低流量・小型カスケードインパクターで分級捕集した 空気浮遊粒子の変異原性及びPAH濃度

小谷野道子¹⁾, 孫 成均¹⁾, 遠藤 治¹⁾, 後藤 純雄¹⁾, 渡辺 征夫¹⁾,
町井 研士¹⁾, 峯木 茂²⁾, 松下 秀鶴³⁾

¹⁾ 国立公衆衛生院 (〒108-8638 港区白金台4-6-1)

²⁾ 東京理科大学理工学部 (〒278-8510 野田市山崎2641)

³⁾ 静岡県環境衛生科学研究所 (〒420-8637 静岡市北安東4-27-2)

[平成11年10月19日受理]

Mutagenicity and PAH Concentration of Extracts from Airborne Particulate Sampling with Low Flow Rate Cascade Impactor

Michiko KOYANO¹⁾, Cheng-Jun SUN¹⁾, Osamu ENDO¹⁾, Sumio GOTO¹⁾,
Ikuko WATANABE¹⁾, Kenji MACHII¹⁾, Shigeru MINEKI²⁾ and Hidetsuru MATSUSHITA³⁾

¹⁾ National Institute of Public Health

(4-6-1 Shirokanedai Minato-ku Tokyo 108-8638)

²⁾ Science University of Tokyo (2641 Yamazaki, Noda, Chiba 278-8510)

³⁾ Shizuoka Institute of Environment and Hygiene

(4-27-2 Kitaando, Shizuoka-shi, Shizuoka 420-8637)

[Received October 19, 1999]

Summary

Mutagenicities and concentrations of polycyclic aromatic hydrocarbons (PAH) of the dichloromethane extracts from airborne particulates, which were collected with a low flow rate cascade impactor, were investigated. Particulates in indoor air from 10 volunteer homes in Tokyo and its suburbs were collected into 3 classes ($\geq 10 \mu\text{m}$, $2.5 \sim 10 \mu\text{m}$ and $\leq 2.5 \mu\text{m}$) for 24hr, and it was repeated 3 times. Particulates in outdoor air around the homes were also collected in the same manner. The mutagenicity of the extract was measured by a microsuspension method (high sensitive Ames method) using *Salmonella typhimurium* YG1024. As the results, (1) the mutagenicity without S9mix was higher than that with S9mix, (2) the extract from outdoor particulates had higher mutagenicity than that from indoor particulates, and (3) the mutagenicity was higher with smaller particulate size. The PAH concentration of the particulate also showed the same tendency as the last result "(3)". More than 80~90% of PAH was contained in the extract from the smallest class ($\leq 2.5 \mu\text{m}$) almost in every case. Correlations between mutagenicities and PAH concentrations were not always satisfactory, and pollutants in indoor air did not always coincide with those in outdoor air.

Key words: fine airborne particle, mutagenicity, PAH, low-flow-rate cascade impactor, health effect

1. はじめに

環境空気中には多種多様な化学物質が含まれており、これらの中には発がん性や変異原性などを示す物質も少なくない。我々は呼吸を介してこれら化学物質を絶えず取り込んでおり、それらの長期曝露による慢性影響が懸念されている。これら化学物質のうち、多環芳香族炭化水素 (PAH) など発がん関連物質の多くは、空気浮遊粒子、特に比較的粒径の小さい粒子に含まれていることが知られている¹⁻³⁾。また、このような浮遊粒子の呼吸器沈着率は、粒子の粒径と密接な関係にあり、一般に粒径が小さくなるほど肺胞や末梢気管支への沈着率が增大することが知られている⁴⁾。

一方、我々は日常生活の大半を室内で過ごしていることから、外気ばかりでなく、室内空気の発がん関連物質による汚染実態や個人曝露実態の把握が重要となってきた。室内空気汚染調査はアンダーセンエアサンプラーやパーソナルミニポンプを用いて採取された試料についての検討も行われてきた^{3,5,6)}が、前者は装置が大きく、騒音振動を伴うため一般家庭室内での使用は困難であること、後者は10 μm 以上の粒径の粒子を含む総粉じんを採取するため粒径別の評価ができないことなどの問題点があった。

最近、杉山らは室内微小浮遊粒子の簡易測定用に、浮遊粒子を10 μm 以上、10~2.5 μm 、2.5 μm 以下の3段階に分級可能な低流量小型カスケードインパクターを開発し、浮遊粒子を精度良く、粒径別に捕集することが可能であることを報告している⁷⁾。そこで、本研究ではこの低流量小型カスケードインパクターを用いて一般家庭の室内・室外で浮遊粒子を採取し、その抽出物の変異原性並びにPAH濃度を測定したので報告する。

2. 実験方法

2. 1 空気浮遊粒子の採取

東京都内及び近郊に居住する協力者10名に依頼して、その室内及び室外で低流量小型カスケードインパクター (東京ダイレック社製ニールインパクター及び柴田科学社製ミニポンプMP-603T) を用い、各々3日間ずつ、3 ℓ/min で空気浮遊粒子を50% cut-off 値で、10 μm 以上、10~2.5 μm 、2.5 μm 以下の3段階に分級し石英繊維フィルター (Pallflex, 2500QAT) 上に捕集した⁷⁾。フィルターは予めジクロロメタン (和光純薬工業製、残留農薬試験用; 以下 DCM) で洗浄・乾燥してから用いた。捕集期間は1998年11月~1999年2月の冬季とし、捕集と同時に天候、室内の暖房、換気、調理の状況等について記録を依頼した。捕集後のフィルターは捕集面を内側にして2つに折ってアルミ箔で遮光し、チャック付ポリ袋に入れて、冷凍庫 (-20℃) に保存した。

2. 2 試料調製

フィルター1枚当たり10mlのDCMを用いて超音波を10分間照射し、有機成分を抽出した^{7,8)}。この上澄み液の一部 (原則として1ml) をPAH分析用としてバイアル (Wheaton 製, 4ml) に移し取った。窒素気流下で溶媒を留去し、分離分析に供するまで冷凍 (-80℃) 保存した。残った抽出液のうち、8mlをろ紙 (アドヴァンテック東洋 No.5C) でろ過し、そのろ液をロータリーエバポレーターで2~3mlになるまで減圧濃縮したのち、バイアル (Wheaton 製, 8ml) に移し、窒素気流下で溶媒を留去した。得られたタール状物質は変異原性試験に供するまで冷凍 (-80℃) 保存した。

2. 3 変異原性試験

変異原性試験は主にマイクロサスペンション法を用い、Kadoらの方法を一部改良して実施した⁹⁻¹¹⁾。すなわち、被験試料をジメチルスルホキシド (同仁化学製、蛍光分析用; 以下 DMSO) 溶液として、10, 5, 2.5, 1.25 μl 、Na-リン酸緩衝液 (Na-PBS) またはS9mix100 μl 、及び試験菌液100 μl を順に滅菌済試験管に分注した。これを37℃、90分間ブレインキュベーションした後、0.5 mM ビオチン-ヒスチジン溶液200 μl を含むソフトアガー2.5mlを分注、攪拌し、最少グルコース寒天平板培地 (以下プレート) 上に均一に広げた。このプレートを37℃で約48時間培養し、生育した復帰変異コロニーを計数した。試験は各doseともduplicateで行った。

菌株は *S. typhimurium* YG1024株¹²⁾を用い、高速冷却遠心機 (日立製, CF-15R) で9000 $\times$ gで15分間遠心し、上澄み液を取り除いた後Na-PBSを加えて再懸濁させ、通常のAmes法の20倍の菌液濃度に調製した。

なお、代謝活性化酵素系S9mixの調製には、ベンゾフラボン及びフェノバルビタールで酵素誘導したSD系雄ラット肝臓から調製したS9 (オリエンタル酵母工業社製) 及びNADH, NADPH, G-6-P等の補酵素 (オリエンタル酵母工業社製, Cofactor-I) を用いた。

