

propylene glycolを定量下限値付近で検出するのみであった。以上から、国産たばこ銘柄のグリセロール類測定はたばこ葉量1 g及び抽出溶液量25 mLの手法を採用することとした。なお、上記条件検討及び比較試験においてtriethylene glycolはいずれの試験においても定量下限値以下であった。

国産たばこ8銘柄の葉中グリセロール類の含有量

表5は国産たばこ8銘柄の葉中グリセロール類の測定結果（たばこ葉g当たりの濃度）を示す。測定対象グリセロール類3種中propylene glycolとglycerolの2種が定量でき、triethylene glycolはいずれの銘柄でも定量下限値以下であった。Propylene glycolの濃度範囲は2.50－3.00 mg/g, CTFであり、銘柄間での顕著な差は認められなかった。Glycerolの濃度範囲は13.44－18.81 mg/g, CTFとなり、Seven Stars, echo及びわかばが他銘柄よりも若干高い値を示した。また、本報告書掲載の「WHO TobLabNetラウンドロビン研究－たばこ葉中グリセロール類の分析－」の標準たばこ銘柄3R4F（propylene glycolが0.17 mg/g, CTF, glycerolが20.36 mg/g, CTF）の測定結果と比較すると、国産たばこ銘柄はpropylene glycolが14.7－17.6倍と高値であったが、glycerolが0.66－0.92倍と低値を示した。さらに、国産たばこ8銘柄の葉中グリセロール類の測定結果（たばこ1本当たりの濃度）を表6に示す。Propylene glycolの濃度範囲は1.46－2.03 mg/cigであり、表5の結果と同様に銘柄間での差は認められなかった。Glycerolの濃度範囲は7.61－12.70 mg/cigとなり、たばこ葉重量が他銘柄より1割程度多いSeven Starsとわかばが高い値を示した。

D 結論

今回国産たばこ銘柄の葉中グリセロール類の測定を行った。その結果、今回測定した国産たばこ銘柄では、propylene glycolとglycerolが定量可能

であったが、triethylene glycolはすべての銘柄で定量下限値以下であった。また、propylene glycolはたばこ銘柄間で大きな差はなく、glycerolは一部銘柄が若干の高値を示した。

E 引用文献

- [1] Carmines EL, Gaworski CL. Toxicological evaluation of glycerin as a cigarette ingredient. *Food Chem Toxicol*, 43, 1521 - 1539, 2005.
- [2] Gaworski CL, Oldhan MJ, Coggins CRE. Toxicological consideration on the use of propylene glycol as a humectant in cigarettes. *Toxicology*, 269, 54 - 66, 2010.
- [3] 稲葉洋平, 内山茂久, 緒方裕光, 櫻田尚樹. WHO TobLabNetラウンドロビン研究－たばこ葉中グリセロール類の分析－, 厚生労働科学研究費補助金 第3次対がん総合戦略研究事業 たばこ規制枠組条約に基づいた有害化学物質の規制によるたばこ対策研究（H24－3次がん－若手－007）平成25年度 総括・分担研究報告書, 2014.
- [4] ISO 3402. Tobacco and tobacco products - Atmosphere for conditioning and testing, International Organization for Standardization, 1999.

F 研究発表

総括研究報告書に一括記載した。

G 知的財産権の出願・登録状況

なし

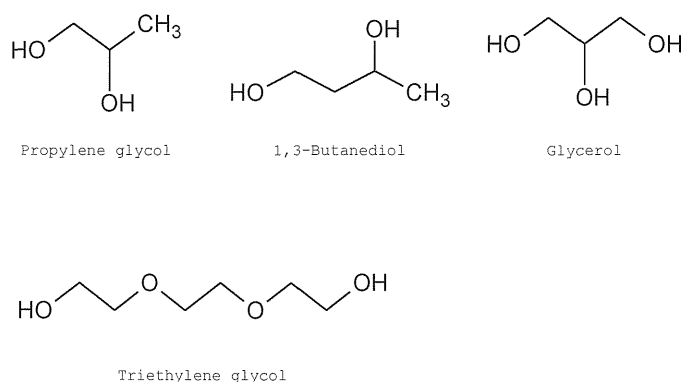


図1 測定対象グリセロール類3種及び内部標準物質の構造

表1 国産たばこ8銘柄

Cigarette brand	Abbr	Tar	Nicotine
		(mg/cig)	(mg/cig)
MEVIUS ONE 100's	MEVIUS 1	1	0.1
MEVIUS EXTRA LIGHTS	MEVIUS 3	3	0.3
MEVIUS SUPER LIGHTS	MEVIUS 6	6	0.5
MEVIUS LIGHTS	MEVIUS 8	8	0.7
MEVIUS ORIGINAL	MEVIUS 10	10	0.8
SEVEN STARS	SS 14	14	1.2
ECHO	ECHO 15	15	1.0
WAKABA	WKB 19	19	1.4

