

条件下でたばこ 1 本当たり 205,000 の復帰突然変異コロニーを誘発した。試験に供した 10 銘柄のうち、B, C, E, G 及び H は、J を親銘柄とする低タールたばこであるが、HCI 条件で得られた試料の変異原性は、ISO 条件で捕集されたタール量の多い親銘柄の変異原性よりも高かった。これらの結果から、“低タール”と表示されているたばこであってもヒトへの曝露量やリスクの低減には必ずしも結びつかないことが示唆された。

喫煙装置を用いて捕集された国産主要 10 銘柄たばこ主流煙の DMSO 抽出物の変異原性を調べた。WHO プロトコルに従い、国産たばこ売れ筋 10 銘柄を対象とし、各銘柄 3 ロットを集めた。主流煙捕集は、ISO 対応喫煙装置を用い、ISO 及びカナダ保健省の両条件下で行った。DMSO 抽出溶液をサルモネラ TA100、TA98 及び YG1024 の 3 種類を用い、S9 mix による代謝活性化を行った場合と行わなかった場合の両条件下でエームス試験に供した。変異原性は、抽出溶媒の種類に関わらず、主に TA98 及び YG1024 株 S9mix 添加条件下で認められた。最も高い活性を示した銘柄は、昨年度の 2-プロパノール抽出試料では両菌株ともマイルドセブンオリジナルであったが、DMSO 抽出試料ではマイルドセブンスーパーライト (YG1024) とキャビンマイルド (TA98 株) であった。またいくつかの銘柄で、試験に供した 3 ロット間に若干大きな変動が認められた。これらの結果から、銘柄間のみならず、同一銘柄の製品ロット間にも、たばこ煙の毒性に関係する差があることが示唆された。

海上自衛隊における分煙効果に関する調査から、自衛隊病院 2 施設と比較して、護衛艦・潜水艦の分煙対策の方が効果的に行われていた。これらを決定する要因として、施設内における喫煙区画の設置場所や、構造、喫煙区画の密閉性、気流の影響などが示唆された。また、空气中に存在する粒子状ニコチンとガス状のニコチンを、定量性よく正確に測定することで分煙効果を評価する指標として有用であることを確認した。PAH は、ニコチンと比較した場合喫煙による寄与率は大きくないものの、化石燃料の燃焼や、調理などによる発生も含めて発がん関連物質の指標と考えられるので、

ニコチンと組み合わせて測定することにより分煙効果を評価する上で補助的だが重要な指標となることが示唆された。

F. 健康危機情報

特になし。

G. 研究発表

1. 論文発表

(研究代表者：遠藤 治)

- 1) 影山志保、中島大介、山本貴士、峯木茂、遠藤治、高木敬彦、光崎研一、後藤純雄. 植物質土壌改良剤の変異原性検索. 環境化学 16: 43-49 (2006)
- 2) 大森清美、中島大介、江副優香、森康明、伏脇祐一、遠藤治、武田健、後藤純雄. 粒径別に分級採取した空気浮遊粒子の発がんプロモーション活性. 環境化学 16: 119-123 (2006).
- 3) Endo O, Koyano M, Watanabe I, Sugita K, Yamashita N, Nakajima D, Goto S. Perfluorooctane sulfonate (PFOS) and Perfluorooctanoic acid (PFOA) levels in urban airborne particles - Long term trends in Tokyo in the 1980s, 1990s and 2000s. Organohalogen Compounds 26: 2035-2036 (2006).
- 4) 藤田博子、米倉明、遠藤治、鈴木元. 海上自衛隊における分煙効果に関する研究—自衛隊関連施設でのニコチンおよび多環芳香族炭化水素の測定—. 防衛衛生, 54: 123-132 (2007).
- 5) Yamamoto N, Muramoto A, Yoshinaga J, Shibata K, Endo M, Endo O, Hirabayashi M, Tanabe K, Goto S, Yoneda M, Shibata Y. Comparison of carbonaceous aerosols in Tokyo before and after implementation of diesel exhaust restriction. Environ. Sci. & Technol. 41:6357-6362 (2007).
- 6) 遠藤治、鈴木元、緒方裕光、後藤純雄. たばこの煙の有害性と諸外国の動向. 日本禁煙医師連盟通信, 16: 1-4 (2007).

- 7) 遠藤治. WHO TobReg 提言の解説～ TobaccoControl の論文の概要と解説. 日本禁煙医師連盟通信, 17: 4-6 (2008).
- 8) Inoue S, Miyamoto S, Ogasawara M, Endo O, Suzuki G: Simultaneous determination of medicinal ingredients in so-called health-promoting food using liquid chromatography tandem mass spectrometry with a pentafluorophenyl stationary phase. *J. Health Sci.* (2009 April) in press.
- 9) Endo O, Matsumoto M, Inaba Y, Sugita K, Nakajima D, Goto S, Ogata H, Suzuki G. Nicotine, tar and mutagenicity of mainstream smoke generated by machine smoking with ISO and HCI regimens of major Japanese cigarette brands. *Journal of Health Science* (2009) in press
- (分担研究者: 鈴木 元)
- 1) Imaizumi M, Usa T, Tominaga T, Neriishi K, Akahoshi M, Nakashima E, Ashizawa K, Hida A, Soda M, Fujiwara S, Yamada M, Ejima E, Yokoyama N, Okubo M, Sugino K, Suzuki G, Maeda R, Nagataki S, Eguchi K: Radiation dose-response relationships for thyroid nodules and autoimmune thyroid diseases in Hiroshima and Nagasaki atomic-bomb survivors 55 – 58 years after radiation exposure. *JAMA* 295: 1011-22 (2006).
- 2) Hakoda M, Kasagi F, Kusunoki Y, Matsuura S, Hayashi T, Kyoizumi S, Akashoshi M, Suzuki G, Kodama K, Fujiwara S: Levels of antibodies to microorganisms implicated in atherosclerosis and of C-reactive protein among atomic bomb survivors. *Radiat Res*, 166: 360-366 (2006).
- 3) Ohashi W, Fujiwara S, Suzuki G, Kishi T, Sora M, Matsuura S, Hakoda M, Yamada M, Chayama K. Feasibility of freeze-dried sera for serological and molecular biological detection of hepatitis B and C viruses. *J. Clin. Microbiol.* 44: 4593-5 (2006).
- 4) 藤田博子, 米倉明, 遠藤治, 鈴木元. 海上自衛隊における分煙効果に関する研究—自衛隊関連施設でのニコチンおよび多環芳香族炭化水素の測定—. *防衛衛生*, 54: 123-132 (2007).
- 5) 遠藤治, 鈴木元, 緒方裕光, 後藤純雄. たばこの煙の有害性と諸外国の動向. *日本禁煙医師連盟通信*, 16: 1-4 (2007).
- 6) Ohishi W, Fujiwara S, Colonge JB, Suzuki G, Akahoshi M, Nishi N, Takahashi I, Chayama K: Risk factors for hepatocellular carcinoma in a Japanese population: a nested case-control study, *Helicobacter pylori*. *Cancer Epidemiology Biomarkers & Prevention*. 17(4): 846-854 (2008).
- 7) Tatsukawa Y, Yamada M, Hsu W.-L., Cologne JB, Suzuki G et al.: White blood cell count, especially neutrophil count as a predictor of hypertension incidence among Japanese population. *Hypertens Res* 31:1391-7 (2008).
- 8) Fujiwara S, Suyama A, Cologne JB, Akahoshi M, Yamada M, Suzuki G, Koyama K, Takahashi N, Kasagi F, Grant EJ, Lagarde F, Hsu WL, Furukawa K, Ohishi W, Tatsukawa Y, Neriishi K, Takahashi I, Ashizawa K, Hida A, Imamizumi M, Nagano J, Cullings HM, Katayama H, Ross P, Kodama K: Prevalence of adult-onset multifactorial disease among offspring of atomic bomb survivors. *Radiat Res* 170: 451-7 (2008).
- 9) Uchiyama S, Inaba Y, Matsumoto M, Suzuki G. Reductive amination of carbonyl 2,4-dinitrophenylhydrazones using 2-picoline borate and high-performance liquid chromatographic analysis. *Analytical Chem*, 81: 485-9 (2009).
- 10) Inoue S, Miyamoto S, Ogasawara M,

Endo O, Suzuki G: Simultaneous determination of medicinal ingredients in so-called health-promoting food using liquid chromatography tandem mass spectrometry with a pentafluorophenyl stationary phase. *J. Health Sci.* (2009 April) in press.

- 11) Endo O, Matsumoto M, Inaba Y, Sugita K, Nakajima D, Goto S, Ogata H, Suzuki G. Nicotin, tar and its mutagenicity of mainstream smoke generated by machine smoking with ISO and HCI regiments of major Japanese cigarette brands. *J. Health Sci* (2009) in press.