変異原比活性は、dose (試料量) とresponse (復帰変異コロニー数; revertants) との間に比例関係 (dose-response) がある場合、そのdose-response関係が直線的な部分から、最小自乗法による直線回帰式を求め、その傾きから採取空気量1m³当たりの復帰変異コロニー数を算出した。変異原性試験は13回に渡って行い、毎回、被験試料とは別に調製した空気浮遊粉じん抽出物の共通標準試料を陽性対照として用い、その変動係数が17% (+S9) ~31% (-S9) であることを確認した。

2. 4 PAH分析

PAH分析用の試料は、冷凍庫から取り出した後デシケーター内で室温に戻し、アセトニトリル (残留農薬試

験用、国産化学製) 1.5ml に再溶解し、その400 μ l を HPLC に注入して分離し、ピーク高さより定量した。

分析対象の標準品は pyrene (Py), benz[a]anthracene (BaA), 及び benzo[a]pyrene (BaP) は和光純薬工業製, benzo[k]fluoranthene (BkF), 及び benzo[b]chrysene (BbC) は Koch-Light Laboratory 製, dibenzo[a,h]anthracene (dBahA) は L. Light Laboratory 製, benzo[ghi]perylene (BghiP) は Aldrich 製, dibenzo[a,e]pyrene (dBaP) は Chemicals Procurement Laboratory 製を用いた。

PAH の分離分析にはオンライン・マルチカラム HPLC/ 分光蛍光検出法を用いた^{8,13)}。デガッサーは ERM Optical Work Ltd. 製 ERC-3520, ポンプ (LC-6A), システムコントローラ (SCL-6A), オートインジェクター (SIL-6A), カラムオープン (CTO-2A), 蛍光検出器 (RF-10AXL) は島津製作所製のものを用いた。ミキサーは日立製作所製 655-0486 を、濃縮カラムは東京化成工業製 Kaseisorb ODS-60-5: 4.6mm i.d. $\times$ 30mm, 分離カラムは東京化成工業製 Kaseisorb ODS-60-5: 4.6mm i.d. $\times$ 250mm を用いた。

移動相にはアセトニトリル (液クロ用、国産化学製) 及びイオン交換蒸留水を用い、移動相組成並びに測定波長切換え等は前報⁸⁾と同様にした。

3. 結果及び考察

3. 1 高感度 Ames 法 (マイクロサスペンション法) の応用

室内の空気は容積が限られているため (多量の採取ができないことから), 従来^{14,15)}に比べてより高感度な方法で測定する必要がある。我々は, Ames 法の改良法である Kado らの方法に準じて, 菌懸濁液 (TA100 株) を 20 倍に濃縮し, プレインキュベーション時間も長くすることにより, 大気浮遊粉じん溶媒抽出物の変異原性検出能を高くする手法などを報告した¹¹⁾。そこで今回, 高感受性菌株として開発された YG1024 株についても同様の検討を行った。すなわち *S. typhimurium* TA100, TA98 及び YG1024 株の一夜培養した菌懸濁液を 20 倍に濃縮して, 大気浮遊粉じんの変異原性を測定した。その結果検討した 3 菌株ともマイクロサスペンション法で高い変異原性を示すこと, 特に YG1024 株で, S9mix 無添加条件下で高い変異原性を示すことが認められた (Fig. 1)。また, YG1024 株を用いた場合, 操作性, 結果の再現性などが良好であったことから, 今回採取した浮遊粒子試料の変異原性は, YG1024 株の 20 倍濃縮菌液によるマイクロサスペンション法を用いることとした。

3. 2 浮遊粒子抽出試料の変異原性

Table 1 に低流量小型カスケードインパクターで採取

Fig. 1 Mutagenic activities of an airborne particulate extract by Ames method and microsuspension method

した各浮遊粒子試料の変異原性測定結果を示す。このうち, 陽性あるいは擬陽性 (*印) と判定されたものについては, 変異原比活性 (採取空気 1 m³あたりの復帰変異コロニー数) を示した。なお, 変異原比活性の積算値や平均値は陰性の結果を除外して算出した。室内空気試料の粒径別変異原性は, YG1024-S9条件下において, 10 μ m 以上の粒子試料で明らかな変異原性を示したのは 30 試料中 1 例のみ (擬陽性例は 7 例) であったが, 2.5~10 μ m では 4 例が陽性, 2.5 μ m 以下では 20 例が陽性 (擬陽性例は 5 例) となり, 合計値 (total: 各分級試料の変異原比活性の合計) でみると 30 例中 25 例に変異原性が認められた。また, +S9条件下において, 10 μ m 以上の粒子試料では 30 試料中擬陽性が 1 例みられたのみであったが, 2.5~10 μ m では 1 例が陽性 (擬陽性が 1 例), 2.5 μ m 以下では 2 例が陽性 (擬陽性例は 6 例) となり, 合計値でみると 30 例中 9 例に変異原性が認められた。一方, 室外空気試料の粒径別変異原性は, YG1024-S9条件下においては, 10 μ m 以上の粒子試料で明らかな変異原性を示したのは 30 試料中 2 例 (擬陽性例は 3 例), 2.5~10 μ m では 5 例が陽性 (擬陽性例は 4 例), 2.5 μ m 以下では 26 例が陽性 (擬陽性例は 3 例) となり, 合計値で 30 例中変異原性が認められなかったのは僅か 1 例にすぎなかった。また, +S9条件下においては, 10 μ m 以上の粒子試料では 30 試料すべて陰性であったが, 2.5~10 μ m では 1 例が陽性 (擬陽性が 3 例), 2.5 μ m 以下では 7 例が陽性 (擬陽性例は 7 例) となり, 合計値でみると 30 例中半数の 15 例に変異原性が認められた。

Table 1 Mutagenic activity of indoor and outdoor airborne particles sampling with low flow rate cascade impactor

volunteer (residence)	sampling date	indoor sampling site	Mutagenic activity (revertants/m ³)									remarks
			YG1024, -S9mix									
			Indoor				Outdoor					
			≥10μm	2.5~10μm	2.5μm≥	total	≥10μm	2.5~10μm	2.5μm≥	total		
A (Tokyo)	981126	K	136 *	nd	553	689	205 *	352	1191	1748	downtown	
	981128	K	169 *	2329	181 *	2679	261 *	194 *	339	794	cooking every days	
	981201	K	146 *	nd	891	1037	nd	5331	754	6085		
B (Sagamihara)	981201	L	141 *	nd	332	473	nd	nd	1562	1562	near the R16	
	981202	L	147 *	349	437	933	622	352	335	1309		
	981203	L	264 *	nd	580	844	nd	nd	3254	3254		
C (Sayama)	981205	L	nd	nd	628	628	nd	3166	359	3525		
	981206	L	nd	nd	302 *	302	nd	nd	383	383		
	981207	L	nd	nd	nd	nd	nd	nd	396	396		
D (Yokohama)	981209	K	nd	nd	nd	nd	nd	nd	725	725	cooking everyday	
	981210	K	nd	nd	2787	2787	nd	nd	484	484		
	981211	K	nd	nd	619	619	nd	nd	812	812		
E (Yokohama)	981216	DK	nd	nd	1028	1028	nd	nd	1328	1328	cooking everyday	
	981217	DK	321 *	1214	163 *	1698	nd	nd	298	298		
	981218	DK	nd	nd	738	738	277 *	254 *	1771	2302		
F (Higashi-murayama)	981222	DK	nd	nd	556	556	nd	nd	912	912	cooking everyday	
	981223	DK	nd	2112	504	2616	nd	nd	811	811		
	981224	DK	nd	nd	nd	nd	nd	nd	4773	4773		
G (Funabashi)	990101	D	nd	nd	176 *	176	nd	nd	218 *	218	cooking everyday	
	990102	D	nd	nd	nd	nd	nd	nd	263 *	263		
	990103	D	nd	nd	nd	nd	nd	nd	nd	nd		
H (Urawa)	990107	L	nd	nd	350	350	nd	210 *	1275	1485		
	990109	L	nd	nd	232 *	232	nd	nd	213 *	213		
	990202	L	928	nd	2408	3336	nd	nd	8471	8471		
I (Tokyo)	990114	L	nd	nd	251	251	nd	nd	429	429		
	990115	L	nd	nd	270	270	nd	nd	856	856		
	990116	L	nd	nd	209	209	nd	nd	263	263		
J (Kitasoma)	990127	G	nd	nd	635	635	nd	1029	994	2023		
	990128	G	nd	nd	499	499	nd	136 *	899	1035		
	990131	G	nd	nd	487	487	853	nd	719	1572		
mean			282	1501	633	963	444	1225	1210	1667		
sd			270	907	635	914	282	1817	1698	1920		

nd: <133 (revertants/m³)

+: pseudopositive

indoor sampling site; K:kitchen, L:living room, DK:dining kitchen, D:dining room, G:guest room

mean and sd were calculated without negative data.