表2 GC/MS装置でのグリセロール類測定条件

質量電荷比 (m/z) :	Propylene glycol, 45, 43 1,3-Butanediol, 43, 72 Glycerol, 43, 61 Triethylene glycol, 45, 89
GC装置 :	Hewlett-Packard製 HP6890シリーズ
分離カラム :	Agilent Technologies製 HP-INNOWAX (30 m × 0.25 mm)
移動相 :	ヘリウム (99.99995%以上)
流速 :	1 mL/min
カラム温度 :	70 °C
注入量 :	1 µL (スプリット比 1/100)
タイムプログラム :	70 °C (2 min保持) 70 – 185 °C (15 °C/min) 185 °C (11 min保持) 185 – 230 °C (20 °C/min) 230 °C (5 min保持) 230 – 250 °C (20 °C/min) 250 °C (10 min保持)

表3 たばこ葉量及び抽出溶液量によるグリセロール類濃度 (n=5)

Sample	Cigarette tobacco filler (mg)	Extraction solution volume (mL)	Concentration (mg/g, CTF)			
				Propylene glycol	Glycerol	Triethylene glycol
A	4	50	AVG	2.78	15.53	< LOQ
			SD	0.08	0.22	
			CV	3.00	1.42	
B	2	50	AVG	2.66	15.95	< LOQ
			SD	0.06	0.23	
			CV	2.15	1.41	
C	1	50	AVG	2.56	< LOQ	< LOQ
			SD	0.06		
			CV	2.18		
D	2	25	AVG	2.85	15.47	< LOQ
			SD	0.05	0.55	
			CV	1.81	3.53	
E	1	25	AVG	2.72	17.39	< LOQ
			SD	0.06	1.59	
			CV	2.28	9.15	

< LOQ, less than limit of quantitation

AVG, average; SD, standard deviation, CV, coefficient variation

表4 標準たばこ銘柄の葉中グリセロール類の含有量 (n=5, 7)

Sample	Concentration (mg/g, CTF)			
		Propylene glycol	Glycerol	Triethylene glycol
1R5F (1g/25mL)	AVG	0.22	21.10	< LOQ
	SD	0.00	0.51	
	CV	1.44	2.41	
1R5F (4g/50mL)	AVG	0.21	20.60	< LOQ
	SD	0.01	0.50	
	CV	6.71	2.42	
3R4F (1g/25mL)	AVG	0.21	21.72	< LOQ
	SD	0.00	0.67	
	CV	2.21	3.10	
3R4F (4g/50mL)	AVG	0.17	20.36	< LOQ
	SD	0.01	1.17	
	CV	7.73	5.73	
CM6 (1g/25mL)	AVG	< LOQ	< LOQ	ND
	SD			
	CV			
CM6 (4g/50mL)	AVG	0.10	< LOQ	< LOQ
	SD	0.01		
	CV	5.86		

< LOQ, less than limit of quantitation; ND, not detected

AVG, average; SD, standard deviation, CV, coefficient variation

表5 国産たばこ8銘柄の葉中グリセロール類濃度 (n=5)

Sample	Cigarette brand	Concentration (mg/g, CTF)			
		Propylene glycol	Glycerol	Triethylene glycol	
MEVIUS 1	MEVIUS ONE 100's	AVG	2.50	15.03	< LOQ
		SD	0.03	0.47	
		CV	1.36	3.15	
MEVIUS 3	MEVIUS EXTRA LIGHTS	AVG	2.82	13.44	< LOQ
		SD	0.10	0.29	
		CV	3.59	2.14	
MEVIUS 6	MEVIUS SUPER LIGHTS	AVG	2.78	16.39	< LOQ
		SD	0.27	1.05	
		CV	9.54	6.41	
MEVIUS 8	MEVIUS LIGHTS	AVG	2.61	13.48	< LOQ
		SD	0.08	0.51	
		CV	2.97	3.81	
MEVIUS 10	MEVIUS ORIGINAL	AVG	2.67	16.05	< LOQ
		SD	0.09	0.41	
		CV	3.42	2.55	
SS 14	SEVEN STARS	AVG	2.76	18.51	< LOQ
		SD	0.06	0.75	
		CV	2.12	4.04	
ECHO 15	ECHO	AVG	2.93	18.39	< LOQ
		SD	0.04	0.78	
		CV	1.24	4.22	
WKB 19	WAKABA	AVG	3.00	18.81	< LOQ
		SD	0.11	0.47	
		CV	3.76	2.50	