(分担研究者：緒方裕光)

- 1) 緒方裕光. 放射線診療を受ける患者さんの放射線リスクアセスメント. 医療放射線防護 NEWSLETTER. 46: 5-8 (2006).
- 2) 遠藤治、鈴木元、緒方裕光、後藤純雄. たばこの煙の有害性と諸外国の動向. 日本禁煙医師連盟通信, 16 : 1-4 (2007).
- 3) Nakajima H, Mizuta N, Fujiwara I, Sakaguchi K, Ogata H, Magae J, Yagita H and Koji T. Blockade of the Fas/Fas ligand interaction suppresses hepatocyte apoptosis in ischemia-reperfusion rat liver. *Apoptosis* 13: 1013-21 (2008).
- 4) Otsuka K, Koana T, Tomita M, Ogata H and Tauchi H. Rapid Myeloid Recovery as a Possible Mechanism of Whole-Body Radioadaptive Response. *Rad. Res.* 170: 307-15 (2008).
- 5) Abe T, Ohde S, Ishimatsu S, Ogata H, Hasegawa T, Nakamura T and Tokuda Y. Effects of meteorological factors on the onset of subarachnoid hemorrhage: A time-series analysis. *J Clinical Neuroscience* 15:1005-10 (2008).
- 6) Endo O, Matsumoto M, Inaba Y, Sugita K, Nakajima D, Goto S, Ogata H, Suzuki G. Nicotin, tar and its mutagenicity of

mainstream smoke generated by machine smoking with ISO and HCI regiments of major Japanese cigarette brands. , *J. Health Sci.*, in press.

(分担研究者：後藤純雄)

- 1) 影山志保、中島大介、山本貴士、峯木 茂、遠藤 治、高木敬彦、光崎研一、後藤純雄：植物質土壌改良剤の変異原性検索：環境化学 16(1) 43-49 (2006)
- 2) 大森清美、中島大介、江副優香、森 康明、伏脇裕一、遠藤 治、武田 健、後藤純雄：粒径別に分級採取した空気浮遊粒子の発がんプロモーション活性：環境化学 16(1) 119-123 (2006)
- 3) Daisuke Nakajima, Tin Tin Win Shwe, Masaki Kakeyama, Hidekazu Fujimaki, Sumio Goto : Determination of Toluene in Brain of Freely Moving Mice using Solid-Phase Microextraction Technique : *NeuroToxicology*,27(4) 615-618 (2006).
- 4) Takafumi Yamaguchi, Daisuke Nakajima, Yuka Ezoe, Hidekazu Fujimaki, Keiichi Arashidani and Sumio Goto : Measurement of Volatile Organic Compounds (VOCs) in New Residential Buildings and Their Surroundings and VOC Behavior Over Time : *J. UOEH* 28(1) 13-27 (2006)
- 5) Daisuke Nakajima, Shin Asada, Shiho Kageyama, Takashi Yamamoto, Hidetoshi Kuramochi, Noriho Tanaka, Ken Takeda and Sumio Goto : Activity Related to Carcinogenicity of Plastic Additives in the Benzophenone Group *J. UOEH* 28(2) 143-156 (2006)
- 6) Daisuke Nakajima, Ruri Ishii, Shiho Kageyama, Yoshiki Onji, Shigeru Mineki, Nobuhisa Morooka, Kosuke Takatori and Sumio Goto : Genotoxicity of Microbial Volatile Organic Compounds : *Journal of Health Science*, 52(2) 148-153 (2006)
- 7) 滝口 浴、津田 紋、吉川沙央里、中島大介、

- 後藤純雄、小野寺祐夫：水中における酸化防止剤 (BHA, BHT) と塩素との反応及び生成物の変位原性試験：環境化学 16(2) 219-228(2006)
- 8) Sukeo Onodera, Tomoko Hayashi, Tomoyo Fujiyama, Tsunehiro Ohri, Yasuaki Mori, Minoru Kuwahara, Yuka Ezoe, Daisuke Nakajima and Sumio Goto : TLC Fractionation and Characterization of Ames Mutagenic Substances in Chlorine-treated 4-methylphenol Solution in the Presence of Bromide Ion : Journal of Environmental Chemistry 16(2) 229-237(2006)
- 9) Rumiko Murayama, Sumio Goto, Daisuke Nakajima, Hidekazu Fujimaki, Ikuo Watanabe, Keiichi Arashidani and Iwao Uchiyama : Measurements of Exposure Concentrations of Benzene, Toluene and Xylene and Amounts of Respiratory Uptake : J. UOEH 28(2) 173-183 (2006)
- 10) Hidetoshi Kuramotochi, Daisuke Nakajima, Sumio Goto and Katsuya Kawamoto, Kouji Maeda : Water Solubility of Solid Solution of Phenanthrene and Anthracene Mixture : Polycyclic Aromatic Compounds 26(4) 299-312 (2006)
- 11) 柴野一則, 吉澤秀治, 後藤純雄, 小川 游, 矢島博文：超微細化天然繊維を接着剤とした炭化物ボードの機械的特性：Material Technology 24 (3) 131-137 (2006)
- 12) Tin-Tin-Win-Shwe, D. Mitsushima, D. Nakajima, S. Ahmed, S. Yamamoto, S. Tsukahara, M. Kakeyama, S. Goto, H. Fujimaki: Toluene induces rapid and reversible rise of hippocampal glutamate and taurine neurotransmitter levels in mice using in vivo microdialysis. Toxicology Letters, 168, 75-82 (2007)
- 13) 陰地義樹、武田耕三、松浦洋文、芳賀敏実、中島大介、高木敬彦、後藤純雄：空气中真菌類の分子マーカーとしてのエルゴステロールの大量注入 GC-MS 分析、環境化学, 17:47-52 (2007)
- 14) Harunobu Nakashima, Daisuke Nakajima, Yukihiko Takagi, Sumio Goto: Volatile organic compound (VOC) analysis method and anti-VOC measures in water-based paints. Journal of Health Science, 53: 311-319 (2007)
- 15) Tin-Tin-Win-Shwe, Shoji Yamamoto, Daisuke Nakajima, Akiko Furuyama, Atsushi Fukushima, Shohel Ahmed, Sumio Goto, Hideyuki Fujimaki: Modulation of neurological related allergic reaction in mice exposed to low-level toluene. Toxicology and Applied Pharmacology 222: 17-24 (2007)
- 16) Sumio Goto, Xiong Junfen Daisuke Nakajima, Kazuho Inaba, Michio Ohata, Shyuji Yoshizawa, Hirofumi Yajima, Shin-ichi Sakai: A Method for Removing Copper from Carbonized Waste Wood Using an Electrical Current. Bull. Environ. Contam. Toxicol. 79: 126-129 (2007)
- 17) D. Nakajima, S. Nagame, H. Kuramochi, K. Sugita, S. Kageyama, T. Shiozaki, T. Takemura, F. Shiraiishi, S. Goto : Polycyclic Aromatic Hydrocarbon Generation Behavior in the Process of Carbonization of Wood. Bull. Environ. Contam. Toxicol. 79: 221-225 (2007)
- 18) 中島大介、影山志保、白石不二雄、鎌田 亮、永洞真一郎、高橋 悟、大金仁一、大谷仁己、堀内孝信、渡邊雅之、濱根貴志、山根一城、原口公子、陣矢大助、門上希和夫、後藤純雄、鐘迫典久、白石寛明、鈴木規之：河川水中の遺伝毒性物質モニタリングへの発光 umu 試験の適用性について、環境化学, 17: 453-460 (2007)
- 19) Tin-Tin-Win-Shwe, Shinji Tsukahara, Soheli Ahmed, Atsushi Fukushima, Shoji Yamamoto, Masaki Kakeyama, Daisuke Nakajima, Sumio Goto, Takahiro