以上の結果から、低流量小型カスケードインパクトで採取された浮遊粒子試料の大部分に変異原性が認められ、また、粒径別あるいはS9mix添加の有無など、試験条件によって変異原性の傾向が異なった。今回の変異原性測定結果から、浮遊粒子試料の変異原性については、

(1) S9mix添加時より無添加条件下の方が強い変異原性を示すこと、(2) 室内空気よりも室外空気試料の方が強い変異原性を示すこと、(3) 粒子径が小さくなるにつれて変異原性が強くなること、などの傾向がみられた。一方、被験者Dの2日目、Eの2日目、Fの2日目の試料では室外空気よりも室内空気試料の方が強い変異原性を示し、また被験者Aの2日目、3日目、Bの2日目、Cの1日目、Eの2日目、Fの2日目、Jの3日目の試料では粒径が2.5μmよりも大きい試料に強い変異原性が認められた。被験者A、D、E、F、Gの5名は室内空気試料採取場所として、台所または食堂を選んでおり、採取期間中に何度か調理をしていたことが記録されていた。特に被験者Eの家庭では測定期間中にグリルでの魚焼きや、ガスレンジを使用した調理が明記されていた。

したがって、これらの結果が得られた原因として、室内空気汚染の要因のひとつとされる調理の影響¹⁶⁾が示唆された。

3. 3 空気浮遊粒子抽出試料のPAH濃度

分析対象とした8種類のPAHの測定結果をTable 2に示す。この表に見られるように、Pyrene, BaAやBaPは、殆どすべての試料で検出された。これに対して、BkF, BbC, dBahA, BghiPおよびdBaePは2.5μm以下では殆どの試料で検出されたが、それよりも粒子径の大きい試料では半数以上で、特に室内空気の10μm以上の粒子試料では殆ど全てで検出されなかった。

Table 2を粒子径別にみると、いずれのPAHも殆どの試料で粒子径が小さくなるにつれてPAH含量が多くなり、その80~90%以上が2.5μm以下の粒子に含まれていた。杉山らは、カスケードインパクトにより3段階に捕集された試料中のPAH濃度は2.5μm以下>2.5~10μm>10μm以上となることを報告している⁷⁾。今回我々の調査でも同様な結果が得られた。Table 1に示したように、

Table 1 Continue

volunteer (residence)	sampling date	indoor sampling site	Mutagenic activity (revertants/m ³)							
			YG1024, +S9mix							
			Indoor				Outdoor			
			≥10μm	2.5~10μm	2.5μm≥	total	≥10μm	2.5~10μm	2.5μm≥	total
A (Tokyo)	981126	K	nd	nd	nd	nd	nd	nd	331 *	331
	981128	K	nd	nd	nd	nd	nd	nd	nd	nd
	981201	K	nd	nd	269 *	269	nd	498	256 *	754
B (Sagamihara)	981201	L	nd	nd	nd	nd	nd	nd	519	519
	981202	L	nd	nd	nd	nd	nd	nd	nd	nd
	981203	L	nd	nd	nd	nd	nd	nd	387	387
C (Sayama)	981205	L	nd	nd	257 *	257	nd	276 *	nd	276
	981206	L	nd	nd	169 *	169	nd	nd	nd	nd
	981207	L	nd	nd	nd	nd	nd	nd	nd	nd
D (Yokohama)	981209	K	nd	nd	nd	nd	nd	nd	nd	nd
	981210	K	nd	nd	nd	nd	nd	nd	nd	nd
	981211	K	nd	nd	nd	nd	nd	nd	201 *	201
E (Yokohama)	981216	DK	nd	nd	317	317	nd	nd	442	442
	981217	DK	210 *	233 *	nd	443	nd	nd	nd	nd
	981218	DK	nd	nd	222 *	222	nd	156 *	372	528
F (Higashi-murayama)	981222	DK	nd	nd	192 *	192	nd	nd	479	479
	981223	DK	nd	1129	189 *	1318	nd	nd	295 *	295
	981224	DK	nd	nd	nd	nd	nd	nd	380	380
G (Funabashi)	990101	D	nd	nd	nd	nd	nd	nd	nd	nd
	990102	D	nd	nd	nd	nd	nd	nd	nd	nd
	990103	D	nd	nd	nd	nd	nd	nd	nd	nd
H (Urawa)	990107	L	nd	nd	nd	nd	nd	nd	233 *	233
	990109	L	nd	nd	nd	nd	nd	nd	nd	nd
	990202	L	nd	nd	nd	nd	nd	nd	nd	nd
I (Tokyo)	990114	L	nd	nd	nd	nd	nd	nd	nd	nd
	990115	L	nd	nd	nd	nd	nd	nd	147 *	147
	990116	L	nd	nd	618	618	nd	nd	2106	2106
J (Kitasoma)	990127	G	nd	nd	nd	nd	nd	232 *	324 *	556
	990128	G	nd	nd	nd	nd	nd	nd	nd	nd
	990131	G	nd	nd	nd	nd	nd	nd	nd	nd
mean			210	681	279	423	-	291	462	509
sd			-	634	145	364	-	147	485	469

nd: <147 (revertants/m³)

*: pseudopositive

indoor sampling site: K:kitchen, L:living room, DK:dining kitchen, D:dining room, G:guest room

mean and sd were calculated without negative data.

変異原性では粒子径が2.5μm よりも大きい粒子で強い変異原性が認められる例もあったが、PAH に関してはこのような例は殆どみられなかった。

3. 4 変異原性と PAH の相関

Table 3 に変異原性と代表的な発癌性 PAH である BaP 濃度の相関を示す。変異原性は殆どの試料で nd となる 10μm 以上及び 2.5~10μm の粒子試料データは計算から除外した。計算に用いた室内と室外の 2.5μm 以下試料の YG1024±S9 による変異原性のなかでも nd は除外して計算した。この表から、変異原性と BaP との相関は室内 2.5μm 以下の YG1024+S9 と室内 10μm 以上の BaP で負の相関 (P<5%) があるのを除いて認められなかった。室内 2.5μm 以下の YG1024+S9 のデータ数は 8 つと少ないため、この負の相関関係は信頼性が低いとみられた。また、S9mix 添加の有無による同一条件下での変異原性間の相関は比較的良好であったが、-S9 と +S9 の変異原性間の相関は認められなかった。室内と室外の変異原性間では 2.5μm 以下の粒子で室内の +S9 と室外の

-S9 を除いて P<1% で相関が認められた。BaP では 2.5μm 以下の粒子で P<5% 以上の有意な相関が認められたが、それ以上の大きさの粒子間では相関が認められなかった。一方、BaP 間の相関のうち、室外のデータは粒子径にかかわらず、いずれも P<1% 以上の有意水準で良好な相関をみせたが、室内のデータ、及び室内外の比較では、2.5μm 以下の粒子を除いてあまり良好な相関は見られなかった。これは nd が多かったためと考えられた。なお、BaP 以外の PAH についても同様の計算を行ったが、いずれも nd が多かったためか、BaP と同様あるいはそれよりも低い相関しか認められなかった。

以上のように、今回の測定結果から得られた変異原性と PAH の相関は必ずしも良好ではなかった。一方、BaP 間の相関のうち、室外のデータは粒子径にかかわらず、いずれも P<1% 以上の有意水準で良好な相関をみせたが、室内のデータ、及び室内外の比較では、2.5μm 以下の粒子を除いてあまり良好な相関は見られなかった。

高橋らは非暖房期の空气中粒子から検出された 4~7 環系 PAH の室内及び室外濃度はほぼ等しいか、若干室

Table 2 PAH concentrations of indoor and outdoor airborne particles sampling with low flow rate cascade impactor