< LOQ, less than limit of quantitation

AVG, average; SD, standard deviation, CV, coefficient variation

表6 国産たばこ8銘柄の葉中グリセロール類濃度（たばこ1本当たり）

Sample	Cigarette brand	Concentration (mg/cig)		
		Propylene glycol	Glycerol	Triethylene glycol
MEVIUS 1	MEVIUS ONE 100's	1.46	8.80	< LOQ
MEVIUS 3	MEVIUS EXTRA LIGHTS	1.60	7.61	< LOQ
MEVIUS 6	MEVIUS SUPER LIGHTS	1.55	9.10	< LOQ
MEVIUS 8	MEVIUS LIGHTS	1.58	8.14	< LOQ
MEVIUS 10	MEVIUS ORIGINAL	1.51	9.07	< LOQ
SS 14	SEVEN STARS	1.85	12.39	< LOQ
ECHO 15	ECHO	1.56	9.81	< LOQ
WKB 19	WAKABA	2.03	12.70	< LOQ

< LOQ, less than limit of quantitation

厚生労働科学研究費補助金（第3次対がん総合戦略研究事業）
分担研究報告書

メンソールたばこ銘柄の葉中グリセロール類の測定

研究分担者 稲葉 洋平 国立保健医療科学院
研究分担者 内山 茂久 国立保健医療科学院
研究分担者 井埜 利博 群馬パース大学
研究分担者 櫻田 尚樹 国立保健医療科学院
研究協力者 大久保忠利 国立保健医療科学院

要旨

今回、前掲の「国産たばこ銘柄の葉中グリセロール類の測定」で確立したグリセロール類測定法を用いて、メンソールたばこ11銘柄（BEVEL製品2銘柄、PIANISSIMO製品3銘柄、VIRGINIA SLIM製品3銘柄、Marlboro製品2銘柄及びKOOL製品1銘柄）の測定を実施した。その結果、測定対象グリセロール類3種中propylene glycolとglycerolの2種が検出・定量でき、triethylene glycolはいずれの銘柄でも定量下限値以下であった。Propylene glycolの濃度範囲は1.42–8.98 mg/g, CTFであり、銘柄間の最小値及び最大値で5倍近い顕著な差が認められた。Glycerolの濃度範囲は10.39–33.20 mg/g, CTFとなり、特にKOOL Boost 8が33.20 mg/g, CTFと他銘柄よりも2倍以上高い値を示したが、BEVEL Lightsが検出下限値以下（<LOQ）となり、広範な数値を示す結果であった。また、国産たばこ8銘柄と測定結果を比較検討したところ、国産たばこ8銘柄のpropylene glycol濃度（mg/g, CTF）の平均値が2.76なのに対し、メンソールたばこ11銘柄の平均値は5.63と2倍以上の高値を示した。Glycerol濃度（mg/g, CTF）は国産たばこ8銘柄が16.26となり、メンソールたばこ11銘柄が15.17と同程度の値となった。今後は、メンソールたばこ銘柄に含まれるメンソール等の添加物の成分量の測定を行い、グリセロール類の含有量との比較検討をする予定である。

A 目的

メンソールたばこはその特性上各種香気成分を含むため、その保持にglycerolに代表される保湿成分を含有する。これらグリセロール類は上記保湿効果以外にも香気成分に対する表面活性作用としての一面もあり [1]、メンソールたばこ製品には重要な添加物である。また、グリセロール類は燃焼することでたばこ煙中のacrolein含有量 [1] やpropionaldehyde濃度 [2] が増加することが報告されている。

そこで本研究では、国内販売されているメン

ソールたばこ11銘柄のグリセロール類3種（propylene glycol, glycerol, triethylene glycol）を測定し、各種比較・検討を行った。

B 方法

(1) たばこ試料

たばこ試料は、国内販売メンソールたばこ11銘柄を対象とした（表1）。なお、一部製品については、販売停止もしくは商品名の変更が行われている。

(2) たばこ葉中グリセロール類の測定

たばこ葉の恒温・恒湿化は、ISO3402 (1999) に準じ [3], グリセロール類の測定は本報告書掲載の「国産たばこ銘柄の葉中グリセロール類の測定」記載の手法 [4] に従って行った。

C 結果及び考察

メンソールたばこ11銘柄の葉中グリセロール類の含有量

表2にメンソールたばこ11銘柄の葉中グリセロール類の測定結果を示す。測定対象グリセロール類3種中 propylene glycol と glycerol の2種が検出・定量でき、triethylene glycolはいずれの銘柄でも定量下限値以下であった。Propylene glycolの濃度範囲は1.42–8.98 mg/g, CTFであり、銘柄間の最小値及び最大値で5倍近い顕著な差が認められた。Glycerolの濃度範囲は10.39–33.20 mg/g, CTFとなり、特にKOOL Boost 8が33.20 mg/g, CTFと他銘柄よりも2倍以上高い値を示したが、BEVEL Lightsが検出下限値以下 (<LOQ) であったりと広範な数値を示す結果となった。