- Kobayashi and Hidekazu Fujimaki: Athymic nude mice are insensitive to low-level toluene-induced up-regulation of memory-related gene expressions in the hippocampus, *NeuroToxicology* 28: 957-964 (2007)
- 20) Yamamoto N, Muramoto A, Yoshinaga J, Shibata K, Endo M, Endo O, Hirabayashi M, Tanabe K, Goto S, Yoneda M, Shibata Y. Comparison of carbonaceous aerosols in Tokyo before and after implementation of diesel exhaust restriction. *Environ. Sci. & Technol.* 41:6357-6362 (2007).
- 21) 遠藤治, 鈴木元, 緒方裕光, 後藤純雄. たばこの煙の有害性と諸外国の動向. 日本禁煙医師連盟通信, 16: 1-4 (2007).
- 22) Mineki S, Kawakami Y, Nakajima D, Shiozaki T, Sugita K, Takagi Y, Shiraishi F, Goto S. Recovery Rate in Condensation of Semivolatile Polycyclic Aromatic Hydrocarbon (PAH) Solutions. *Journal of Environmental Chemistry* 18 (1),43-50 (2008)
- 23) Kuramochi H, Nakajima D, Goto S, Sugita K, Wu W, Kawamoto K. HCl emission during co-pyrolysis of demolition wood with a small amount of PVC film and the effect of wood constituents on HCL emission reduction, *FUEL* 87, 2155-2157 (2008).
- 24) Takagi Y, Nakajima D, Kato Y, Okatani AT, Kohzaki K, Inaba K, Mineki S, Goto S. Mutagenicity of Surface Sand in Park Sandboxes, *Journal of Environmental Chemistry* 18 (2),187-195 (2008).
- 25) Mineki S, Kobayashi A, Kageyama S, Nakajima D, Shiraishi F, Takagi Y, Onodera S, Takeda K, Goto S. Detection of mutagenicity by Ames preincubation method of fine commercial particles, *Material Technology* 26(6): 303-310 (2008).
- 26) Nakajima D, Tsukahara S, Hojo R, Kageyama S, Goto S, Shiraishi H, Shiraishi F, Fujimaki H. Volatile Measurement of Toluene Concentrations in the Blood of Fetuses of Pregnant Rats Exposed to Low Concentration Toluene using Headspace Solid Phase Micro Extraction Gas Chromatograph Mass Spectrometry. *Journal of Health Science* 55(1): 50-55 (2009)
- 27) Endo O, Matsumoto M, Inaba Y, Sugita K, Nakajima D, Goto S, Ogata H, Suzuki G. Nicotine, tar and mutagenicity of mainstream smoke generated by machine smoking with ISO and HCI regimens of major Japanese cigarette brands. *Journal of Health Science* (2009) in press
- (分担研究者: 稲葉洋平)
- 1) Uchiyama S, Inaba Y, Matsumoto M, Suzuki G. Reductive amination of carbonyl 2,4-dinitrophenylhydrazones using 2-picoline borate and high-performance liquid chromatographic analysis. *Analytical Chem*, 81: 485-9 (2009).
- 2) Endo O, Matsumoto M, Inaba Y, Sugita K, Nakajima D, Goto S, Ogata H, Suzuki G. Nicotin, tar and its mutagenicity of mainstream smoke generated by machine smoking with ISO and HCI regiments of major Japanese cigarette brands. , *J. Health Sci.* (2009) in press.
- 3) Matsumoto M, Inaba Y, Yamaguchi Y, Endo O, Hammond D, Uchiyama S, Suzuki G. The exposure assessment in Japanese smokers using smoking behavior and biomarkers. (in preparation)
2. 学会発表
(主任研究者: 遠藤 治)
- 1) Endo O, Koyano M, Watanabe I, Sugita K, Yamashita N, Nakajima D, Goto S. Perfluorooctane sulfonate (PFOS) and Perfluorooctanoic acid (PFOA) levels in

urban airborne particles · Long term trends in Tokyo in the 1980s, 1990s and 2000s. 26th International Symposium on Halogenated Persistent Organic Pollutants, 2006 August, Oslo.

- 2) Endo O, Kamoshita M, Kosaka K, Asami M, Aizawa T, Suzuki G. Mutagenicity of chlorination by-products of butamifos. 第35回日本環境変異原学会大会 2006年11月, 堺.
- 3) 松本真理子, 杉田和俊, 小谷野道子, 遠藤治, 後藤純雄, 鈴木元. ニコチン分析に用いるGC/MSカラムの比較検討. 平成18年度室内環境学会総会・研究発表会, 2006年11月, 東京.
- 4) 川上由紀子, 中島大介, 杉田和俊, 峯木茂, 白石不二雄, 鈴木規之, 高木敬彦, 遠藤治, 後藤純雄. 半揮発性PAH類抽出溶液の濃縮法について. 平成18年度室内環境学会総会・研究発表会, 2006年11月, 東京.
- 5) 遠藤治. たばこの煙の有害性と諸外国の動向. 2007年世界禁煙デー記念シンポジウム, 2007年5月, 東京
- 6) 影山志保, 中島大介, 高木敬彦, 遠藤治, 大森清美, 伏脇裕一, 白石不二雄, 鈴木規之, 後藤純雄. 大気中の粒子状及びガス状変異原の測定. 第16回環境化学討論会, 2007年6月, 北九州
- 7) Endo O, Matsumoto M, Sugita K, Nakajima D, Goto S, Ogata H, Suzuki G. Mutagenicity of Mainstream Smoke Condensate of Major Cigarettes in Japan with Smoking Machine: Abstracts of 1st Asian Conference on Environmental Mutagens / 36th Annual Meeting of the Japanese Environmental Mutagen Society, 2007 Nov., Kitakyushu
- 8) 松本真理子, 杉田和俊, 中島大介, 後藤純雄, 小谷野道子, 遠藤治, 鈴木元. 喫煙装置を用いて捕集されたたばこ煙中の水分分析. 室内環境学会, 2007年11月, 仙台
- 9) 杉田和俊, 小谷野道子, 松本真理子, 中島

大介, 後藤純雄, 緒方裕光, 遠藤治, 鈴木元. 喫煙装置を用いて捕集されたたばこ煙中多環芳香族炭化水素の分析. 室内環境学会, 2007年11月, 仙台

- 10) Endo O, Inaba Y, Matsumoto M, Sugita K, Goto S, Ogata H, Suzuki G. Mutagenicity of DMSO extract of mainstream smoke from major cigarettes in Japan with smoking machine: Abstracts of 37th Annual Meeting of the Japanese Environmental Mutagen Society, 2008 Dec., Okinawa
- 11) 松本真理子, 遠藤治, 山口一郎, 稲葉洋平, 緒方裕光, 鈴木元. 日本人喫煙者の喫煙行動パターン及びバイオマーカーを用いた曝露評価. 日本薬学会第129年会, 2009年3月, 京都
- 12) 稲葉洋平, 松本真理子, 遠藤治, 杉田和俊, 後藤純雄, 緒方裕光, 鈴木元. 酸化ストレスを指標とした喫煙による生体への影響. 日本薬学会第129年会, 2009年3月, 京都

(分担研究者: 鈴木 元)

- 1) Endo O, Kamoshita M, Kosaka K, Asami M, Aizawa T, Suzuki G. Mutagenicity of chlorination by-products of butamifos. 第35回日本環境変異原学会大会 2006年11月, 堺.
- 2) 松本真理子, 杉田和俊, 小谷野道子, 遠藤治, 後藤純雄, 鈴木元. ニコチン分析に用いるGC/MSカラムの比較検討. 平成18年度室内環境学会総会・研究発表会, 2006年11月, 東京.
- 3) Endo O, Matsumoto M, Sugita K, Nakajima D, Goto S, Ogata H, Suzuki G. Mutagenicity of Mainstream Smoke Condensate of Major Cigarettes in Japan with Smoking Machine: Abstracts of 1st Asian Conference on Environmental Mutagens / 36th Annual Meeting of the Japanese Environmental Mutagen Society, 2007 Nov., Kitakyushu