Volunteer (residence)	sampling data	indoor sampling site	PAH concentration (ng/m ³)							
			Pyrene							
			indoor				Outdoor			
			≥10μm	2.5~10μm	2.5μm≥	Total	≥10μm	2.5~10μm	2.5μm≥	Total
A (Tokyo)	981126	K	n.t.	0.372	0.887	-	0.847	0.990	2.394	4.231
	981128	K	0.410	0.379	0.327	1.116	0.709	0.346	0.564	1.619
	981201	K	0.361	n.t.	1.621	-	0.636	1.094	2.114	3.844
B (Sagamihara)	981201	L	0.196	0.207	0.507	0.910	0.416	0.376	1.343	2.135
	981202	L	0.167	0.279	0.371	0.817	n.t.	0.252	0.633	-
	981203	L	0.197	n.t.	0.679	-	n.t.	0.228	1.377	-
C (Sayama)	981205	L	0.221	0.491	0.799	1.511	0.246	0.319	1.129	1.694
	981206	L	0.156	n.t.	0.956	-	n.d.	n.t.	0.730	-
	981207	L	n.t.	n.t.	0.837	-	n.t.	n.t.	1.241	-
D (Yokohama)	981209	K	n.t.	n.t.	0.556	-	n.t.	n.t.	1.265	-
	981210	K	n.t.	0.532	0.585	-	0.787	0.917	0.809	2.513
	981211	K	0.313	0.397	0.895	1.605	0.211	0.380	1.276	1.867
E (Yokohama)	981216	DK	0.277	0.369	1.129	1.775	0.581	0.844	4.720	6.145
	981217	DK	n.t.	0.370	0.576	-	0.300	0.221	1.197	1.718
	981218	DK	0.216	0.323	2.226	2.765	0.367	0.557	2.757	3.681
F (Higasi-murayama)	981222	DK	0.328	0.271	0.494	1.093	0.923	0.374	1.419	2.716
	981223	DK	0.294	0.323	0.817	1.434	0.198	n.d.	0.023	0.222
	981224	DK	0.489	0.350	0.618	1.457	0.436	0.264	2.735	3.435
G (Funabashi)	990101	D	0.196	0.233	0.437	0.866	0.450	0.511	1.817	2.778
	990102	D	0.323	0.726	0.229	1.278	0.173	0.178	1.346	1.697
	990103	D	0.380	0.522	0.233	1.135	0.304	0.287	1.068	1.659
H (Urawa)	990107	L	0.131	0.133	0.864	1.128	0.254	0.288	2.539	3.081
	990109	L	0.287	0.130	0.219	0.636	0.300	0.158	n.t.	-
	990202	L	0.102	0.123	0.257	0.482	0.062	0.153	n.t.	-
I (Tokyo)	990114	L	0.151	0.154	0.205	0.510	0.216	0.183	0.517	0.916
	990115	L	0.119	0.104	1.013	1.236	0.733	0.887	2.262	3.882
	990116	L	0.069	0.046	0.084	0.199	0.072	0.085	0.138	0.295
J (Kitasoma)	990127	G	0.049	0.101	0.196	0.346	0.114	0.058	1.024	1.196
	990128	G	0.057	0.048	0.419	0.524	0.102	n.t.	0.607	-
	990131	G	0.085	0.076	0.171	0.332	0.066	0.052	0.173	0.291
mean			0.223	0.282	0.640	1.053	0.366	0.385	1.401	2.346
sd			0.119	0.174	0.459	0.590	0.267	0.311	1.005	1.468

indoor sampling site; K:kitchen, L:living room, DK:dining kitchen, D:dining room, G:guest room
n.t.:not tested n.d.: less than 0.002 (ng/m³)
one half of the detection limit was used for the statistical calculation.

内の方が低いこと、両者の濃度間で有意な正の相関が見られたことから、これらの化合物の室内濃度に対して、大気汚染の影響が大きいことを報告している¹⁷⁾。今回我々の測定結果からも、変異原性については、室外空気の影響が少なくないことが示唆された。例えば、被験者Aは都心(台東区浅草)に住んでおり、また被験者Bは郊外(相模原市)であるが、住居近くを交通量の多い国道16号線が通っており風向によってはその影響が大きいと考えられるが、これらの被験者の室外空気の変異原性は3日間とも比較的高かった。これに対して、被験者Gは船橋市の郊外である千葉ニュータウン近くに住居があり、近くに交通量の多い幹線道路もないためか、被験試料の中では最も低い変異原性レベルであった。しかしながら、従来大気中の主要ながん・変異原性物質とされてきたBaP濃度に関しては、特に室外の濃度で、被験者AやBと被験者Gとの間に大きな差は認められず、

むしろ日によっては被験者G宅の方が高くなる場合も見られた。これらの結果は、室内外での汚染質が必ずしも一致しないためと考えられた。

今回の被験者は、築5年未満の鉄筋集合住宅に居住する被験者Iを除いて、いずれも木造一戸建てに居住していた。また、すべての被験者が非喫煙者で、家族の中に喫煙者もなく、測定期間中に喫煙はなかったことから、喫煙の影響は殆どなかったと思われる。その他の室内空気汚染の要因として、暖房器具のうち石油やガストーブの使用によっても室内の浮遊粒子やPAH濃度が上昇することが報告されている^{18,19)}。今回の調査は暖房期(11~2月)に行われたことから、石油ストーブや石油ファンヒーターを所有しているB, G, Jの3家庭ではそれらの影響も考えられたが、事後の聞き取り調査では少なくとも測定期間中は全く使用されていなかったの、これらによる影響は殆ど無かったと思われる。

Table 2 Continue

Volunteer (residence)	sampling data	indoor sampling site	PAH concentration (ng/m ³)							
			BaA							
			indoor				Outdoor			
			≥10μm	2.5~10μm	2.5μm≥	Total	≥10μm	2.5~10μm	2.5μm≥	Total
A (Tokyo)	981126	K	0.024	0.035	0.426	0.485	0.063	0.221	1.688	1.972
	981128	K	0.014	0.040	0.074	0.128	0.013	0.060	0.238	0.311
	981128	K	0.016	0.044	0.810	0.870	0.005	0.271	0.958	1.234
B (Sagamihara)	981201	L	0.022	0.033	0.220	0.275	0.034	0.083	1.336	1.453
	981202	L	0.017	0.024	0.170	0.211	0.022	0.035	0.262	0.319
	981203	L	0.031	0.037	0.423	0.491	0.029	0.048	1.104	1.181
C (Sayama)	981205	L	0.021	0.603	0.656	1.280	0.027	0.061	0.984	1.072
	981206	L	0.021	0.026	0.325	0.372	0.064	0.047	0.252	0.363
	981207	L	0.023	n.t.	0.357	-	0.029	0.104	1.049	1.182
D (Yokohama)	981209	K	0.016	0.046	0.179	0.241	0.057	0.140	1.713	1.910
	981210	K	0.028	0.048	0.407	0.483	0.049	0.191	0.612	0.852
	981211	K	0.017	0.029	0.435	0.481	n.d.	0.058	0.901	0.959
E (Yokohama)	981216	DK	0.035	0.101	0.898	1.034	0.107	0.180	3.384	3.671
	981217	DK	n.t.	0.063	0.179	-	n.d.	n.d.	0.461	0.462
	981218	DK	0.021	0.089	2.046	2.156	0.056	0.127	2.319	2.502
F (Higasi-murayama)	981222	DK	0.030	0.021	0.248	0.299	0.100	0.067	0.762	0.929
	981223	DK	0.016	0.035	0.363	0.414	n.d.	n.d.	0.348	0.349
	981224	DK	0.021	n.d.	0.208	0.229	0.019	0.020	1.307	1.346
G (Funabashi)	990101	D	0.017	0.019	0.088	0.124	0.027	0.118	0.760	0.905
	990102	D	0.022	0.074	0.077	0.173	n.d.	0.021	0.529	0.550
	990103	D	0.014	0.027	0.045	0.086	n.d.	0.031	0.390	0.421
H (Urawa)	990107	L	n.d.	0.016	0.440	0.456	0.015	0.044	1.440	1.499
	990109	L	0.018	n.d.	0.068	0.086	0.016	0.015	n.t.	-
	990202	L	n.d.	0.013	0.154	0.167	n.d.	0.016	n.t.	-
I (Tokyo)	990114	L	n.d.	n.d.	0.084	0.085	n.d.	0.023	0.242	0.265
	990115	L	n.d.	n.d.	0.744	0.745	0.036	0.096	1.538	1.670
	990116	L	0.006	n.d.	0.027	0.034	0.008	0.007	0.060	0.075
J (Kitasoma)	990127	G	n.d.	0.027	0.154	0.181	0.392	0.014	0.922	1.328
	990128	G	0.005	n.d.	0.285	0.290	0.010	n.t.	0.391	-
	990131	G	n.d.	0.009	0.077	0.086	0.007	n.d.	0.092	0.099
mean			0.016	0.050	0.356	0.427	0.040	0.072	0.930	1.070
sd			0.010	0.109	0.395	0.454	0.072	0.071	0.743	0.812