また、本報告書掲載の「国産たばこ銘柄の葉中グリセロール類の測定」記載の国産たばこ8銘柄と測定結果を比較検討した。国産たばこ8銘柄の propylene glycol濃度 (mg/g, CTF) の平均値が2.76なのに対し、メンソールたばこ11銘柄の平均値は5.63と2倍以上の高値を示した。Glycerol濃度 (mg/g, CTF) は国産たばこ8銘柄が16.26となり、メンソールたばこ11銘柄が15.17と同程度の値となった。しかしながら、国産たばこ銘柄の平均値の変動係数 (%) が5.90 (propylene glycol) と13.42 (glycerol) に対して、メンソールたばこ銘柄が45.43 (propylene glycol) と44.49 (glycerol) と大きく変動していた。これは上記のメンソールたばこ11銘柄の各グリセロール類の濃度範囲が広範であることが理由である。さらに、メンソールたばこ銘柄の glycerol と propylene glycol含有量が国

産たばこ銘柄と異なるのは、これら成分によるメンソール等の添加物への保湿作用や添加物中の香気成分の表面活性効果と関連があるのではないかと考えられた。Hammondらは、カナダ産たばこ232銘柄についてグリセロール類の分析を行ったところ、glycerol平均値が 13.2 mg/cigであったが、223銘柄は定量下限値以下となった。また、propylene glycol平均値が、1.7 mg/cigであったが、207銘柄は定量下限値以下であった[5]。たばこ対策が進むカナダでは、有害化学物質の規制も進んでいることが分かった。一方、我が国の分析結果は、カナダ産たばこと異なり全てのたばこ銘柄においてグリセロール類が定量されている。この結果は、たばこ製品の規制が存在しないためと考えられる。今後は、たばこ製品の規制によって、たばこ製品の販売に関する審査、安全検査などが義務付けられるための政策を提案する。

D 結論

今回メンソールたばこ銘柄の葉中グリセロール類の測定を行った。その結果、今回測定したメンソールたばこ銘柄では、propylene glycol と glycerol が1試料を除き定量可能であったが、triethylene glycolはすべての銘柄で定量下限値以下であった。また、glycerol, propylene glycol共に銘柄間で広範な濃度範囲を示す結果となった。さらに、本報告書掲載の「国産たばこ銘柄の葉中グリセロール類の測定」記載の国産たばこ8銘柄と測定結果を比較検討したところ、propylene glycol濃度が平均で2倍以上、glycerol濃度が同程度の値を示した。これらグリセロール類の濃度の差異がメンソールたばこ特有のものであるかは、今後含有されるメンソール成分等の測定をする必要があると考えられた。

E 引用文献

- [1] Carmines EL, Gaworski CL. Toxicological evaluation of glycerin as a cigarette ingredient. Food Chem Toxicol, 43, 1521 - 1539, 2005.
- [2] Gaworski CL, Oldhan MJ, Coggins CRE. Toxicological consideration on the use of propylene glycol as a humectant in cigarettes. Toxicology, 269, 54 - 66, 2010.
- [3] ISO 3402. Tobacco and tobacco products - Atmosphere for conditioning and testing, International Organization for Standardization, 1999.
- [4] 稲葉洋平, 内山茂久, 緒方裕光, 櫻田尚樹. 国産たばこ銘柄の葉中グリセロール類の測定, 厚生労働科学研究費補助金 第3次対がん総合戦略研究事業 たばこ規制枠組条約に基づいた有害化学物質の規制によるたばこ対策研究 (H24-3次がん-若手-007) 平成25年度 総括・分担研究報告書, 2014.
- [5] Hammond D, O'Connor RJ. Constituents in tobacco and smoke emissions from Canadian cigarettes. Tob Control. 2008;17 Suppl 1:i24-31.

F 研究発表

総括研究報告書に一括記載した。

G 知的財産権の出願・登録状況

なし

表1 メンソールたばこ11銘柄

Cigarette brands	abbreviation	Tar (mg)	Nicotine (mg)
BEVEL Flair MENTHOL*	BVL1	1	0.1
PIANISSIMO Pétit MENTHOL One	PIA1	1	0.1
VIRSINA SLIMS One MENTHOL ¹	VS1	1	0.1
PIANISSIMO Ultra Lights*	PIA3	3	0.3
VIRSINA SLIMS Ultra Lights MENTHOL*	VS3	3	0.3
Marlboro Ultra Lights MENTHOL BOX	MB4	4	0.3
PIANISSIMO icene MENTHOL ²	PIA5	5	0.4
BEVEL Lights	BVL6	6	0.5
VIRSINA SLIMS Lights MENTHOL ³	VS6	6	0.5
Marlboro Lights MENTHOL 100's BOX	MB8	8	0.7
KOOL Boost 8 BOX	KOOL	8	0.7

* 販売中止

¹ VIRSINIA S. One MENTHOLに名称変更

² PIANISSIMO icene Graciaに名称変更

³ VIRSINIA S. Lights MENTHOLに名称変更

表2 メンソールたばこ11銘柄の葉中グリセロール類濃度 (n=5)