- 4) 松本真理子、杉田和俊、中島大介、後藤純雄、小谷野道子、遠藤治、鈴木元。喫煙装置を用いて捕集されたたばこ煙中の水分分析。室内環境学会、2007年11月、仙台
- 5) 杉田和俊、小谷野道子、松本真理子、中島大介、後藤純雄、緒方裕光、遠藤治、鈴木元。喫煙装置を用いて捕集されたたばこ煙中多環芳香族炭化水素の分析。室内環境学会、2007年11月、仙台
- 6) Endo O, Inaba Y, Matsumoto M, Sugita K, Goto S, Ogata H, Suzuki G. Mutagenicity of DMSO extract of mainstream smoke from major cigarettes in Japan with smoking machine: Abstracts of 37th Annual Meeting of the Japanese Environmental Mutagen Society, 2008 Dec., Okinawa
- 7) 松本真理子、遠藤治、山口一郎、稲葉洋平、緒方裕光、鈴木元。日本人喫煙者の喫煙行動パターン及びバイオマーカーを用いた曝露評価。日本薬学会第129年会、2009年3月、京都
- 8) 稲葉洋平、松本真理子、遠藤治、杉田和俊、後藤純雄、緒方裕光、鈴木元。酸化ストレスを指標とした喫煙による生体への影響。日本薬学会第129年会、2009年3月、京都
- (分担研究者：緒方裕光)
- 1) 緒方裕光、杉原崇、古川千春、馬替純二。低線量・低線量率ガンマ線の生物応答に関するメタ・アナリシス。日本放射線影響学会第49回大会; 2006.9;札幌。同講演要旨集。p.99.
- 2) 緒方裕光、馬替純二。疫学研究における線量率効果を考慮した定量的リスク評価モデル。日本保健物理学会第40回研究発表会; 2006.6;広島。同講演要旨集。p.79.
- 3) Endo O, Matsumoto M, Sugita K, Nakajima D, Goto S, Ogata H, Suzuki G. Mutagenicity of Mainstream Smoke Condensate of Major Cigarettes in Japan with Smoking Machine: Abstracts of 1st Asian Conference on Environmental Mutagens / 36th Annual Meeting of the Japanese Environmental Mutagen Society, 2007 Nov., Kitakyushu
- 4) 杉田和俊、小谷野道子、松本真理子、中島大介、後藤純雄、緒方裕光、遠藤治、鈴木元。喫煙装置を用いて捕集されたたばこ煙中多環芳香族炭化水素の分析。室内環境学会、2007年11月、仙台
- 5) 星佳芳、吉見逸郎、緒方裕光。保健所における「がん情報」と「たばこ情報」のインターネット配信状況。第67回日本公衆衛生学会総会; 2008.10;福岡。抄録集 p.229.
- 6) Endo O, Inaba Y, Matsumoto M, Sugita K, Goto S, Ogata H, Suzuki G. Mutagenicity of DMSO extract of mainstream smoke from major cigarettes in Japan with smoking machine: Abstracts of 37th Annual Meeting of the Japanese Environmental Mutagen Society, 2008 Dec., Okinawa
- 7) 松本真理子、遠藤治、山口一郎、稲葉洋平、緒方裕光、鈴木元。日本人喫煙者の喫煙行動パターン及びバイオマーカーを用いた曝露評価。日本薬学会第129年会、2009年3月、京都
- 8) 稲葉洋平、松本真理子、遠藤治、杉田和俊、後藤純雄、緒方裕光、鈴木元。酸化ストレスを指標とした喫煙による生体への影響。日本薬学会第129年会、2009年3月、京都
- (分担研究者：後藤純雄)
- 1) Endo O, Koyano M, Watanabe I, Sugita K, Yamashita N, Nakajima D, Goto S. Perfluorooctane sulfonate (PFOS) and Perfluorooctanoic acid (PFOA) levels in urban airborne particles · Long term trends in Tokyo in the 1980s, 1990s and 2000s. 26th International Symposium on Halogenated Persistent Organic Pollutants, 2006 August, Oslo.
- 2) 松本真理子、杉田和俊、小谷野道子、遠藤治、後藤純雄、鈴木元。ニコチン分析に用いる

GC/MS カラムの比較検討. 平成 18 年度室内環境学会総会・研究発表会, 2006 年 11 月, 東京.

- 3) 川上由紀子、中島大介、杉田和俊、峯木茂、白石不二雄、鈴木規之、高木敬彦、遠藤治、後藤純雄. 半揮発性 PAH 類抽出溶液の濃縮法について. 平成 18 年度室内環境学会総会・研究発表会, 2006 年 11 月, 東京.
- 4) 影山志保、中島大介、高木敬彦、遠藤治、大森清美、伏脇裕一、白石不二雄、鈴木規之、後藤純雄. 大気中の粒子状及びガス状変異原の測定. 第 16 回環境化学討論会, 2007 年 6 月, 北九州
- 5) Endo O, Matsumoto M, Sugita K, Nakajima D, Goto S, Ogata H, Suzuki G. Mutagenicity of Mainstream Smoke Condensate of Major Cigarettes in Japan with Smoking Machine: Abstracts of 1st Asian Conference on Environmental Mutagens / 36th Annual Meeting of the Japanese Environmental Mutagen Society, 2007 Nov., Kitakyushu
- 6) 松本真理子、杉田和俊、中島大介、後藤純雄、小谷野道子、遠藤治、鈴木元. 喫煙装置を用いて捕集されたたばこ煙中の水分分析. 室内環境学会, 2007 年 11 月, 仙台
- 7) 杉田和俊、小谷野道子、松本真理子、中島大介、後藤純雄、緒方裕光、遠藤治、鈴木元. 喫煙装置を用いて捕集されたたばこ煙中多環芳香族炭化水素の分析. 室内環境学会, 2007 年 11 月, 仙台

(分担研究者: 稲葉洋平)

- 1) Endo O, Inaba Y, Matsumoto M, Sugita K, Goto S, Ogata H, Suzuki G. Mutagenicity of DMSO extract of mainstream smoke from major cigarettes in Japan with smoking machine: Abstracts of 37th Annual Meeting of the Japanese Environmental Mutagen Society, 2008 Dec., Okinawa
- 2) 松本真理子、遠藤治、山口一郎、稲葉洋平、

緒方裕光、鈴木元. 日本人喫煙者の喫煙行動パターン及びバイオマーカーを用いた曝露評価. 日本薬学会第 129 年会, 2009 年 3 月, 京都

- 3) 稲葉洋平、松本真理子、遠藤治、杉田和俊、後藤純雄、緒方裕光、鈴木元. 酸化ストレスを指標とした喫煙による生体への影響. 日本薬学会第 129 年会, 2009 年 3 月, 京都

H. 知的財産権の出願・登録状況
なし

Ⅱ. 研究成果の刊行に関する一覧表

研究成果の刊行に関する一覧表

雑誌

発表者氏名	論文タイトル名	発表誌名	巻号	ページ	出版年
松本真理子、杉田和俊、小谷野道子、 <u>遠藤治</u> 、 <u>後藤純雄</u> 、 <u>鈴木元</u>	ニコチン分析に用いる GC/MS カラムの比較検討	室内環境学会誌	9	48-49	2006
Kuramotochi H, Nakajima D, <u>Goto S</u> , Kawamoto K, Maeda K	Water Solubility of Solid Solution of Phenanthrene and Anthracene Mixture	Polycyclic Aromatic Compounds	26	299-312	2006
藤田博子、米倉明、 <u>遠藤治</u> 、 <u>鈴木元</u>	海上自衛隊における分煙効果に関する研究—自衛隊関連施設でのニコチンおよび多環芳香族炭化水素の測定—	防衛衛生	54	123-132	2007
<u>遠藤治</u> 、 <u>鈴木元</u> 、 <u>緒方裕光</u> 、 <u>後藤純雄</u>	たばこの煙の有害性と諸外国の動向	日本禁煙医師連盟通信	16	1-4	2007
松本真理子、杉田和俊、中島大介、 <u>後藤純雄</u> 、小谷野道子、 <u>遠藤治</u> 、 <u>鈴木元</u>	喫煙装置を用いて捕集されたたばこ煙中の水分分析	室内環境学会誌	10	74-75	2007
杉田和俊、小谷野道子、松本真理子、中島大介、 <u>後藤純雄</u> 、 <u>緒方裕光</u> 、 <u>遠藤治</u> 、 <u>鈴木元</u>	喫煙装置を用いて捕集されたたばこ煙中多環芳香族炭化水素の分析	室内環境学会誌	10	86-87	2007
<u>遠藤治</u>	WHO TobReg 提言の解説～TobaccoControl の論文の概要と解説	日本禁煙医師連盟通信	17	4-6	2008
<u>Endo O</u> , <u>Matsumoto M</u> , <u>Inaba Y</u> , <u>Sugita K</u> , <u>Nakajima D</u> , <u>Goto S</u> , <u>Ogata H</u> , <u>Suzuki G</u>	Nicotine, tar and mutagenicity of mainstream smoke generated by machine smoking with ISO and HCI regimens of major Japanese cigarette brands	Journal of Health Science	55	in press	2009

Ⅲ. 研究成果の刊行物・別刷

ニコチン分析に用いる GC/MS カラムの比較検討
A comparison study on GC/MS column for nicotine analysis

○松本真理子¹⁾、杉田和俊²⁾、小谷野道子¹⁾、遠藤治¹⁾、
後藤純雄³⁾、鈴木元 (非)¹⁾

1)国立保健医療科学院、2)ダイヤ分析センター、3)国立環境研究所

はじめに

近年タバコの人体影響、特に受動喫煙の影響が注目され、禁煙運動が盛んになっている。タバコ煙の影響を調べる場合、喫煙により発生するニコチンなど、指標となる物質が測定されている。一般にニコチン分析を行う場合、試料捕集→抽出→GC/FID 分析という手順がとられているが、詳細な調査における高感度分析の必要性と質量分析装置の普及に伴い、GC/MS による分析が行なわれるようになってきた。そこで、GC/MS 分析を行う場合のカラムについて、最適条件を定めることを目的として極性の異なるカラムを用い、ピーク形状や検出感度などについて比較検討を行った。また、さらにニコチンと同様にタバコ煙の指標物質として注目されている 3-ビニルピリジンについても、その異性体であり、標準物質として入手しやすく、ISO18145 でも使用されている 4-ビニルピリジンについて、同様の比較検討を行った。さらに、実際のタバコ煙試料の分析も行った。