indoor sampling site; K:kitchen, L:living room, DK:dining kitchen, D:dining room, G:guest room

n.t.:not tested n.d.: less than 0.001 (ng/m³)

one half of the detection limit was used for the statistical calculation.

Table 2 Continue

Volunteer (residence)	sampling data	indoor sampling site	PAH concentration (ng/m ³)							
			BkF							
			indoor				Outdoor			
			≥10μm	2.5~10μm	2.5μm≥	Total	≥10μm	2.5~10μm	2.5μm≥	Total
A (Tokyo)	981126	K	n.d.	n.d.	0.364	0.366	n.d.	0.096	1.070	1.167
	981128	K	n.d.	n.d.	0.089	0.091	n.d.	n.d.	0.210	0.212
	981128	K	n.d.	n.d.	0.875	0.877	n.d.	0.135	0.710	0.846
B (Sagamihara)	981201	L	n.d.	n.d.	0.282	0.284	n.d.	n.d.	1.163	1.165
	981202	L	n.d.	n.d.	0.192	0.194	n.d.	n.d.	0.267	0.269
	981203	L	n.d.	n.d.	0.431	0.433	n.d.	n.d.	0.776	0.778
C (Sayama)	981205	L	n.d.	0.078	0.785	0.864	n.d.	n.d.	0.955	0.957
	981206	L	n.d.	n.d.	0.218	0.220	n.d.	n.d.	0.226	0.228
	981207	L	n.d.	n.t.	0.291	-	n.d.	0.061	0.701	0.763
D (Yokohama)	981209	K	n.d.	n.d.	0.224	0.226	n.d.	n.d.	1.369	1.371
	981210	K	n.d.	n.d.	0.479	0.481	n.d.	0.071	0.468	0.540
	981211	K	n.d.	n.d.	0.582	0.584	n.d.	n.d.	0.804	0.806
E (Yokohama)	981216	DK	n.d.	0.077	0.702	0.780	0.064	0.104	1.914	2.082
	981217	DK	n.t.	n.d.	0.144	-	n.d.	n.d.	0.325	0.327
	981218	DK	n.d.	0.068	1.710	1.779	n.d.	0.096	1.322	1.419
F (Higasi-murayama)	981222	DK	n.d.	n.d.	0.251	0.253	n.d.	n.d.	0.405	0.407
	981223	DK	n.d.	n.d.	0.428	0.430	n.d.	n.d.	0.303	0.305
	981224	DK	n.d.	n.d.	0.176	0.178	n.d.	n.d.	0.588	0.590
G (Funabashi)	990101	D	n.d.	n.d.	0.069	0.071	n.d.	0.115	0.590	0.706
	990102	D	n.d.	n.d.	0.066	0.068	n.d.	n.d.	0.573	0.575
	990103	D	n.d.	n.d.	0.054	0.056	n.d.	n.d.	0.238	0.240
H (Urawa)	990107	L	n.d.	n.d.	0.375	0.377	n.d.	n.d.	0.999	1.001
	990109	L	n.d.	n.d.	0.060	0.062	n.d.	n.d.	n.t.	-
	990202	L	n.d.	n.d.	0.035	0.037	n.d.	n.d.	n.t.	-
I (Tokyo)	990114	L	n.d.	n.d.	0.064	0.066	n.d.	n.d.	0.174	0.176
	990115	L	n.d.	n.d.	0.793	0.795	n.d.	n.d.	1.052	1.054
	990116	L	n.d.	n.d.	0.031	0.033	n.d.	n.d.	0.044	0.046
J (Kitasoma)	990127	G	n.d.	n.d.	0.110	0.112	n.d.	n.d.	0.507	0.509
	990128	G	n.d.	n.d.	0.212	0.214	n.d.	n.t.	0.205	-
	990131	G	n.d.	n.d.	0.071	0.073	n.d.	n.d.	0.071	0.073
mean			0.001	0.009	0.339	0.357	0.003	0.024	0.644	0.689
sd			-	0.023	0.357	0.384	0.011	0.043	0.455	0.483

indoor sampling site; K:kitchen, L:living room, DK:dining kitchen, D:dining room, G:guest room

n.t.:not tested

n.d.: less than 0.002 (ng/m³)

one half of the detection limit was used for the statistical calculation.

Table 2 Continue

Volunteer (residence)	sampling data	indoor sampling site	PAH concentration (ng/m ³)							
			BaP							
			indoor				Outdoor			
			≥10μm	2.5~10μm	2.5μm≥	Total	≥10μm	2.5~10μm	2.5μm≥	Total
A (Tokyo)	981126	K	0.029	0.040	0.849	0.918	0.052	0.206	2.452	2.710
	981128	K	0.037	0.043	0.177	0.257	0.026	0.048	0.331	0.405
	981128	K	0.024	0.048	1.805	1.877	0.083	0.261	1.337	1.681
B (Sagamihara)	981201	L	0.041	0.056	0.679	0.776	0.031	0.073	2.174	2.278
	981202	L	0.022	0.035	0.430	0.487	0.025	0.045	0.260	0.330
	981203	L	0.029	0.064	1.045	1.138	0.028	0.049	1.001	1.078
C (Sayama)	981205	L	0.038	0.300	1.964	2.302	0.048	0.078	1.341	1.467
	981206	L	0.030	0.041	0.534	0.605	0.045	0.055	0.396	0.496
	981207	L	0.027	n.t.	0.680	-	0.026	0.109	1.365	1.500
D (Yokohama)	981209	K	0.002	0.046	0.593	0.641	0.043	0.116	3.409	3.568
	981210	K	0.025	0.056	1.269	1.350	0.033	0.153	1.129	1.315
	981211	K	0.026	0.038	1.314	1.378	n.d.	0.061	1.258	1.323
E (Yokohama)	981216	DK	0.031	0.129	1.419	1.579	0.128	0.433	4.162	4.723
	981217	DK	n.t.	0.075	0.263	-	0.028	n.d.	0.520	0.552
	981218	DK	0.022	0.114	4.186	4.322	0.057	0.152	3.156	3.365
F (Higasi- murayama)	981222	DK	0.035	0.033	0.680	0.748	0.097	0.065	0.900	1.062
	981223	DK	0.035	0.053	0.898	0.986	0.042	n.d.	0.434	0.480
	981224	DK	0.036	n.d.	0.362	0.402	0.031	0.025	1.264	1.320
G (Funabashi)	990101	D	0.026	0.030	0.149	0.205	0.040	0.151	0.979	1.170
	990102	D	n.d.	0.096	0.141	0.241	0.021	0.041	1.055	1.117
	990103	D	n.d.	0.040	0.105	0.149	n.d.	0.033	0.335	0.372
H (Urawa)	990107	L	n.d.	0.022	0.781	0.807	0.026	0.049	1.701	1.776
	990109	L	0.038	n.d.	0.117	0.159	0.031	n.d.	n.t.	-
	990202	L	0.016	0.019	0.257	0.292	n.d.	0.015	n.t.	-
I (Tokyo)	990114	L	0.027	0.025	0.171	0.223	n.d.	0.037	0.286	0.327
	990115	L	n.d.	n.d.	1.597	1.605	0.053	0.099	2.064	2.216
	990116	L	0.011	n.d.	0.063	0.078	0.010	0.014	0.063	0.087
J (Kitasoma)	990127	G	n.d.	0.034	0.274	0.312	0.017	0.013	1.201	1.231
	990128	G	0.010	0.008	0.477	0.495	0.016	n.t.	0.426	-
	990131	G	n.d.	0.017	0.119	0.140	0.012	n.d.	0.119	0.135
mean			0.022	0.058	0.780	0.874	0.036	0.083	1.254	1.411
sd			0.013	0.057	0.840	0.897	0.028	0.093	1.039	1.134

indoor sampling site; K:kitchen, L:living room, DK:dining kitchen, D:dining room, G:guest room

n.t.:not tested

n.d.: less than 0.008 (ng/m³)

one half of the detection limit was used for the statistical calculation.

