

日本人の食事からの多環芳香族炭化水素の調査

館野 つや子, 影山 百合子

(平成 16 年 9 月 30 日受理)

Investigation of Polycyclic Aromatic Hydrocarbons in Meals of Japanese

TATENO, Tsuyako and KAGEYAMA, Yuriko

(Received on September 30, 2004)

キーワード：多環芳香族炭化水素，1年間36日の食事，摂取量

Key words : Polycyclic aromatic hydrocarbon, Meals of thirty six day a year, Intake

緒 言

館野らは、約30年来、野菜類^{1)~4)}、米^{5), 6)}、果物⁷⁾、魚介類^{8)~11)}、油脂類¹²⁾及び牛乳^{13), 14)}等の各食品からの benzo(a)pyrene その他多環芳香族炭化水素類 (以下 PAHと略す) の分析法の検討及び定量を行ってきた。また、食事からの benzo (a) pyrene の1日摂取量の推定¹⁵⁾も行った。

今回は、今までに確立した PAH の各食品群別 (①肉類、魚介類及び野菜類^{1)~4)}、②穀類^{5), 6)}、③牛乳^{13), 14)}、④スープ及びヨーグルト¹⁶⁾) の分析方法を用いて、1年間36日分 (1ヶ月3日間、1日3食分) の食事について、1日3食分の食事献立をそれぞれ食材別に分類し、上記分析法により、1日9種類の PAH 摂取量の推定を試みた。その結果を報告する。

分析方法

1. 試 料

食事試料は、某女子大学生寮による食事献立 (22才女子、体重 50 kg を基準とした、1日摂取カロリー 1960 Kcal、たんぱく質 60 g 及び脂肪 43~54 g) を対象とした。すなわち、朝食及び夕食は同女子大学生寮により提供を受けたもので、1998年9月~1999年8月までの12ヶ月間、各月当たり3日分ずつを無作為に抽出して試料とした。

学生寮では、昼食を実施していないため、当然、昼食

分の栄養成分摂取量は1日の栄養成分摂取量から差し引かれている。そのため、上記の1日の栄養成分摂取量 (カロリー、たんぱく質及び脂肪) が満たされるよう、1日ごと不足している昼食分の栄養成分を算出し、それに合わせた食物を、コンビニエンスストアより購入し、昼食分の試料として加えた。

以上、1日分の食事を次の①~⑤群に分類して、分析を行った。

- ①群： 肉類及び魚介類
- ②群： 野菜類及び果物類
- ③群： 穀類 (飯、パン及びスパゲティー等)
- ④群： 牛乳及び乳製品 (牛乳、ヨーグルト及びチーズ等)
- ⑤群： スープ類 (みそ汁及び中華スープ等)

(①群~③群では、実際の献立において、例えば、チャーハン、カレー、スパゲティー及び挽肉と野菜の炒め物等のものでは、その食材が混合し、分別が困難なため、混合し、①群~②群とした。また、⑤群は、①群~③群の食材が献立上入っていることがあり、その食材は分析の便宜上から①~③群に分類した。

食事献立 (1999年5月11日) 例として1日分の食事試料及び食材の分類及び重量等を Table 1 に示した。

2. 試 薬

n-ヘキサン (HPLC 用) 及びジエチルエーテル (残農薬、PCB 試験用) は、いずれも和光純薬工業 (株) 製を用いた。他の試薬は前報^{9)~11)}と同じものを用いた。

Table.1 A sample of Menus, Material weights, and Grouping for Analysis
(Sample 11day May 1999year)

Menu	Foods	Wight(g)	Group
Breakfast	Rice	210	③
	MiSo soup		②
	Turnip-Leaves		③
	Fu	135	⑤
	Soup-miso	20	②
	Vienna and	40	②
	Vegetable oil	20	②
	Cabbage	20	②
	Carrot	30	②
	Broccoli	20	②
	Onion	20	②
	Cucumber	20	②
Lunch	Mustard-dress	20	②
	Turnip		②
	Vinegar, Salt, Sugar, Masterd	200	④
	Milk		
	Spaghetti	70	③
	Spaghetti	20	③
	Tomato	30	③
	Onion	15	③
	Ground meat		③
	Potato salad	30	②
	Tomato Sauce, Oil		②
	Potato	20	②
Supper	Carrot	20	②
	Cucumber		②
	Gree peas		②
	Mayonnaise	130	④
	Yogurt		
	Rice	210	③
	Boil-fish	95	①
	Medai		①
	Ginger		①
	Sugar, Shoyu		①
	Chinese-dress	20	②
	Komatsuna	20	②
	Tomato	20	②
	Cucumber	20	②
	Bean sprout	20	②
	Dried shrimp	0.5	②
	Shoyu, sesame oil, Red pepper		②
	Fruit	20	②
	Strawberrie		②
	Sumashi soup	5	①
	Hanpen	3	②
	Kaiware-daikon		②
	Soup-salt, shoyu	147	⑤