実験方法

ニコチン (和光純薬工業) と 4-ビニルピリジン (東京化成工業) をそれぞれ秤取し、イソプロピルアルコール (IPA、国産化学) に溶解した。この溶液を混合し、適宜 IPA で希釈した。希釈液 50 μ l に、内部標準としてイソキノリン (東京化成工業) を含む IPA 5 ml を添加し、検量線用溶液 (標準溶液) とした。

タバコ煙は、定容量型自動喫煙器 (中央産商) を用い、ISO に準拠して発生させた。主流煙の粒子状物質を Cambridge ガラス繊維フィルター (44 mm ϕ , Borgwaldt Technik GmbH) 上に捕集し、その

直後に 4%硫酸水素ナトリウム水溶液入りのインピンジャーを連結してガス状物質の捕集を試みた。副流煙は 2.0 l/min で連続吸引して同様に粒子状及びガス状物質を捕集した。粒子状物質は 20 ml の IPA で振とう抽出し、内部標準を含む IPA で希釈して分析した。ガス状試料は 10 N 水酸化ナトリウム水溶液でアルカリ性にした後、*n*-ヘプタンに転溶し、その一部を内部標準を含む IPA で希釈して分析した。

GC/MS カラムは、分析対象成分が極性であることから、微極性の DB-5MS と中極性の DB-17 を用いた (表 1)。使用した機器と条件を表 2 に示す。測定質量のうち、ニコチンは $m/z = 84$ 、4-ビニルピリジンは $m/z = 105$ 、イソキノリンは $m/z = 129$ のピークを用いて asymmetry factor (ASF) の検討や検量線の作成を行った。

表 1. GC/MS 分析で比較対象としたカラム

	DB-5MS	DB-17
製造元	J&W Scientific	J&W Scientific
形状	30 m \times 0.25 mm I.D. \times 0.1 μ m	30 m \times 0.25 mm I.D. \times 0.25 μ m
液相	5%フェニル、95%メチル	50%フェニル、50%メチル
極性	微極性	中極性

表 2. GC/MS の条件

GC	HEWLETT PACKARD HP 6890
MS	Agilent 5975 inert/N
キャリアガス	He 1.0 ml/min
昇温条件	50 $^{\circ}$ C (2分保持) \rightarrow (15 $^{\circ}$ C/分) \rightarrow 200 $^{\circ}$ C \rightarrow (5 $^{\circ}$ C/分) \rightarrow 280 $^{\circ}$ C (5分保持)
注入口温度	250 $^{\circ}$ C
イオン源温度	230 $^{\circ}$ C
トランスファーライン温度	280 $^{\circ}$ C
イオン化法	EI mode
イオン化電圧	70 eV
質量分析計モード	選択イオンモード (SIM mode)
測定質量 (m/z)	ニコチン: 84, 161 4-ビニルピリジン: 78, 105 イソキノリン: 129
注入量	1 μ l

結果と考察

1) ピーク形状

USEPA 法 T01 に従い、ASF を用いてニコチン、4-ビニルピリジン、イソキノリンのピーク形状の違いについて検討した結果を表 3 に示した。ASF は、ピークの頂点から基線に垂線を下ろしたとき、下から 10% 高さの位置におけるピーク幅を、垂線によって分割された後半の線分の長さを前半のそれと除した比であり、1 に近いほど対称性の良いピーク形状であることを示し、0.8~2.0 が推奨されている。表 3 よりニコチン、4-ビニルピリジン、イソキノリンの 3 成分ともに、DB-17 カラムの方が DB-5MS と比較して良好な結果を示した。

表 3. GC/MS 用カラム DB-5MS と DB-17 における各成分の asymmetry factor

No.	ニコチン		4-ビニルピリジン		イソキノリン	
	DB-5MS	DB-17	DB-5MS	DB-17	DB-5MS	DB-17
1	2.0	0.91	3.1	1.8	1.6	1.0
2	1.3	1.2	3.4	1.5	2.0	1.4
3	1.3	1.4	2.3	1.6	1.9	1.3
4	1.7	1.3	1.9	1.5	1.9	1.5
5	2.0	1.3	3.3	1.7	1.5	1.4
6	1.8	1.4	1.6	2.0	2.7	1.6
7	2.0	1.3	3.4	1.4	2.5	1.3
8	2.0	1.3	2.5	1.5	2.7	1.5
9	2.0	1.3	2.1	1.3	2.6	1.8
10	1.9	1.2	2.7	1.3	2.0	1.5
平均(-)	1.8	1.3	2.6	1.6	2.1	1.4
標準偏差(-)	0.3	0.1	0.6	0.2	0.4	0.2
変動係数(%)	16	11	24	14	21	15

※ニコチン及びイソキノリンは標準溶液 2.6 µg/ml の、4-ビニルピリジンは標準溶液 4.7 µg/ml のピークを用いて検討した。

2) 検出感度：定量

検量線作成時の最低濃度（ニコチン 0.59 µg/ml、4-ビニルピリジン 0.29 µg/ml）を用いて定量下限値を求めた。定量下限値は、10 回の測定を行い得られた標準偏差の 10 倍値とした。ニコチンの定量下限値は、DB-5MS では 0.58 µg/ml、DB-17 では 0.29 µg/ml となった。また、4-ビニルピリジンの定量下限値は、DB-5MS では 0.30 µg/ml、DB-17 では 0.59 µg/ml となった。よって、どちらのカラムにおいてもニコチン及び 4-ビニルピリジンについて 1 µg/ml 以下と良好な定量下限値が得られたことから、ニコチンと 4-ビニルピリジンの同時分析には、どちらのカラムを用いても高感度に測定できると考えられた。

3) 検量線

ニコチンは 0.59~9.4 µg/ml、4-ビニルピリジンは 0.29~4.7 µg/ml の濃度範囲でそれぞれ 5 段階の濃度の溶液を調製し、10 回測定を行った。図 1 にニコチンの、図 2 に 4-ビニルピリジンの各検量線を図示した。各検量線の相関係数 r は、ニコチン、4-ビニルピリジン両成分ともにいずれのカラムにおいても 0.999 以上の高い値を示し、良好な相関関係がみられた。

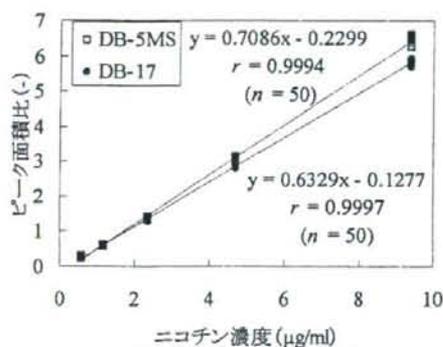


図 1. ニコチンの検量線

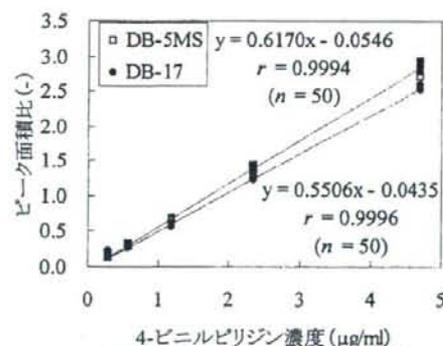


図 2. 4-ビニルピリジンの検量線

4) タバコ煙試料の分析

タバコの主流煙と副流煙の粒子状物質及びガス状物質を分析した結果、ニコチンはほぼ全ての試料から、4-ビニルピリジンは副流煙の気相中からのみ検出された。現在、結果の詳細について比較検討を行っている。

原 著

海上自衛隊における分煙効果に関する研究

——自衛隊関連施設でのニコチンおよび多環芳香族炭化水素の測定——

1海尉(薬) 藤田 博子 2海佐(薬) 米倉 明*
室長(獣) 遠藤 治** 部長(医) 鈴木 元**

ORIGINAL ARTICLE

Research on the efficacy of dividing the workplace
into smoking and non smoking areas
in the Maritime Self-Defense Force of Japan
——Measurement of nicotine and PAHs
in Self-Defense Force-related institutions——

Hiroko FUJITA,

Lieutenant, Pha, MSDF

Akira YONEKURA,

Commander, Pha, MSDF*

Osamu ENDO,

Chief, Environmental Chemistry Section, DVM, Ph. D NIPH**

Gen SUZUKI,

Director, Department of Environmental Health, MD, Ph. D, NIPH**

SUMMARY

Objective: To obtain a basic data for evaluating the efficacy of dividing the workplace into smoking and non-smoking areas in the Self-Defense Force.