Table 2 Continue

Volunteer (residence)	sampling data	indoor sampling site	PAH concentration (ng/m ³)							
			dBahA							
			indoor				Outdoor			
			≥10μm	2.5~10μm	2.5μm≥	Total	≥10μm	2.5~10μm	2.5μm≥	Total
A (Tokyo)	981126	K	0.029	n.d.	0.078	0.108	n.d.	0.033	0.246	0.280
	981128	K	n.d.	n.d.	0.028	0.029	n.d.	n.d.	0.055	0.056
	981128	K	n.d.	n.d.	0.216	0.217	n.d.	0.048	0.163	0.212
B (Sagamihara)	981201	L	0.026	0.025	0.082	0.133	n.d.	0.028	0.259	0.288
	981202	L	n.d.	n.d.	0.062	0.063	n.d.	n.d.	0.073	0.074
	981203	L	0.023	0.034	0.137	0.194	n.d.	n.d.	0.188	0.189
C (Sayama)	981205	L	0.022	0.133	0.236	0.391	n.d.	0.020	0.238	0.259
	981206	L	n.d.	0.032	0.094	0.127	0.020	n.d.	0.076	0.096
	981207	L	n.d.	n.t.	0.087	-	0.031	n.d.	0.176	0.208
D (Yokohama)	981209	K	n.d.	n.d.	n.d.	0.002	n.d.	n.d.	0.331	0.332
	981210	K	n.d.	n.d.	0.138	0.139	n.d.	0.041	0.128	0.170
	981211	K	n.d.	n.d.	0.186	0.187	n.d.	n.d.	0.201	0.202
E (Yokohama)	981216	DK	n.d.	0.029	0.185	0.215	0.037	0.036	0.416	0.489
	981217	DK	n.t.	0.048	0.036	-	n.d.	n.d.	0.084	0.085
	981218	DK	n.d.	0.023	0.399	0.423	n.d.	0.026	0.286	0.313
F (Higasi-murayama)	981222	DK	n.d.	n.d.	0.090	0.091	n.d.	n.d.	0.112	0.113
	981223	DK	n.d.	n.d.	0.150	0.151	n.d.	n.d.	0.095	0.096
	981224	DK	n.d.	n.d.	0.060	0.061	n.d.	n.d.	0.134	0.135
G (Funabashi)	990101	D	n.d.	n.d.	0.036	0.037	n.d.	n.d.	0.220	0.221
	990102	D	n.d.	n.d.	0.033	0.034	n.d.	n.d.	0.179	0.180
	990103	D	n.d.	0.023	0.033	0.057	n.d.	n.d.	0.097	0.098
H (Urawa)	990107	L	n.d.	n.d.	0.105	0.106	n.d.	n.d.	0.266	0.267
	990109	L	n.d.	n.d.	0.034	0.035	n.d.	n.d.	n.t.	-
	990202	L	n.d.	0.009	0.031	0.041	n.d.	0.008	n.t.	-
I (Tokyo)	990114	L	n.d.	n.d.	0.023	0.024	n.d.	0.024	0.039	0.064
	990115	L	n.d.	n.d.	0.290	0.291	n.d.	n.d.	0.279	0.280
	990116	L	n.d.	n.d.	n.d.	0.002	n.d.	n.d.	0.011	0.012
J (Kitasoma)	990127	G	n.d.	0.011	0.041	0.053	n.d.	n.d.	0.171	0.172
	990128	G	n.d.	n.d.	0.071	0.072	n.d.	n.t.	0.062	-
	990131	G	n.d.	0.012	0.008	0.021	0.011	n.d.	0.062	0.074
mean			0.004	0.013	0.099	0.118	0.004	0.009	0.166	0.184
sd			0.009	0.027	0.093	0.110	0.009	0.015	0.099	0.108

indoor sampling site; K:kitchen, L:living room, DK:dining kitchen, D:dining room, G:guest room

n.t.:not tested n.d.: less than 0.001 (ng/m³)

one half of the detection limit was used for the statistical calculation.

Table 2 Continue

Volunteer (residence)	sampling data	indoor sampling site	PAH concentration (ng/m ³)							
			BbC							
			indoor				Outdoor			
			≥10μm	2.5~10μm	2.5μm≥	Total	≥10μm	2.5~10μm	2.5μm≥	Total
A (Tokyo)	981126	K	n.d.	n.d.	0.049	0.050	n.d.	0.034	0.336	0.370
	981128	K	n.d.	n.d.	n.d.	0.001	n.d.	n.d.	0.061	0.062
	981128	K	n.d.	n.d.	0.306	0.307	0.024	0.046	0.221	0.291
B (Sagamihara)	981201	L	0.034	0.022	0.114	0.170	n.d.	0.028	0.372	0.400
	981202	L	n.d.	n.d.	0.087	0.088	n.d.	n.d.	0.091	0.092
	981203	L	0.023	0.038	0.206	0.267	0.019	0.026	0.261	0.306
C (Sayama)	981205	L	0.025	0.225	0.355	0.605	n.d.	n.d.	0.318	0.319
	981206	L	n.d.	n.d.	0.129	0.130	0.024	n.d.	0.088	0.112
	981207	L	n.d.	n.t.	0.129	-	n.d.	0.019	0.227	0.246
D (Yokohama)	981209	K	n.d.	n.d.	0.096	0.097	0.017	0.045	0.459	0.521
	981210	K	0.073	0.236	0.184	0.493	n.d.	0.035	0.160	0.195
	981211	K	n.d.	0.025	0.250	0.275	0.027	n.d.	0.263	0.290
E (Yokohama)	981216	DK	0.026	0.032	0.218	0.276	0.048	0.883	0.561	1.492
	981217	DK	n.t.	0.019	0.025	-	n.d.	n.d.	0.044	0.045
	981218	DK	n.d.	n.d.	0.559	0.560	0.019	0.034	0.381	0.434
F (Higasi-murayama)	981222	DK	n.d.	n.d.	0.110	0.111	0.038	n.d.	0.135	0.173
	981223	DK	n.d.	n.d.	0.194	0.195	n.d.	n.d.	0.105	0.106
	981224	DK	0.022	n.d.	0.047	0.069	n.d.	n.d.	0.122	0.123
G (Funabashi)	990101	D	0.026	n.d.	0.034	0.060	n.d.	0.040	0.193	0.233
	990102	D	n.d.	n.d.	0.041	0.042	n.d.	n.d.	0.227	0.228
	990103	D	n.d.	0.020	0.033	0.054	n.d.	n.d.	0.092	0.093
H (Urawa)	990107	L	n.d.	0.018	0.050	0.073	n.d.	n.d.	0.312	0.313
	990109	L	n.d.	n.d.	0.038	0.039	0.025	n.d.	n.t.	-
	990202	L	0.008	0.011	0.043	0.062	n.d.	0.005	n.t.	-
I (Tokyo)	990114	L	n.d.	n.d.	0.027	0.028	n.d.	n.d.	0.054	0.055
	990115	L	n.d.	n.d.	0.380	0.381	n.d.	n.d.	0.365	0.366
	990116	L	0.009	n.d.	0.013	0.022	0.007	n.d.	0.014	0.021
J (Kitasoma)	990127	G	n.d.	0.013	0.050	0.063	n.d.	n.d.	0.208	0.209
	990128	G	n.d.	n.d.	0.084	0.085	n.d.	n.t.	0.076	-
	990131	G	n.d.	0.011	n.d.	0.012	0.011	0.008	0.096	0.115
mean			0.009	0.023	0.128	0.165	0.009	0.042	0.209	0.267
sd			0.016	0.058	0.132	0.170	0.013	0.163	0.139	0.278

indoor sampling site; K:kitchen, L:living room, DK:dining kitchen, D:dining room, G:guest room

n.t.:not tested

n.d.: less than 0.001 (ng/m³)

one half of the detection limit was used for the statistical calculation.