① Meats and Fishes ②Vegetables and Fruits ③Cereals (Rice, Breads and Spaghetti)
④Milk and dairy products (Milk, Yogurt and cheeses) ⑤Soup (Miso and Chinese)

3. 装置及び器具

ソックスレー抽出器及び液体抽出器その他の装置及び器具は、前報の野菜類^{1)~4)}、魚介類^{8)~11)}、米^{5), 6)}、果物類⁷⁾、牛乳^{13), 14)}、スープ及びヨーグルト¹⁶⁾の分析方法と同じものを用いた。

4. 試料の調整

1) 肉類、魚介類、穀類、野菜類及び果物等で、皿に盛付けられている献立の食材が個々にはっきりしているものは、ピンセットで①~③群に分別し、乾燥器(60~70℃)で乾燥し、粉碎したものを調整試料とした。

2) チャーハン、カレー、スパゲティー及び肉と野菜炒め物等は、食材が混合し、分別が困難なため、混合して乾燥し、粉碎したものを①群として調整試料とした。

3) 牛乳及びヨーグルトの④群及びスープ類の⑤群はそのまます料とした。

5. 抽出及びPAH分析

1) ①~③群の試料：前報の魚介類^{8)~11)}、野菜類^{1)~4)}及び穀類^{5), 6)}の分析方法に従って、乾燥試料の採取量10~20g(生試料で約50~100g)を用い、ソックスレー抽出→液々抽出→シリカゲルカラムクロマ

トグラフィー以下魚介類、野菜類及び穀類の分析方法により分析を行った。

2) ④及び⑤群試料：前報^{13),14)}の牛乳の分析方法に従って、試料採取量50mlを用い、液体抽出器により、*n*-ヘキサン抽出し、抽出液を減圧濃縮し、シリカゲルカラムクロマトグラフィー以下前報¹⁴⁾の牛乳の分析方法により分析を行った。

3) ④群試料：前報¹⁶⁾のヨーグルトの分析方法により、ヨーグルト25gにジメチルスルホキシド25mlを加え、よく混合し、液体抽出器の抽出管に移し、*n*-ヘキサンを加え、80～85℃の湯浴で6～7時間抽出し、以下前報¹⁶⁾の分析方法により分析を行った。

結果及び考察

1. 1年間36日分の各食事1日当たりのPAH検出範囲、平均値及び1日平均摂取量をTable 2に示した。

なお、この検出量の中には、嗜好食品（コーヒー、紅茶、ジュース、酒及び菓子等）は入っていないので、食生活からの各PAH摂取量は多少高くなると考えられる。

1) 測定を行ったPAH9種類の1日平均摂取量は、最低dibenz (a, h) anthracene 7.73 ng/day～最高benzo (e) pyrene 139.83 ng/dayであった。

2) 発がん性があるといわれているPAHで、1日平均摂取量50 ng/day以上のものは、benzo (e) pyrene, benzo (a) pyrene及びbenzo (a) anthraceneであった。
benzo (e) pyrene：36日分の食事の1日当たりの検出範囲ND～371.09 ng/day、1日平均摂取量は139.83 ng/dayであった。

benzo (a) pyrene：36日分の食事の1日当たりの検出範囲27.13～118.24 ng/day、1日平均摂取量は70.05 ng/dayであった。

benzo (a) anthracene：36日分の食事の1日当たりの検出範囲4.59～126.30 ng/day、1日平均摂取量は54.35 ng/dayであった。

3) 非発がん性のPAHで1日平均摂取量が50 ng/day以上のものはanthraceneであった。

anthracene：36日分の食事の1日当たりの検出範囲58.02～201.35 ng/day、1日平均摂取量は125.21 ng/dayであった。

2. 1年間36日分の各食事群（①+②群～⑤群）中の1日当たりの各PAH検出範囲、平均値及び標準偏差を

Table 3に示した。

実際、調理済の食事の約85%の食材を①群及び②群に分別を行うことは、困難（調理及び献立上、油脂類を使用しているため）であった。そのため、上記のような食材の時には、①群及び②群の食材を合わせて分析を行った。