Materials and Methods: Airborne particles were collected on quartz fiber filters by using personal mini pumps for 24 hours and the collection of airborne particles repeated 4 or 5 times, at smoking area and several non-smoking areas in 2 Self-Defense Force hospitals, a ship and a submarine. The concentrations of nicotine and 8 Polycyclic Aromatic Hydrocarbons (PAHs) including typical carcinogen Benzo[a]pyrene were determined with GC/MS and with HPLC/spectrofluorometric analysis, respectively.

Results: Significantly higher concentrations of nicotine and PAHs were observed at smoking

自衛隊横須賀病院 Japan Self-Defense Force Hospital Yokosuka

〒237-0071 神奈川県横須賀市田浦港町1766-1

Tel 046-823-0270 (内2836), Fax 046-861-8575

*海上幕僚監部 衛生企画室 Office of Surgeon General and Director of Medicine, Maritime Staff Office, MSDF

**国立保健医療科学院 National Institute of Public Health

area than those at non-smoking areas in every facilities. There was also a significant difference between the concentration of nicotine in smoking area and in the entrance of smoking area.

Conclusion: Nicotine is a practical index of air pollution by smoking. From present results, it was demonstrated that the dividing workplace into smoking and non-smoking areas in the ship and in the submarine was more effective than those in the 2 hospitals.

要約

目的：海上自衛隊における分煙効果を評価するための基礎資料としてタバコ煙による空気汚染の程度を把握すること

実験方法：空気捕集は、分煙を実施している自衛隊病院2施設、護衛艦、及び潜水艦に設置されている喫煙所並びに複数個所の非喫煙区域において、4～5回繰り返し行った。試料中のニコチン、及び代表的な発がん物質であるベンゾ[a]ピレンを含む8種類の多環芳香族炭化水素類 (PAHs) を、それぞれ GC/MS、及び HPLC/分光蛍光検出法を用いて濃度測定を行った。

結果：いずれの自衛隊関連施設においても、喫煙区画におけるニコチン及び PAH の濃度の方が、非喫煙区画における濃度よりも、有意に高い結果が得られた。また喫煙所内及び喫煙所入口のニコチン濃度にも有意差が認められた。

結論：ニコチンは喫煙による空気汚染の現実的な指標として有用であることが明らかとなった。また今回の調査結果から、自衛隊病院2施設と比較して、護衛艦・潜水艦の分煙対策の方が効果的に行われていることが測定された。

索引用語：分煙/タバコ/ニコチン/多環芳香族炭化水素類

Key words: segregation/tobacco/nicotine/Polycyclic Aromatic Hydrocarbons (PAHs)

1 はじめに

喫煙による健康影響に関する社会的関心が集まる中で、自らの意思とは関係なく、環境タバコ煙 (Environment Tobacco Smoke, 以下 ETS と略) を吸入する受動喫煙による非喫煙者の健康影響が報告されている¹⁾。この観点から、平成12年に「21世紀における国民健康づくり運動」(健康日本21)で公共の場及び職場における分煙の徹底が目標として掲げられ、平成15年に施行された健康増進法の中で、多数の人が利用する施設の管理者は受動喫煙防止対策を講じることが努力義務化された。さらに、医療施設においては日本医療機能評価機構による認定制度が開始されたため、急速に館内禁煙や敷地内禁煙が進んでいる。

一方、海上自衛隊においては、男性の喫煙率が63.1%²⁾と日本男性の平均47.4%³⁾を大きく上回っている。そのため、海上自衛隊では多くの施設や艦艇において分煙対策を実施しているが、現在実施されている分煙対策の実効性に関しては必ずしも正確な評価がなされていないのが現状である。

ニコチンは100%が喫煙由来であるため、喫煙の指標として様々な研究報告が行われている^{4)~8)}ものの、空気中でガス状と粒子状で存在し、ガス状のニコチンは、発生直後から壁面への吸着などによる減衰が大き

いという物性の問題や、分析操作が煩雑で迅速性に欠けるといった技術的な問題なども指摘されてきた⁹⁾。しかし、ニコチンは発生直後であれば、非常に良い判定指標の物質になること、さらにタバコタール中の代表的な発がん関連物質である多環芳香族炭化水素 (以下 PAH と略) をあわせて測定すれば、空気中のタバコの煙による空気汚染を正確に評価できると考えた。そこで、タバコから発生するニコチンと PAH を測定し空気汚染の実態調査を行うことによって、海上自衛隊でより効果的な分煙対策を実施するための基礎資料を得ることを目的とした。

2 実験

(1) 試薬類

標準試料：ニコチン (試薬特級、東京化成製) 5 mg をメタノール (残留農薬・PCB 試験用、和光純薬工業製) 5 ml で希釈し、1 mg/ml の原液を調整した。PAH の8種については、Pyrene, Benz[a]anthracene 及び Benzo[a]pyrene は和光純薬工業製、Benzo[k]fluoranthene, Benzo[b]chrysene は Koch-light Laboratory 製、Dibenz[a,h]anthracene は L. Light Laboratory 製、Benzo[ghi]perylene は Aldrich 製、Dibenzo[a,e]pyrene は Chemicals Procurement

Laboratory製を用いた。これら約5mgを精秤し、ジメチルスルホキシド10ml(蛍光分析用, 和光純薬工業製)に溶解し, 標準原液とした。これらを順次アセトニトリル(残留農薬試験用, 国産化学製)で希釈して, 1ng/ml程度の濃度の標準溶液を調整した。

内部標準試料: イソキノリン(試薬特級, 東京化成製)5mgをエタノール(残留農薬・PCB試験用, 和光純薬工業製)5mlで希釈し, 1mg/mlの原液を調整した。その後, 5%エタノール水溶液で1,000倍に希釈し, 1 μ g/mlの抽出溶媒を調整した。

抽出溶媒: 水酸化ナトリウム(試薬1級, 和光純薬工業製)40gを精製水100mlに溶解した(10N水酸化ナトリウム水溶液)。その他, n-ヘプタン(環境分析用, 和光純薬工業製), アセトニトリル(残留農薬・PCB試験用, 和光純薬工業製)を使用した。

HPLC用溶媒: アセトニトリル(高速液体クロマトグラフィー用, 国産化学製)を使用した。

捕集用フィルター: 硫酸水素ナトリウム(試薬特級, 国産化学製)の4%水溶液を直径25mmの石英繊維フィルター(pallflex 2500QAT-UP)に含浸させ, ガス状のニコチン捕集用フィルターを作成した。

(2) 器具及び装置

捕集用器具: パーソナルミニポンプ(柴田科学株式会社300)を使用した。

抽出用装置: ボルテックスミキサー(Science Industry社製), 超音波発生装置(日本精機製作所製)及び遠心分離機(日立製作所製)を使用した。

(3) 空気試料の捕集

空気試料捕集対象施設は, 分煙を実施している自衛隊病院2施設, 護衛艦及び潜水艦とした。空気捕集は以下の喫煙区画及び非喫煙区画数箇所の床面より約1.5mの高さで実施した。

- ① 喫煙区画 = 各施設の喫煙所内部
- ② 境界 = 喫煙場所出入口の非喫煙所側
- ③ 非喫煙区画 = ETSの影響が少ないと考えられる屋内

更に, 自衛隊病院においては外気由来の汚染物質について比較検討することを念頭に

- ④ 大気 = ETSの影響が少ないと考えられる屋外においても同時捕集を行った。

上記の測定地点において, パーソナルミニポンプを2台用い, 同時に2試料の空気捕集を行った。捕集ヘッ

ドのテフロン製フィルターホルダーには直径25mmの石英繊維フィルター(pallflex 2500QAT-UP)3枚を装着した。すなわち, 吸気側1段目は粒子状物質捕集用フィルター, 第2段目, 3段目の2枚はガス状ニコチン捕集用に硫酸水素ナトリウムを含浸させたフィルターを用いた。捕集装置の概要ならびに捕集風景を図1に示す。空気吸引速度は1.0L/minとし, 空気試料を24時間, 4~5回捕集した。捕集試料はできるだけ冷暗所にて保管し, 抽出操作に供するまで, できるだけ低温(3℃; 捕集直後 \rightarrow -80℃)に保管した。粒子状物質を捕集した吸気側1段目のフィルターは半分に切断し, 一方をニコチン分析に, もう一方をPAH分析に供した。

(4) ニコチン分析

Hammond(1987年)らの方法⁴⁾に従い, まず添加回収実験を行った。供試フィルターにイソキノリン1 μ g/ml(5%エタノール水溶液)を2mlを加え, 30秒間ボルテックスミキサーにて振盪した。その後, 10N水酸化ナトリウム水溶液, n-ヘプタン0.5mlを加え30秒間ボルテックスミキサーで振盪抽出した。さらに抽出液の上澄み液を少量の硫酸ナトリウムで脱水した後分析を行った。ニコチン分析の概要と条件を図2(左)に示す。分析対象としたニコチンの検出下限値(SD<3かつS/N比>3となるGC/MS濃度)は1.75ng/ml, 定量下限値(SD<10かつS/N比>10となるGC/MS濃度)は5.85ng/mlであった。ニコチンの添加回収率は, 吸気側1段目のフィルターに相当する粒子状物質を付加した硫酸水素ナトリウムを含浸していないフィルターで回収率91%, 変動係数3.4%, 吸気側2, 3段目のフィルターに相当する粒子状物質