Table 2 Continue

Volunteer (residence)	sampling data	indoor sampling site	PAH concentration (ng/m ³)							
			BghiP							
			indoor				Outdoor			
			≥10μm	2.5~10μm	2.5μm≥	Total	≥10μm	2.5~10μm	2.5μm≥	Total
A (Tokyo)	981126	K	n.d.	n.d.	1.112	1.117	0.094	0.183	1.883	2.160
	981128	K	n.d.	n.d.	n.d.	0.006	n.d.	n.d.	0.395	0.400
	981128	K	n.d.	n.d.	2.443	2.477	0.164	0.238	1.315	1.717
B (Sagamihara)	981201	L	n.d.	n.d.	0.628	0.633	n.d.	0.092	2.077	2.171
	981202	L	n.d.	n.d.	0.425	0.430	n.d.	n.d.	0.472	0.477
	981203	L	n.d.	n.d.	1.005	1.010	n.d.	n.d.	1.275	1.280
C (Sayama)	981205	L	n.d.	0.257	1.684	1.943	n.d.	0.080	1.649	1.731
	981206	L	n.d.	n.d.	0.609	0.614	n.d.	n.d.	0.455	0.460
	981207	L	n.d.	n.t.	0.639	-	n.d.	0.087	1.371	1.460
D (Yokohama)	981209	K	n.d.	n.d.	0.571	0.576	0.070	0.119	2.834	3.023
	981210	K	n.d.	n.d.	1.227	1.232	n.d.	0.149	0.994	1.145
	981211	K	n.d.	n.d.	1.254	1.259	n.d.	0.070	1.347	1.419
E (Yokohama)	981216	DK	n.d.	0.107	1.415	1.524	0.115	0.165	3.833	4.113
	981217	DK	n.t.	n.d.	0.261	-	n.d.	n.d.	0.499	0.504
	981218	DK	n.d.	0.073	3.050	3.125	n.d.	0.090	2.141	2.233
F (Higasi- murrayama)	981222	DK	n.d.	n.d.	0.570	0.574	0.222	n.d.	0.706	0.930
	981223	DK	n.d.	n.d.	0.813	0.817	n.d.	n.d.	0.429	0.433
	981224	DK	n.d.	n.d.	0.338	0.342	n.d.	n.d.	0.998	1.002
G (Funabashi)	990101	D	n.d.	n.d.	0.132	0.128	n.d.	n.d.	0.839	0.843
	990102	D	n.d.	0.078	0.135	0.215	n.d.	n.d.	1.289	1.285
	990103	D	n.d.	n.d.	0.105	0.109	n.d.	n.d.	0.307	0.311
H (Urawa)	990107	L	n.d.	n.d.	0.749	0.754	n.d.	n.d.	1.906	1.911
	990109	L	n.d.	n.d.	0.108	0.113	n.d.	n.d.	n.t.	-
	990202	L	n.d.	n.d.	0.211	0.216	n.d.	n.d.	n.t.	-
I (Tokyo)	990114	L	n.d.	n.d.	0.129	0.134	n.d.	n.d.	0.273	0.278
	990115	L	n.d.	n.d.	1.661	1.666	n.d.	n.d.	1.661	1.666
	990116	L	n.d.	n.d.	0.060	0.065	n.d.	n.d.	0.068	0.073
J (Kitasoma)	990127	G	n.d.	0.027	0.191	0.220	n.d.	n.d.	0.886	0.891
	990128	G	n.d.	n.d.	0.384	0.389	n.d.	n.t.	0.357	-
	990131	G	n.d.	n.d.	0.089	0.094	n.d.	n.d.	0.095	0.100
mean			0.002	0.020	0.733	0.778	0.024	0.045	1.156	1.260
sd			-	0.053	0.738	0.783	0.054	0.000	0.880	0.946

indoor sampling site; K:kitchen, L:living room, DK:dining kitchen, D:dining room, G:guest room

n.t.:not tested

n.d.: less than 0.004 (ng/m³)

one half of the detection limit was used for the statistical calculation.

Table 2 Continue

Volunteer (residence)	sampling data	indoor sampling site	PAH concentration (ng/m ³)							
			dBaP							
			indoor				Outdoor			
			≥10μm	2.5~10μm	2.5μm≥	Total	≥10μm	2.5~10μm	2.5μm≥	Total
A (Tokyo)	981126	K	n.d.	n.d.	0.117	0.120	n.d.	n.d.	0.273	0.276
	981128	K	n.d.	n.d.	n.d.	0.005	n.d.	n.d.	0.068	0.071
	981128	K	n.d.	n.d.	0.263	0.266	n.d.	n.d.	0.205	0.208
B (Sagamihara)	981201	L	n.d.	n.d.	0.110	0.113	n.d.	n.d.	0.323	0.326
	981202	L	n.d.	n.d.	0.089	0.092	n.d.	n.d.	0.090	0.093
	981203	L	n.d.	n.d.	0.181	0.184	n.d.	n.d.	0.214	0.217
C (Sayama)	981205	L	n.d.	0.104	0.273	0.378	n.d.	n.d.	0.267	0.270
	981206	L	n.d.	n.d.	0.084	0.087	n.d.	n.d.	0.094	0.097
	981207	L	n.d.	n.t.	0.109	-	n.d.	n.d.	0.216	0.219
D (Yokohama)	981209	K	n.d.	n.d.	0.099	0.102	n.d.	n.d.	0.361	0.364
	981210	K	n.d.	n.d.	0.174	0.177	n.d.	0.077	0.147	0.225
	981211	K	n.d.	n.d.	0.218	0.221	n.d.	n.d.	0.131	0.134
E (Yokohama)	981216	DK	n.d.	n.d.	0.209	0.212	0.064	n.d.	0.537	0.602
	981217	DK	n.t.	n.d.	0.069	-	n.d.	n.d.	0.096	0.099
	981218	DK	n.d.	n.d.	0.527	0.530	n.d.	n.d.	0.357	0.360
F (Higasi- murayama)	981222	DK	n.d.	n.d.	0.104	0.107	n.d.	n.d.	0.112	0.185
	981223	DK	n.d.	n.d.	0.173	0.176	n.d.	n.d.	0.103	0.106
	981224	DK	n.d.	n.d.	0.073	0.076	n.d.	n.d.	0.183	0.186
G (Funabashi)	990101	D	n.d.	n.d.	n.d.	0.005	n.d.	n.d.	0.204	0.207
	990102	D	n.d.	n.d.	0.050	0.053	n.d.	n.d.	0.236	0.239
	990103	D	n.d.	n.d.	n.d.	0.005	n.d.	n.d.	0.087	0.090
H (Urawa)	990107	L	n.d.	n.d.	0.143	0.146	n.d.	n.d.	0.336	0.339
	990109	L	0.054	n.d.	n.d.	0.057	n.d.	n.d.	n.t.	-
	990202	L	n.d.	n.d.	0.041	0.044	n.d.	n.d.	n.t.	-
I (Tokyo)	990114	L	n.d.	n.d.	n.d.	0.005	n.d.	n.d.	n.d.	0.005
	990115	L	n.d.	n.d.	0.370	0.373	n.d.	n.d.	0.334	0.337
	990116	L	n.d.	n.d.	n.d.	0.005	n.d.	n.d.	n.d.	0.005
J (Kitasoma)	990127	G	n.d.	n.d.	0.041	0.044	n.d.	n.d.	0.187	0.190
	990128	G	n.d.	n.d.	0.080	0.083	n.d.	n.t.	0.066	-
	990131	G	n.d.	n.d.	0.026	0.029	n.d.	n.d.	0.023	0.026
mean			0.003	0.005	0.125	0.132	0.004	0.004	0.188	0.203
sd			0.010	0.019	0.120	0.129	0.011	0.014	0.128	0.133

indoor sampling site; K:kitchen, L:living room, DK:dining kitchen, D:dining room, G:guest room

n.t.:not tested n.d.: less than 0.003(ng/m³)

one half of the detection limit was used for the statistical calculation.