Sample	Cigarette brand	Concentration (mg/g, CTF)			
		Propylene glycol	Glycerol	Triethylene glycol	
BVL1	BEVEL FALIR MENTHOL	AVG	5.08	11.24	< LOQ
		SD	0.19	0.43	
		CV	3.75	3.86	
PIA1	PIANISSIMO petil menthol one	AVG	3.23	10.39	< LOQ
		SD	0.10	0.19	
		CV	2.95	1.81	
VS1	VIRSINIA SLIMS One	AVG	4.36	13.44	< LOQ
		SD	0.13	0.44	
		CV	2.95	3.25	
PIA3	PIANISSIMO ultra lights	AVG	2.96	10.77	< LOQ
		SD	0.06	0.22	
		CV	1.98	2.03	
VS3	VIRSINIA SLIMS ULTRA Lights	AVG	8.41	16.32	< LOQ
		SD	0.23	0.45	
		CV	2.76	2.76	
MB4	Marlboro ULTRA LIGHTS	AVG	8.31	14.71	< LOQ
		SD	0.31	0.38	
		CV	3.72	2.55	
PIA5	PIANISSIMO icene menthol	AVG	4.68	12.37	< LOQ
		SD	0.04	0.25	
		CV	0.77	2.03	
BVL6	BEVEL LIGHTS	AVG	1.42	< LOQ	< LOQ
		SD	0.02		
		CV	1.15		
VS6	VIRSINIA SLIMS Lights	AVG	8.98	17.33	< LOQ
		SD	0.18	0.31	
		CV	2.01	1.80	
MB8	Marbolo LIGHTS 100's	AVG	7.76	11.98	< LOQ
		SD	0.03	0.10	
		CV	0.42	0.80	
KOOL	KOOL Boost 8	AVG	6.74	33.20	< LOQ
		SD	0.18	0.79	
		CV	2.66	2.37	

< LOQ, less than limit of quantitation

AVG, average; SD, standard deviation, CV, coefficient variation

表3 メンソールたばこ11銘柄及び国産たばこ8銘柄の葉中グリセロール類濃度

Cigarette brand	Concentration (mg/g, CTF)			
	Propylene glycol	Glycerol	Triethylene glycol	
11 domestic menthol cigarette	AVG	5.63	15.17	< LOQ
	SD	2.56	6.75	
	CV	45.43	44.49	
8 domestic cigarette	AVG	2.76	16.26	< LOQ
	SD	0.16	2.18	
	CV	5.90	13.42	

< LOQ, less than limit of quantitation

AVG, average; SD, standard deviation, CV, coefficient variation

厚生労働科学研究費補助金（第3次対がん総合戦略研究事業）
分担研究報告書

国産たばこ8銘柄のたばこ葉中ポロニウム-210の分析

研究分担者 稲葉 洋平 国立保健医療科学院
研究分担者 内山 茂久 国立保健医療科学院
研究分担者 鈴木 元 国際医療福祉大学
研究分担者 樺田 尚樹 国立保健医療科学院
研究協力者 小林 明莉 東京薬科大学 生命科学部

研究要旨

たばこ葉中の有害因子として自然放射線核種由来のポロニウム（Po-210）が含まれると報告されている。これまでに我が国において、たばこ葉中のポロニウム分析例は少なく、 γ 線スペクトロメトリー法でPb-210を分析しPo-210に換算したものが殆どであった。また、喫煙によって α 線を放出するPo-210を体内に取り込むことで、内部ひばくによる健康影響が懸念されている。そこで本研究では、Po-210の分析が可能な α 線スペクトロメトリー法を利用した国産たばこのPo-210分析を行った。分析対象は標準たばこ3銘柄と国産たばこ8銘柄とした。たばこ葉中Po-210はマイクロウェーブ処理により有機物を分解し、Srレジソラムにより単離した。得られた抽出液中のPo-210はステンレスプレートに電着し、これを α 線スペクトロメトリーで分析した。昨年度、確立した分析法を用いて、たばこ葉中のPo-210の分析（mBq/本）を行ったところ、標準たばこ3銘柄の平均値は、 11.3 ± 4.9 mBq/本であった。また、国産たばこ銘柄1本当たりのPo-210は、MEVIUS Super Lightsの 15.5 ± 0.39 mBqからわかばの25.7 mBqの範囲となり、8銘柄の平均値が 19.3 ± 3.8 mBqとなった。この平均値は、新版生活環境放射線（国民線量の算定）にまとめられたたばこ一本あたりのPo-210の値の算術平均（14.2 mBq、定量範囲；9.3–23.5 mBq）と比較すると高値であった。今後は、海外たばこ銘柄との比較も行う計画である。さらに、主流煙及び副流煙中のPo-210の濃度実態を調査することによって、我が国のたばこ製品中のPo-210の健康影響への寄与が解明できると考えている。