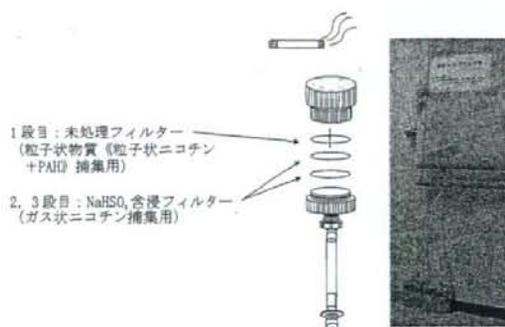


図1 捕集装置の概要ならびに捕集風景



図2 分析の概要と条件

を付加していない硫酸水素ナトリウムを含浸したフィルターで回収率88%、変動係数4.0%であった。

良好な添加回収率が得られたため、続いて予備実験として、実際の喫煙所にて空気捕集をして分析を行った。本捕集方法により第2段目までのフィルターではほぼ全量が捕集されることが判ったので、第1段目の定量値が第2段目のそれを下回る場合にのみ第3段目のフィルターを分析することとした。

(5) PAH分析

PAH分析の概要と条件を図2(右)に示す。

田辺らの方法¹⁰⁾に従い粒子状物質が付着している第1段目のフィルターの半分にアセトニトリルを2ml加え、超音波発生装置内で15分間抽出した。その抽出液を3,000rpmで15分遠心分離をかけ、その上澄み液をHPLC/分光蛍光検出法を用いてPAHを分析した。分析対象とした8種類の各PAHをその略称、定量下限値(SD<10かつS/N比>10となる測定物質の濃度)と共に表1に示す。

統計解析: 平均値の差の検定は、測定値に対数正規性が認められたので、測定値を対数変換した後t検定(両側検定 有意水準p=0.05)により行った。基本統計量の算出に際し、測定値が検出下限未満となったものは0.0001、定量下限値未満のものは定量下限値の1/2を代入した。

表1 分析対象PAHの名称・略称及び定量下限値

PAH	略号	定量下限値 (ng)
Pyrene	Py	0.050
Benz[a]anthracene	BaA	0.042
Benzo[k]fluorathene	BkF	0.009
Benzo[a]pyrene	BaP	0.024
Dibenz[a,h]anthracene	dBahA	0.012
Benzo[b]chrysene	BbC	0.017
Benzo[ghi]perylene	BghiP	0.066
Dibenzo[a,e]pyrene	dBaeP	0.165

各物質の定量下限値は標準的空気捕集条件では、Pyの定量下限値は

$$= 0.050(\text{ng}) \times \frac{2 \text{ ml}(\text{抽出量})}{0.9 \text{ ml}(\text{分析量})} \div \frac{1.44 \text{ m}^3(1 \text{ L/minでの24時間の積算流量})}{2(\text{フィルターの半分をPAH分析に供するため})}$$

$$= 0.15 \text{ ng/m}^3$$

同様にしてBaAは0.13 ng/m³、BkFは0.027 ng/m³、BaPは0.073 ng/m³、dBahAは0.037 ng/m³、BbCは0.052 ng/m³、BghiPは0.20 ng/m³、dBaePは0.51 ng/m³となる。

3 結果

(1) 自衛隊病院

自衛隊病院A、Bの2施設における各測定地点の見取り図を図3、4に図示する。自衛隊病院Aにおいては喫煙区画への出入り口が2箇所あるため、両方の

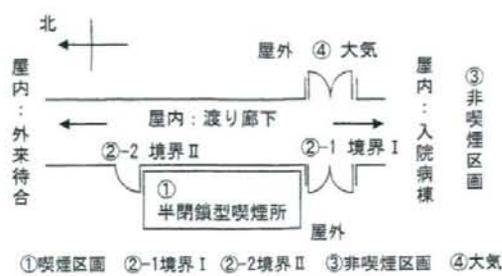


図3 自衛隊病院Aの見取り図



図4 自衛隊病院Bの見取り図

表2 自衛隊病院Aにおける測定結果の概要

	Nicotine [$\mu\text{g}/\text{m}^3$]	Py [ng/m^3]	BaA [ng/m^3]	BkF [ng/m^3]	BaP [ng/m^3]	dBaHA [ng/m^3]	BbC [ng/m^3]	BghiP [ng/m^3]	dBaEP [ng/m^3]
①喫煙区画	n = 4	n = 4	n = 4	n = 4	n = 4	n = 4	n = 4	n = 4	n = 4
平均	12.01	0.79	0.58	0.18	0.39	0.074	0.061	0.63	(0.51)
標準偏差	6.92	0.54	0.37	0.10	0.31	0.06	0.041	0.45	
変動係数	0.58	0.69	0.64	0.58	0.80	0.85	0.68	0.72	
最大値	21.89	1.61	1.06	0.29	0.85	0.16	0.13	1.23	
最小値	4.04	0.13	0.13	0.031	0.068	<0.037	<0.026	0.16	
②-1境界Ⅰ	n = 5	n = 5	n = 5	n = 5	n = 5	n = 5	n = 5	n = 5	n = 5
平均	1.98	0.19	0.12	0.074	0.16	0.03	(0.052)	0.33	(0.51)
標準偏差	0.73	0.09	0.05	0.04	0.10	0.01		0.18	
変動係数	0.37	0.44	0.44	0.54	0.62	0.35		0.53	
最大値	3.04	0.29	0.18	0.11	0.27	0.04		0.48	
最小値	1.17	<0.15	<0.13	0.023	<0.073	<0.037		<0.20	
②-2境界Ⅱ	n = 5	n = 5	n = 5	n = 5	n = 5	n = 5	n = 5	n = 5	n = 5
平均	0.27	0.17	0.11	0.069	0.15	0.030	(0.052)	0.32	(0.51)
標準偏差	0.03	0.06	0.04	0.04	0.10	0.01		0.18	
変動係数	0.12	0.39	0.42	0.55	0.62	0.38		0.57	
最大値	0.36	0.24	0.17	0.11	0.24	0.044		0.55	
最小値	0.16	<0.15	<0.13	0.022	<0.073	<0.037		<0.20	
③非喫煙区画	n = 5	n = 5	n = 5	n = 5	n = 5	n = 5	n = 5	n = 5	n = 5
平均	0.044	0.17	0.10	0.069	0.11	0.028	(0.052)	0.30	(0.51)
標準偏差	0.023	0.13	0.07	0.06	0.10	0.02		0.21	
変動係数	0.53	0.77	0.66	0.86	0.93	0.60		0.67	
最大値	0.073	0.27	0.16	0.12	0.22	0.042		0.48	
最小値	0.014	<0.15	<0.13	<0.027	<0.073	<0.037		<0.20	
④大気	n = 5	n = 5	n = 5	n = 5	n = 5	n = 5	n = 5	n = 5	n = 5
平均	0.035	0.16	0.090	0.071	0.13	0.028	(0.052)	0.33	(0.51)
標準偏差	0.017	0.09	0.04	0.05	0.10	0.01		0.20	
変動係数	0.47	0.59	0.41	0.65	0.71	0.44		0.61	
最大値	0.060	0.28	0.14	0.12	0.28	0.042		0.59	
最小値	0.018	<0.15	<0.13	<0.027	<0.073	<0.037		<0.20	

出入り口で測定を行い、それぞれ境界Ⅰ、境界Ⅱとした。

表2に自衛隊病院Aにおけるニコチン及びPAH濃度測定結果の概要(平均、標準偏差、変動係数、最大値、最小値)を示す。BbC(喫煙区画以外)及びdBaPは、測定値がすべて定量下限値未満となったため、平均値の欄に括弧付きで1.0 L/minで24時間空気捕集をした場合の定量下限値を表示し、それ以外は空欄とした。また、大気のPy, BaA, BkF, BaP, dBahA及びBghiPの6物質のように、最小値が検出はされたものの定量下限値未満であった場合には、当該物質の定量下限値の前に“<”を付した(以下、他の3つの施設に関しても、同様にニコチン及びPAH濃度測定結果の概要を示した)。表2から、定量下限値未満の試料が多い一部PAHでは変動係数が大きくなっているものもあるが、ニコチンや代表的な発がん物質であるBaPでは比較的定量性の良好な結果が得られ、測定地点間の濃度比較に使用できることが判った。