そのため、Table 3の食品群別の分析結果は、①群及び②群を合せて算出し、結果を示した。

1) 発がん性があるといわれているPAHで、1日平均摂取量が50 ng/day以上検出したPAHは、benzo (e) pyrene, benzo (a) pyrene 及び benzo (a) anthraceneであった。

benzo (e) pyrene：①+②群及び③群の検出量が高い傾向を示した。①+②群の検出範囲はND～197.31 ng/day（平均65.02 ng/day）及び③群の検出範囲はND～103.22 ng/day（平均74.99 ng/day）であった。

benzo (a) pyrene：①～⑤群の全群より検出している。この中で①+②群の検出量が高い傾向を示し、検出範囲は、16.72～98.38 ng/day（平均59.48 ng/day）であった。

benzo (a) anthracene：①+②群の検出量が高い傾向を示し、検出範囲は、ND～124.96 ng/day（平均54.90 ng/day）であった。

2) 非発がん性のPAHで1日平均摂取量が50 ng/day以上検出したものは、①群～⑤群の全群より検出している。この中で、anthraceneの①+②群の検出量が高い傾向を示し、検出範囲は、37.17～182.47 ng/day（平均105.04 ng/day）であった。

3. 各PAH1年間36日分の食事1日当たりの1g中の検出量及び平均値をTable 4に示した。

①+②群の、肉類、魚介類、野菜類及び果物類の主菜献立の食材の使用重量は、それ以外の食事献立の食材に比較して、重量が大きい。そのため、当然①+②群からのPAH摂取量が高くなると考えられ、食事群1g中のPAH検出量を算出した。

各食事1g中の各PAH平均値及び1g中の1日摂取量の高い傾向のものは、benzo (e) pyreneの①+②群の0.37 ng/gと③群の0.39 ng/g (benzo (e) pyreneの1日平均摂取量0.76 ng/g/day) 及びbenzo (a) pyreneの①+②群の0.25 ng/g (benzo (a) pyreneの1日平均摂取量0.32 ng/g/day) であった。

Table.2 Amounts of the Polycyclic Aromatic Hydrocarbons Determined and Contents of Daily Meals

(ng)

Day	Sample	Benzo(a)anthracene			Benzo(a)pyrene			Dibenz(ah)anthracene			3-Methylcholanthrene			Benzo(e)pyrene			Perylene			Anthracene			1-Methylphenanthrene			Benzo(k)fluoranthene		
	No	Range	Average		Range	Average		Range	Average		Range	Average		Range	Average		Range	Average		Range	Average		Range	Average		Range	Average	
September	1~ 3	5.53~ 29.95	16.08		32.82~ 72.37	52.11		1.49~ 3.35	2.27		1.28~13.94	6.14		71.29~155.35	99.31		5.74~11.07	8.01		58.02~103.30	79.03		3.90~26.34	11.38		10.08~14.55	12.65	
October	4~ 6	56.84~109.27	81.74		52.31~ 65.55	60.18		1.32~ 2.72	2.17		1.38~ 3.58	2.54		105.76~105.76	105.76		8.26~13.58	11.31		118.87~201.35	152.22		3.90~26.34	17.56		4.71~13.38	9.17	
November	7~ 9	51.48~ 94.22	74.64		73.44~101.35	90.07		0.28~28.26	10.10		0.10~29.35	10.87		108.00~371.09	261.26		14.56~26.10	19.98		114.05~155.36	138.26		ND~ 3.90	2.60		5.28~ 8.12	6.28	
December	10~12	40.73~ 53.57	61.21		52.77~ 69.87	60.86		ND*~ 5.35	2.45		1.28~ 4.55	2.40		105.71~157.57	138.64		13.78~15.30	14.67		97.87~137.33	112.81		3.90~26.34	18.86		1.12~ 9.41	6.03	
January	13~15	4.59~ 94.78	50.69		87.81~118.24	100.37		1.03~ 3.73	2.03		1.28~ 3.58	2.05		203.35~231.19	215.30		16.42~21.13	18.87		74.85~149.41	121.90		ND~26.34	17.56		6.03~ 8.89	7.08	
February	16~18	38.81~ 94.16	61.37		56.35~ 98.16	74.63		0.28~ 3.35	1.96		1.38~ 2.10	1.62		71.29~198.45	133.98		12.57~18.69	14.87		89.89~166.41	130.42		3.90~3.90	3.90		7.79~16.76	12.43	
March	19~21	37.61~126.30	81.68		83.17~ 92.12	86.32		1.63~28.12	10.32		ND~29.25	10.18		ND~198.45	89.91		15.57~19.70	17.82		145.96~167.22	157.26		ND~22.44	8.78		1.06~27.73	12.13	
April	22~24	42.17~ 56.71	48.82		44.02~ 70.67	59.90		1.79~27.07	14.43		3.60~29.25	10.68		105.76~166.92	136.34		8.54~16.76	15.64		87.92~150.24	125.62		ND~22.44	11.22		8.11~ 9.99	8.41	
May	25~27	29.92~103.32	54.67		45.05~ 91.08	66.77		1.10~27.09	8.05		1.28~29.35	9.01		71.29~171.72	139.76		8.75~16.09	12.20		105.67~135.98	110.60		ND~26.34	13.17		5.57~14.82	10.41	
June	28~30	48.10~103.08	83.71		45.97~ 49.93	47.43		ND~19.93	7.24		1.28~43.91	15.99		80.42~107.79	98.52		10.52~17.75	14.12		89.35~100.72	93.23		3.90~26.34	11.38		10.68~18.73	14.37	
July	31~33	30.25~ 41.65	37.42		73.13~ 86.12	80.02		ND~33.57	20.56		1.38~35.37	22.22		71.29~220.22	134.09		13.78~14.58	14.27		87.71~192.41	156.21		3.90~40.34	23.53		5.55~18.65	12.62	
August	34~36	31.69~ 58.08	47.76		27.13~ 87.33	61.88		1.51~28.01	11.18		2.78~31.64	12.41		71.29~185.83	139.83		7.51~19.60	13.70		88.62~157.81	124.97		3.90~22.44	16.26		6.67~17.44	10.72	
Avarage			54.35			70.05			7.73			8.84			139.83			14.62			125.21			13.02			10.19	