A 目的

我が国は、2005年に国際条約である「たばこの規制に関する世界保健機関枠組条約（Framework Convention on Tobacco Control : FCTC）」を批准し、国内においては健康日本21、健康増進法、がん対策基本法に基づいてたばこ対策を進めている。最近では、2010年2月に「受動喫煙防止対策について」に関する健康局長通知が発出され、さらに健

康日本21（第二次）及びがん対策推進基本計画では、「成人の喫煙率を平成34年度までに12%」に低減など新たな数値目標が盛り込まれた。しかし我が国の喫煙率は先進諸国の中でいまだ高い群に属するのが現状であり、2011年9月の医学雑誌Lancetの日本特集号の中では、日本の予防可能な最大の危険因子は「喫煙」と示された。

たばこ煙中の有害因子の一つに自然放射性核

種由来のポロニウム-210 (Po-210) が含まれていることが以前から知られている(図1)。このPo-210はウラン壊変系列に属し、半減期が138日の α 線放出核種である。この α 線は質量が大きく、正電荷を帯びているため、数センチメートルの空気層や紙一枚で容易に遮蔽することが可能である。しかし、喫煙によって α 線を放出するPo-210を体内に取り込むことで、内部ひばくによる健康影響が懸念されている。特に、2011年3月の東京電力福島第一原子力発電所事故に伴う放射性物質の環境汚染以降、この問題がさらに注目されている。日本政府としても、たばこ煙中に含まれるPo-210吸入による喫煙者及び受動喫煙者の健康への影響について測定・評価することを2012年9月14日に閣議決定した。

原発事故以前の食品から摂取する放射性物質の寄与としてカリウム40、炭素14などがあり、それらによる預託実効線量が国民平均で年間0.4 mSv程度である。我々のグループでも、事故以前から検討してきており、トータルダイエツトスタディによる研究の結果、これらに加えPo-210の寄与が比較的大きく平均で年間約0.3 mSv、地域によっては0.8 mSvに達し、魚介類を多く食することが寄与していることを示してきた[1]。さらに本研究班は、FCTCにおける第9条たばこ製品の含有物に関する規制に対応するために約20カ国、20数研究室が参加するWHOたばこ研究室ネットワーク(TobLabNet)に国内で唯一の研究グループとして参画し、これまでたばこ葉及びたばこ煙主流煙中の有害化学物質の分析・測定を継続してきた。また、平成24年度の厚生労働科学特別研究事業では、たばこ葉中のPo-210分析法の確立を行った[2]。

そこで本研究は、昨年度確立したたばこ葉中Po-210分析法を利用し、我が国の紙巻たばこ製品中のPo-210の分布状況を調査することを目的として、2012年度国産たばこ上位8銘柄のたばこ葉中

Po-210の分析を行った。

B 方法

(1) たばこ試料

たばこ試料は、標準たばこの3R4F, 1R5F, CM6の3銘柄と2012年販売量上位8銘柄の計11銘柄を使用した(Table 1)。内分標準試葉としてポロニウム-209 (activity: 375.6 Bq/50 mL in 5M硝酸) は、Eckert & Ziegler Nuclitec GmbH製を使用した。

(2) たばこ葉試料の調整

たばこ葉は、たばこ本体から分離し、ミル付ミキサー(TWINBIRD KC-4508型、ツインバード工業製)で1分間粉碎した。粉碎したたばこ葉試料は、ISO 3402[3]に準じ、前処理操作前に48時間(最低)から10日間(最大)、温度 $22 \pm 2^\circ\text{C}$ 、湿度 $60 \pm 3\%$ で恒湿化を行った後にPo-210分析に供した。

(3) たばこ葉中ポロニウムの測定

たばこ葉中ポロニウムの測定は、Miuraら[2,4]の手法を一部改良した手法を用いた。一連の前処理工程を図2に示す。まず、始めに「有機物分解」段階では、たばこ葉試料 0.25 gは内部標準物質であるポロニウム-209 2.5 μL 、硝酸9 mL (HNO_3 , 有害金属分析用)、過酸化水素 (H_2O_2 , 有害金属測定用) 1 mL、銅溶液 (Cu, 10 mg/mL, 塩酸) 0.25 mL及び鉛溶液 (Pb, 1 mg/mL, 塩酸) 0.125 mLと共にマイクロウェーブ装置 (ETHOS PLUS, Milestone General製) 専用容器に入れ、タイムプログラム (Milestone General社Report Code: B0081/サンプル: 葉) に従ってマイクロウェーブ処理をした。マイクロウェーブ処理の条件は、常温 -50°C (2min) -30°C (3 min) -210°C (16 min) -180°C (1 min) -210°C (4 min) $-$ (20min) 継続とした。次に「硫化物沈殿」段階として、上記分解試料溶液は、4試料分をテフロン製200 mL形ビーカーに移し、合致させた後、ホットプレート上で加熱濃