図5に自衛隊病院Aの各地点におけるニコチン濃度(左)及びBaP濃度(右)の平均及び標準偏差を対数表示にて図示した。併せて各測定値間の主な有意差検定結果($p < 0.05$)も示してある。図5から、一階屋外にある半閉鎖型空間の喫煙区画のニコチン濃度は、平均で $12.0 \mu\text{g}/\text{m}^3$ あり、他のいずれの地点の平均

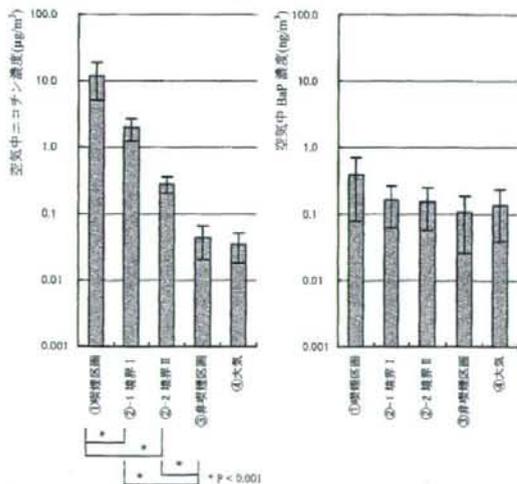


図5 自衛隊病院Aの各地点におけるニコチン濃度(左)及びBaP濃度(右)

値より高いことが認められた。境界Ⅰは $1.98 \mu\text{g}/\text{m}^3$ (喫煙区画の1/6の濃度)、境界Ⅱは $0.27 \mu\text{g}/\text{m}^3$ (同様に1/40の濃度)であり、各々喫煙区画との間に有意差が認められた($p < 0.001$)。また、境界Ⅰ及び境界Ⅱと非喫煙区画の間でも有意差が認められた($p < 0.001$)。一方BaP濃度は、喫煙所内部と大気及び非喫煙区画との間に有意差が認められなかった。

自衛隊病院Bの測定地点別のニコチン及びPAH濃度測定結果の概要を表3に示す。表3から、2階屋外の喫煙区画のニコチン濃度は、平均で $1.30 \mu\text{g}/\text{m}^3$ あり、他のいずれの地点の平均値より有意に高かった($p < 0.001$)。また、自衛隊病院Aでは回収吸殻の平均が588本でニコチン濃度が $12.0 \mu\text{g}/\text{m}^3$ だったのに対し、自衛隊病院Bでは吸殻の平均が243本(自衛隊病院Aの1/2の本数)で、ニコチン濃度は $1.30 \mu\text{g}/\text{m}^3$ (自衛隊病院Aの1/10の濃度)となった。一方、BaPも含めてPAHは測定地点間の差異が自衛隊病院Aほど明瞭ではなかった。

(2) 護衛艦

今回調査を実施した護衛艦においては、前部洗面所と後部の洗面所2箇所が喫煙所に設定されている。このうち後部洗面所を喫煙区画、そこから前部へつながる防水扉の外側を境界、同じ甲板上の居住区を非喫煙区画として空気測定を行った。表4に護衛艦におけるニコチン及びPAH濃度測定結果の概要を示す。ニコチンは定量性の良好な結果が得られ、測定地点間の濃度比較に使用できることが判った。しかし、境界及び非喫煙区画において、BaA, BaP, dBahA, BbC, BghiP及びdBaPは、測定値のほとんどが定量下限値未満となり、変動係数が大きくなっているものもあった。BaPに関しては、境界と非喫煙区画の定量性が低かったため、ここではBkFを用いて測定地点間の濃度比較を行うこととした。

護衛艦におけるニコチンの濃度は、後部洗面所に設けられた閉鎖型空間の喫煙区画の平均で $25.0 \mu\text{g}/\text{m}^3$ であり、他のいずれの地点よりも有意に高かった($p < 0.001$)。また、境界は $0.39 \mu\text{g}/\text{m}^3$ (喫煙区画の1/60の濃度)であった。また、境界と非喫煙区画の間にもかなり明確な有意差が認められ($p < 0.001$)、非喫煙区画は $0.025 \mu\text{g}/\text{m}^3$ (喫煙区画の1/1000の濃度)であった。また、BkF濃度に関しても、喫煙区画と境界、及び喫煙区画と非喫煙区画の間に有意な差が認められ

表3 自衛隊病院Bにおける測定結果の概要

	Nicotine [$\mu\text{g}/\text{m}^3$]	Py [ng/m^3]	BaA [ng/m^3]	BkF [ng/m^3]	BaP [ng/m^3]	dBahA [ng/m^3]	BbC [ng/m^3]	BghiP [ng/m^3]	dBaEP [ng/m^3]
①喫煙区画	n = 5	n = 5	n = 5	n = 5	n = 5	n = 5	n = 5	n = 5	n = 5
平均	1.30	0.44	0.33	0.24	0.29	0.08	0.04	0.46	(0.51)
標準偏差	0.47	0.29	0.22	0.18	0.27	0.08	0.03	0.47	
変動係数	0.36	0.67	0.67	0.75	0.94	1.02	0.71	1.02	
最大値	1.63	0.92	0.71	0.55	0.75	0.22	0.12	1.30	
最小値	0.49	0.20	0.18	0.12	0.08	<0.037	0.03	0.16	
②境界	n = 5	n = 5	n = 5	n = 5	n = 5	n = 5	n = 5	n = 5	n = 5
平均	0.32	0.38	0.22	0.19	0.12	0.07	(0.052)	0.44	(0.51)
標準偏差	0.13	0.34	0.21	0.18	0.073	0.087		0.37	
変動係数	0.40	0.88	0.98	0.93	0.60	1.25		0.84	
最大値	0.52	0.97	0.59	0.51	0.20	0.22		1.10	
最小値	0.17	0.18	<0.13	0.10	<0.073	<0.037		0.17	
③非喫煙区画	n = 5	n = 5	n = 5	n = 5	n = 5	n = 5	n = 5	n = 5	n = 5
平均	0.019	0.29	0.21	0.19	0.25	0.067	(0.052)	0.47	(0.51)
標準偏差	0.008	0.13	0.12	0.13	0.16	0.07		0.44	
変動係数	0.44	0.45	0.55	0.69	0.62	1.05		0.93	
最大値	0.034	0.51	0.42	0.43	0.53	0.19		1.25	
最小値	0.012	0.19	0.14	0.12	0.14	0.028		0.15	
④大気	n = 5	n = 5	n = 5	n = 5	n = 5	n = 5	n = 5	n = 5	n = 5
平均	0.011	0.29	0.23	0.21	0.19	0.063	(0.052)	0.35	(0.51)
最小値	0.006	0.20	0.11	0.13	0.07	<0.037		0.17	
標準偏差	0.004	0.10	0.10	0.10	0.09	0.05		0.28	
変動係数	0.37	0.33	0.42	0.51	0.49	0.83		0.80	
最大値	0.016	0.40	0.38	0.39	0.30	0.15		0.85	

た ($p < 0.05$)。境界と非喫煙区画において有意差はないが、非喫煙区画は $0.04 \text{ ng}/\text{m}^3$ で境界の $0.06 \text{ ng}/\text{m}^3$ よりも低かった。

(3) 潜水艦

今回調査を実施した潜水艦においては、後部の密閉区画が喫煙所に設定されている。この区画の内部を喫煙区画、そこから前部へつながる防水扉の外側を境界、同じ甲板上のETSの影響の少ないと考えられる区画を非喫煙区画として空気測定を行った。表5に潜水艦におけるニコチン及びPAH濃度測定結果の概要を示す。表5から、護衛艦同様、ニコチンについては定量性の良好な結果が得られ、測定地点間の濃度比較に使用できることが判った。一方、境界と非喫煙区画におけるBaP, dBahA, BbC, BghiP及びdBaePは、測定値のほとんどが定量下限値未満となったため、護衛艦同様BkFを用いて測定地点間の濃度比較を行うこと

とした。

潜水艦におけるニコチン濃度は、閉鎖型空間となっている喫煙区画の平均は $9.51 \mu\text{g}/\text{m}^3$ であり、他の艦内いずれの地点よりも有意に高かった ($p < 0.001$)。また、境界では $0.08 \mu\text{g}/\text{m}^3$ (喫煙区画の1/120の濃度) であった。一方、非喫煙区画は $0.07 \mu\text{g}/\text{m}^3$ で、境界との間には有意差が認められなかった。

また、BkF濃度に関しても、喫煙区画の濃度が高く、他のいずれの地点よりも有意に高かった ($p < 0.05$)。さらに、潜水艦の喫煙区画のBkFやBaPの濃度は、他の3施設の喫煙区画と比較してほぼ同程度であったが、PyとBaAの濃度は数倍程度大きい値であった。

4 考察

今回の測定から、いずれの4つの施設においても喫煙区画の喫煙による空気汚染が示唆された。