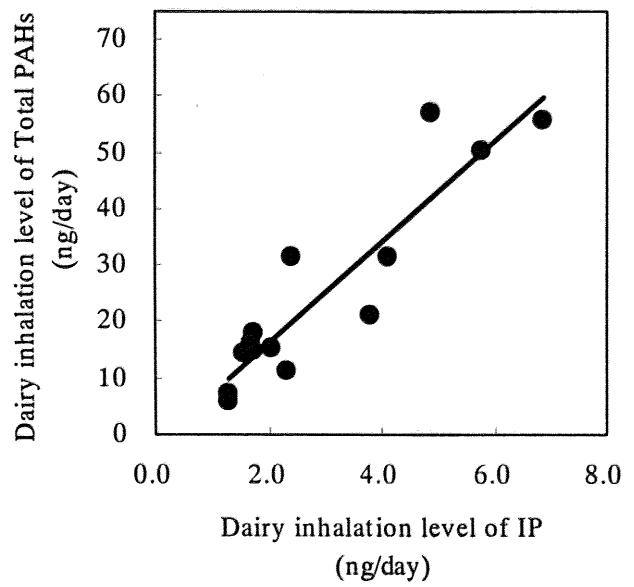
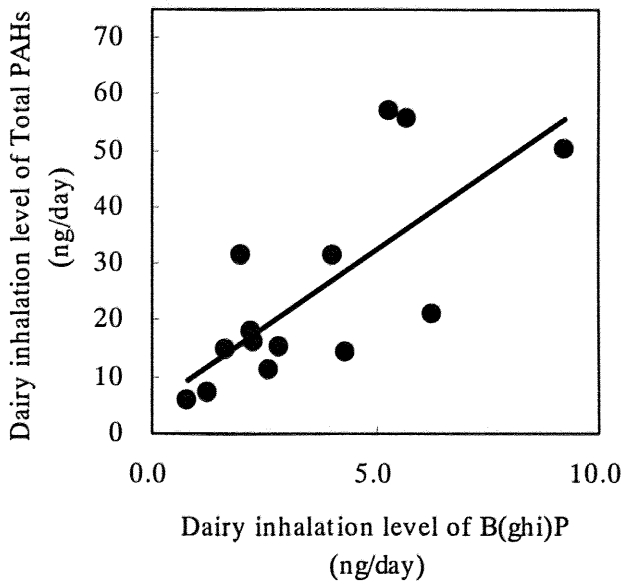


A-11-14 Correlations of dairy inhalation level of total PAHs with each PAHs (n=14).

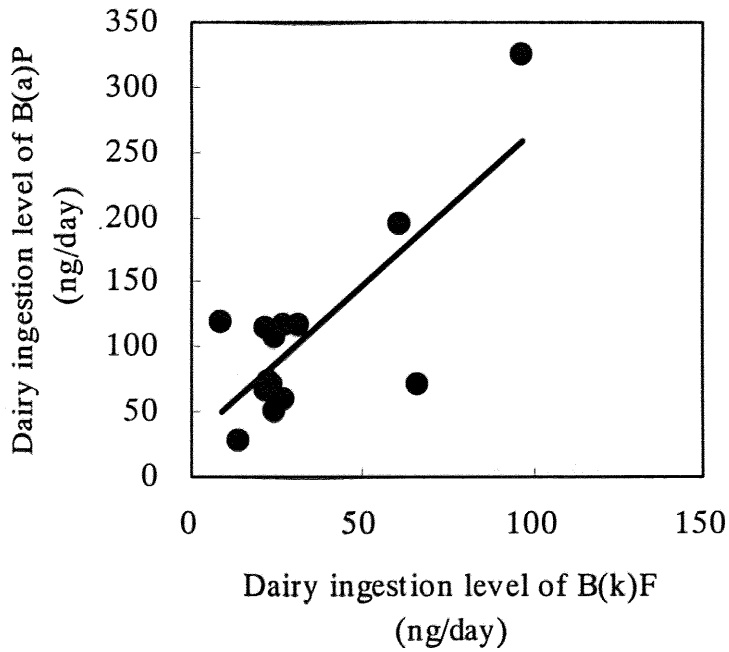
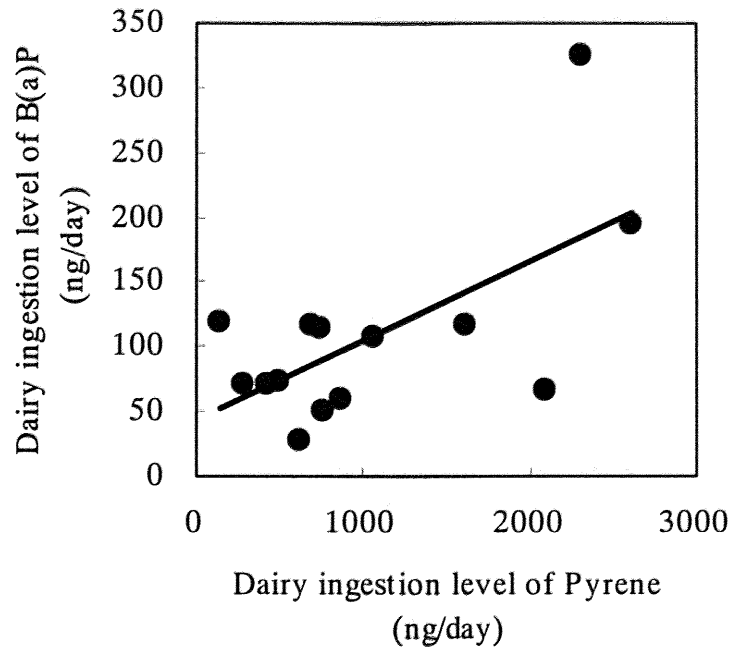
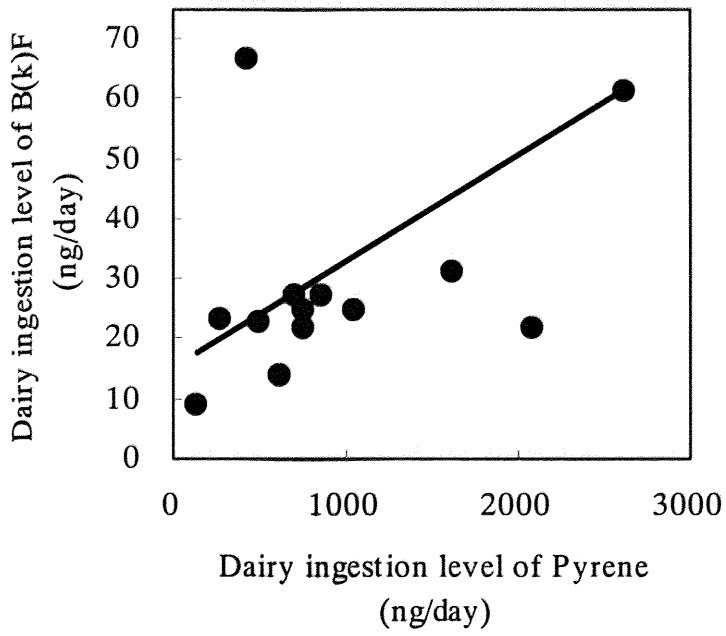




A-11-15 Correlations of dairy inhalation level of total PAHs with each PAHs (n=14).



A-11-16 Correlations of dairy inhalation level of total PAHs with each PAHs (n=14).



A-12 Correlations between dairy dietary ingestion level of PAHs (n=14).