縮（120°C）して1M塩酸15 mLで再溶解した。塩酸溶液は硝酸セルロースフィルター（0.45 μm）で濾過し、得られた濾液に飽和アスコルビン酸溶液2 mLと4Mアンモニア溶液7 mLを加えて、pHを4-5に調製した。さらに本溶液は1.3Mチオアセトアミド溶液10 mLを加えてホットプレート上で加熱（120°C，1 hr）して、硫化物沈殿物を得た。

さらに「抽出カラム操作」段階で、硫化物沈殿物は硝酸セルロースフィルター（0.8 μm）で濾過し、濾過物を硝酸15 mL中で溶解したものをホットプレート上で「加熱濃縮（120°C）／塩酸での再溶解（5 mL）」を3回繰り返した後、再度加熱濃縮したものを4M塩酸20 mLで再溶解して抽出カラム用試料とした。上記抽出カラム用試料はSrレジンカラム（Eichrom製，100-150 μm，2 mL容）に導入後，4M塩酸8 mL（Cu及びBi溶出）及び8M塩酸20 mL（Pb溶出）で洗浄し，6M硝酸20 mL（Fe及びPo溶出）を通液して電着用溶液を得た。最後の「電着」段階では，上記電着用溶液はホットプレート上で加熱濃縮（120°C）して0.5M塩酸10 mLで再溶解した後，電着装置（電解分析装置；ANA-2，東京光電工業社製）用容器に移し飽和アスコルビン酸溶液1.5 mLを添加して電着を行った（0.25 A，60°C，2.5 hr）。得られた電着用プレート（ステンレス製，25 mm φ）はMilliQ水／エタノール／アセトンの順で洗浄・乾燥した後，ポロニウム測定（α線スペクトロメトリー，シリコン半導体検出器：ORTEC社製）した（図3）。

C 結果及び考察

標準たばこのPo-210

標準たばこ銘柄のたばこ葉中Po-210分析結果をTable 2に示す。3R4Fのデータは昨年度の数値を記載した。標準たばこ3銘柄の平均値は，11.3±4.9 mBq/本であった。また，今年度の対象2銘柄の変動係数（coefficient of variation:CV）は，6.2と6.7%となった。

国産たばこ銘柄のPo-210

国産たばこ8銘柄のたばこ葉中Po-210の分析結果をTable 3に示す。たばこ1本当りのPo-210は，MEVIUS Super Lightsの15.5±0.39 mBqからわかばの25.7 mBqの範囲となり，8銘柄の平均値が19.3±3.8 mBqとなった。MEVIUSの5銘柄は，平均値が15.5-18.9 mBq/本とたばこブランド内で比較的安定した結果であった。また，Seven Starsとわかばは，25.0と25.7 mBq/本と高値であった。たばこ銘柄によってもPo-210量は，異なることが考えられた。さらに国産たばこ銘柄のPo-210平均値（19.3 mBq/本）は，標準たばこ銘柄と比較すると高値であった。また，この平均値は，新版生活環境放射線（国民線量の算定）にまとめられたたばこ一本あたりのPo-210の値の算術平均（14.2 mBq，定量範囲；9.3-23.5 mBq）[5]と比較すると高値であった。

一方で，Sakodaらが2012年に報告した国産たばこ20銘柄の平均値は8±3 mBq/本となり[6]，本分析結果の約半分の数値であった。Sakodaらは，たばこ葉中のPo-210がPb-210と放射性平衡になるため，Pb-210が放出する46.5 keVの低エネルギーγ線を分析していた。そのため，γ線を分析するゲルマニウム半導体検出器では，バックグラウンドの影響もあってPb-210の分析が難しいところがあると考えている。

たばこ葉中ポロニウムの低減

たばこのPo-210は，空気中のRa-222およびその娘核種がたばこ葉に付着し，その後の壊変に伴いできたPo-210を取り込む可能性とウランやPb-210を豊富に含有するリン酸肥料を使用することによって，根から吸収される可能性が指摘されている。

解決策としては，

1.ウランの含有量の少ない肥料に置き換える。

- 2.収穫後の葉を酸洗浄する。
3. フィルターでPo-210を捕獲する。
4. タバコ葉に微細な毛が無い品種を遺伝子組み換えで栽培する。
などがある。

今後の検討課題

本研究では、国産たばこ8銘柄のたばこ葉のPo-210分析を行った。今後は、同8銘柄のPb-210の分析を行う計画である。また、海外産たばこ銘柄の分析を行うことによって、我が国のたばこ銘柄の実態を明らかにする必要があると考えている。

D 結論

国産たばこ8銘柄のたばこ葉中Po-210の分析を行った。たばこ葉中のPo-210は、海外の先行研究と比較すると高値であった。たばこ葉中のPo-210は、栽培の工夫などで低値にすることが可能であると報告されている。

E 引用文献

- [1] Sugiyama H, Terada H, Isomura K, Iijima I, Kobayashi J, Kitamura K. Internal exposure to (210)Po and (40)K from ingestion of cooked daily foodstuffs for adults in Japanese cities. *J Toxicol Sci.* 2009;34:417-425.
- [2] 稲葉洋平, 内山茂久, 寺田宙, 山口一郎, 櫻田尚樹 タバコ葉中及び主流煙中のポロニウムの測定 厚生労働科学研究費補助金 厚生労働科学特別研究事業「タバコ煙中のポロニウムの含有量とその測定法に関する研究」<H24-

特別-指定-032>平成24年度分担報告書 ;
2013.5-17.