※ ND : Not detected<0.01ng

Table 3 Polycyclic Aromatic Hydrocarbons in Meals (five-Group) of thirty six day a year

(ng)

PAH		①+②Group		③Group		④Group		⑤Group		Range of PAH in all group of one day	Average of total Meals of 36day
		Range of 36day	Average ±S.D.	Range of 36day	Average ±S.D.	Range of 36day	Average ±S.D.	Range of 36day	Average ±S.D.		
Carcinogenic	Benzo (a) anthracene	ND*~124.96	54.90±31.42	ND~ 8.46	0.71± 1.53	ND		1.34~3.34	2.34± 1.00	ND~124.96	54.35
	Benzo (a) pyrene	16.72~ 98.38	59.48±20.33	0.16~ 14.43	1.74± 3.30	ND~6.00	3.91± 16.61	0.47~2.04	1.03± 0.55	ND~ 98.38	70.05
	Dibenz (a, h) anthracene	ND~ 33.57	6.96±10.67	ND~ 18.61	0.53± 3.06	ND		ND		ND~ 33.57	7.73
	3-Methylcholanthrene	ND~ 42.53	7.71±12.64	ND~ 3.67	1.34± 0.57	ND		ND~0.10	0.5± 0.16	ND~ 42.53	8.84
	Benzo (e) pyrene	ND~197.31	65.02±60.19	ND~103.22	74.99±22.21	ND		ND		ND~197.31	139.83
Not Carcinogenic	Anthracene	37.17~182.47	105.04±35.27	0.11~18.33	1.62±3.01	ND~10.00	6.67±17.79	1.72~ 6.03	4.52± 1.37	ND~182.47	125.21
	1-Methelphenanthrene	ND		ND		ND~ 3.90	2.49± 1.81	ND~22.44	9.35±11.06	ND~ 22.44	13.02
	Perylene	5.75~ 19.39	14.06± 3.71	ND~ 9.53	0.36±1.59	ND		ND~ 0.20	0.08± 0.10	ND~ 19.39	14.62
	Benzo (k) fluolanthene	ND~ 26.36	8.82± 5.18	0.17~ 1.34	0.93±0.21	ND		0.26~ 0.78	0.51± 0.26	ND~ 26.36	10.19

* ND:Not detected < 0.01ng

Table 4 Polycyclic Aromatic Hydrocarbons in one gram from Meals of 36 day a year

(ng/day/g)