Table 3 Correlations between mutagenic activities and BaP concentrations

			Mutagenicity (YG1024, -S9)		Mutagenicity (YG1024, +S9)	
			Indoor	Outdoor	Indoor a)	Outdoor
			2.5 μm≥	2.5 μm≥	2.5 μm≥	2.5 μm≥
Mutagenicity (YG1024, -S9)	Indoor	2.5 μm≥	-			
	Outdoor	2.5 μm≥	0.5625 **	-		
Mutagenicity (YG1024, +S9)	Indoor a)	2.5 μm≥	-0.2916	-0.3254	-	
	Outdoor	2.5 μm≥	-0.3909	-0.2218	0.9484 **	-
BaP	Indoor	≥10 μm	-0.0505	0.0267	-0.7588 *	-0.1238
		2.5~10 μm	0.0892	-0.1415	-0.2040	-0.2225
		2.5 μm≥	0.1899	0.0028	-0.3251	-0.3237
		≥10 μm	0.0328	-0.1248	-0.3764	-0.2259
	Outdoor	2.5~10 μm	0.2406	-0.1047	-0.0254	-0.1860
		2.5 μm≥	0.2387	0.2485	-0.1397	-0.3683

			BaP concentration					
			Indoor			Outdoor		
			≥10 μm	2.5~10 μm	2.5 μm≥	≥10 μm	2.5~10 μm	2.5 μm≥
BaP	Indoor	≥10 μm	-					
		2.5~10 μm	0.2796	-				
		2.5 μm≥	0.1450	0.4935 **	-			
	Outdoor	≥10 μm	0.3454	0.3326	0.4575 *	-		
		2.5~10 μm	0.1596	0.2886	0.4652 *	0.7617 **	-	
		2.5 μm≥	0.0246	0.2979	0.5619 **	0.6112 **	0.7222 **	-

*P<5%, **P<1%

n=:<10, others 14-30

要 約

東京都内及び近郊にある一般家庭(10家庭)を対象に、1回24時間、3日間、その室内・室外で低流量小型カスケードインパクターを用いて浮遊粒子(10 μ m以上、10 $\sim$ 2.5 μ m、2.5 μ m以下の3段階に分級)を採取し、その抽出物の変異原性並びにPAH濃度を測定して、本装置の有効性について検討を行った。その結果、(1)YG1024ではS9mix添加時より無添加条件下の方が強い変異原性を示すこと、(2)室内空気よりも室外空気試料の方が強い変異原性を示すこと、及び(3)粒子径が小さくなるにつれて変異原性が強くなること、などが認められた。一方、PAH濃度は2.5 μ m以下>2.5 $\sim$ 10 μ m>10 μ m以上となり、その80 $\sim$ 90%以上が2.5 μ m以下の粒子に含まれていることが認められた。

文 献

- 1) Pierce, R.C. and Katz, M.: Dependency of polynuclear aromatic hydrocarbon content on size distribution of atmospheric aerosols. *Environ. Sci. Technol.*, **9**, 347-353 (1975)
- 2) Broddin, G., Van Vaeck, L. and Van Cauwenberghe, K.: On the size distribution of polycyclic aromatic hydrocarbon containing particles from a coke oven emission source. *Atmos. Environ.*, **11**, 1061-1064 (1977)
- 3) Sugita, K., Sun, C., Goto, S., Tanabe, K. and Ishii, T.: Particle size distribution of polycyclic aromatic hydrocarbons in the air. "Indoor air '96". Vol.3, 391-396 (1996)
- 4) Heyder, J., Gebhart, J., Rudolf, G., Schiller, C. and Stahlhofen, W.: Deposition of particles in the human respiratory tract in the size range 0.005 - 15 μ m. *J. Aerosol Sci.*, **17**, 811-825 (1986)
- 5) 高木敬彦, 羽田野昭, 光崎研一, 後藤純雄, 松下秀鶴: 空気浮遊粒子中の変異原物質への曝露要因に関する研究～個人曝露レベルと室外空気汚染レベルとの比較～, 大気汚染学会誌, **29**, 16-23 (1994)
- 6) 遠藤 治, 小谷野道子, 関谷幸江, 関 幸雄, 高木敬彦, 光崎研一, 後藤純雄: 空気中の変異原性物質の個人曝露に及ぼす喫煙及び受動喫煙の影響, 環境化学, **7**, 281-289 (1997)
- 7) 杉山智彦, 平原 悟, 雨谷敬史, 松下秀鶴, 相馬光之, 井上浩三: 低流量・小型カスケードインパクターの試作とその性能評価, 環境化学, **8**, 813-822 (1998)
- 8) 小谷野道子, 遠藤 治, 後藤純雄, 田辺 潔, Koottatep, S., 松下秀鶴: チェンマイにおける大気中の発癌性多環芳香族炭化水素濃度: 東京との比較・衛生化学, **44**, 214-225 (1998)
- 9) Kado, N.Y., Langley, D. and Eisenstadt, E.: A simple modification of *Salmonella* liquid-incubation assay increased sensitivity for detecting mutagens in human urine. *Mutat. Res.*, **121**, 25-32 (1983)
- 10) Kado, N.Y., Guirguis, G.N., Flessel, C.P., Chan, R.C., Chang, K.I. and Wesolowski, J.J.: Mutagenicity of fine (<2.5 μ m) airborne particles; diurnal variation in community air determined by a *Salmonella* micro preincubation (microsuspension) procedure. *Mutagenesis*, **8**, 53-66 (1986)
- 11) 大久保忠利, 遠藤 治, 後藤純雄, 峯木 茂, 渡辺悦生, 林 哲仁: マイクロサスペンション法のブレインキュベーション条件の検討, 環境化学, **8**, 541-546 (1998)
- 12) 能美健彦: ニトロアレーン, 芳香族アミンに高感受性を示すサルモネラ菌株の開発, 環境変異原研究, **15**, 1-11 (1993)
- 13) 田辺 潔, 郭 錦堂, 今宮俊一郎, 松下秀鶴: カラム濃縮－高速液体クロマトグラフィー－分光蛍光法による極微量空気浮遊粒子のPAHの分析, 大気汚染学会誌, **22**, 334-339 (1987)
- 14) Matsushita, H., Endo, O., Goto, S., Shimizu, H., Matsumoto, H., Tamakawa, K., Endo, T., Tokiwa, H. and Ando, M.: Collaborative study on mutation assay for airborne particulates in Japan: A trial to minimize interlaboratory variation. *Mutat. Res.*, **271**, 1-12 (1991)
- 15) 後藤純雄: 環境空気の変異原性の測定, 環境と測定技術, **25**, 30-43 (1998)
- 16) 坂部美雄: 焼き魚から生成する多環芳香族炭化水素について, 対ガン戦略研究班(代表鈴木武夫), 生活環境における発がん関連物質への曝露実態の総合的把握と評価に関する研究, 研究報告書(平成元年度)
- 17) 高橋ゆかり, 雨谷敬史, 松下秀鶴: 蒸気状及び粒子状多環芳香族炭化水素による室内及び大気環境の汚染状況～静岡市及び清水市における調査結果, 環境化学, **8**, 71-87 (1998)
- 18) 松村年郎, 長田英二, 小嶋茂雄: 冬季一般家庭における室内汚染について(暖房器具による影響を中心に). 大気汚染学会誌, **28**, 140-152 (1993)
- 19) 高木敬彦, 菅 正和, 小谷野道子, 後藤純雄, 加藤行男, 金内長司, 光崎研一: 石油およびガストーブの使用と室内多環芳香族炭化水素濃度, 日本獣医師会誌, **50**, 169-172 (1997)