PAH		①+②Group		③Group		④Group		⑤Group		Average of 36day
		Range of 36day	Average	Range of 36day	Average	Range of 36day	Average	Range of 36day	Average	
Carcinogenic	Benzo (a) anthracene	ND*~0.40	0.20	ND~0.09	0.01	ND		0.01~0.02	0.02	0.23
	Benzo (a) pyrene	0.04~0.42	0.25	ND~0.12	0.02	ND~0.03	0.02	ND~0.01	0.01	0.32
	Dibenz (a, h) anthracene	ND~0.16	0.03	ND~0.24	0.01	ND		ND		0.04
	3-Methylcholanthrene	ND~0.16	0.03	ND~0.07	0.01	ND		ND		0.04
	Benzo (e) pyrene	ND~1.34	0.37	ND~0.86	0.39	ND		ND		0.76
Not Carcinogenic	Anthracene	0.10~0.81	0.46	ND~0.08.	0.02	ND~0.05	0.04	0.01~0.04	0.03	0.59
	1-Methelphenanthrene	ND		ND		ND~0.03	0.02	ND~0.15	0.06	0.08
	Perylene	0.01~0.10	0.06	ND~0.03	ND	ND		ND		0.09
	Benzo (k) fluolanthene	ND~0.07	0.03	ND~0.01	ND	ND		ND		0.03

* ND:Not detected < 0.01ng

まとめ

1. 発がん性があるといわれている PAH で、1 日平均摂取量が 50 ng/day 以上検出したものは、benzo (e)-pyrene, benzo (a) pyrene 及び benzo (a) anthracene であった。
benzo (e) pyrene は、1 日平均摂取量 139.83 ng/day で、検出量の高い食材は、①+②群及び③群であった。
benzo (a) pyrene は、1 日平均摂取量 70.05 ng/day で、検出量の高い食材は、①+②群であった。
benzo (a) anthracene は、1 日平均摂取量 54.35 ng/day で検出量の高い食材は、①+②群であった。
2. 非発がん性 PAH で 1 日平均摂取量が 50 ng/day 以上検出したものは、anthracene の 125.21 ng/day で、検出量の高い食材は、①+②群であった。
3. 1 年間 36 日分の食事の 1 日当りの各 PAH の食事 1 g 中の検出量で高い検出量のもの、benzo (e) pyrene 0.76 ng/g/day 及び benzo (a) pyrene 0.32 ng/g/day であった。

文 献

- 1) 白石慶子, 白鳥つや子, 高畠英伍: 食衛誌. 15, 18~21 (1971).
- 2) 館野つや子, 南雲葉子, 末永泉二: 食衛誌. 31, 271~276 (1990).
- 3) 館野つや子, 南雲葉子: 東京家政大学紀要. 30, 21~25 (1990).
- 4) Tateno, T. Nagumo, Y.: Reprinted from the Bulletin of Tokyo Kasei University. 31, 27~30 (1991).
- 5) 館野つや子: 東京家政大学紀要. 24, 115~118 (1984).
- 6) 館野つや子: 東京家政大学紀要. 37, 63~65 (1997).
- 7) 白石慶子, 白鳥つや子, 高畠英伍: 食衛誌. 16, 187~188 (1975).
- 8) 白石慶子, 白鳥つや子, 高畠英伍: 食衛誌. 16, 178~181 (1975).
- 9) 館野つや子: 東京家政大学紀要. 26, 85~89 (1986).
- 10) 館野つや子: 東京家政大学紀要. 28, 103~107 (1988).
- 11) 館野つや子: 東京家政大学紀要. 41, 45~55 (2001).
- 12) 白石慶子, 白鳥つや子: 食衛誌. 18, 426~430

(1977).

- 13) 館野つや子: 東京家政大学紀要. 34, 55~61 (1994).
- 14) 館野つや子, 影山百合子: 食衛誌. 40, 90~97 (1999).
- 15) Shiraishi, Y. Shirotori, T.: Reprinted from the Journal of Food Hygienic Society of Japan. 22, 436~440 (1981).
- 16) 館野つや子: 東京家政大学紀要. 44, 53~58 (2004).

Summary

T. Tateno, et al have been investigated the methods of quantity analysis on Polycyclic Aromatic Hydrocarbons (PAH), for example, Benzo(a)pyrene and held PAH detection. In this study, using by these methods of meats, fishes, vegetables, cereals, soup, milk, and yogurt, 9 kinds of PAH detection have been held on the meals of 36 days in a year (3 days a month, 3 meals a day) for 20-year-old a women's college student. As a result, daily intake (day average of the meals of 36 days) detected over 50 ng/day of cancer developing PAH were Benzo(e)pyrene. 139.83 ng/day, Benzo(a)pyrene 70.05 ng/day, and Benzo(a)anthracene 54.35 ng/day. On the other hand, non-cancer-developing PAH detected over 100 ng/day were Anthracene 125.21 ng/day.

All most of these high PAH detentions were from meats, fishes, and vegetables. The average daily intake of various PHA that calculated by a 1 gram could not be seen notable differenc from each other. It was found that high PAH detection from meals, fishes, vegetables and so on cause to high weight of using material among main menu. In other words, a kind of PAH and PAH detection can not be seen notable different from various materials.