- [3] ISO 3402. Tobacco and tobacco products - Atmosphere for conditioning and testing, ISO, 1999.
- [4] Miura T, Hayano K, Nakayama K. Determination of ²¹⁰Pb and ²¹⁰Po in Environmental Samples by Alpha Ray Spectrometry Using an Extraction Chromatographic Resin. *Anal Sci.* 1999;15:23-28.
- [5] 公益財団法人 原子力安全研究協会. 新版生活環境放射線 (国民線量の算定) 2011;23-26.
- [6] Sakoda A, Fukao K, Kawabe A, Kataoka T, Hanamoto K, Yamaoka K. Radioactivity of 210Pb in Japanese cigarettes and radiation dose from smoking inhalation. *Radiat Prot Dosimetry.* 2012;150:109-113.

F 研究発表

総括研究報告書に一括記載した。

G 知的財産権の出願・登録状況 なし

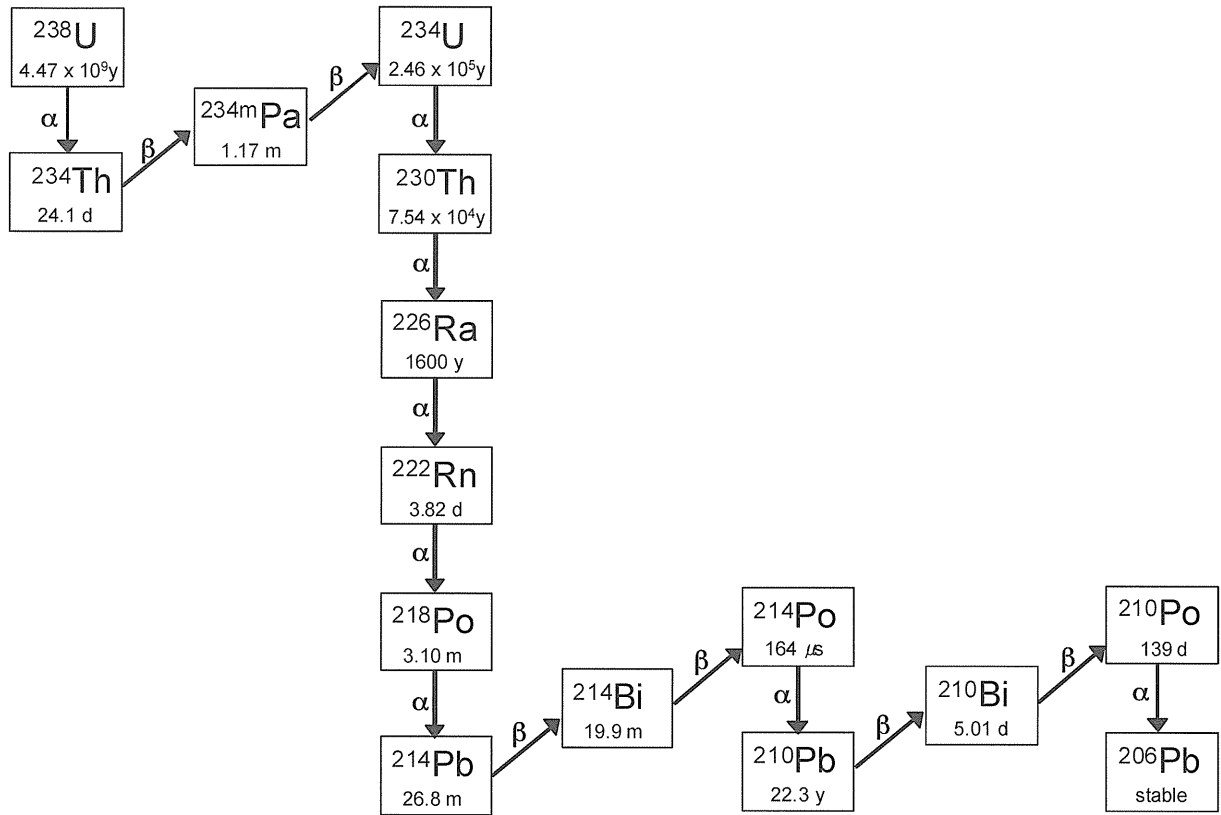


図1 ウラン (^{238}U) 壊変系列

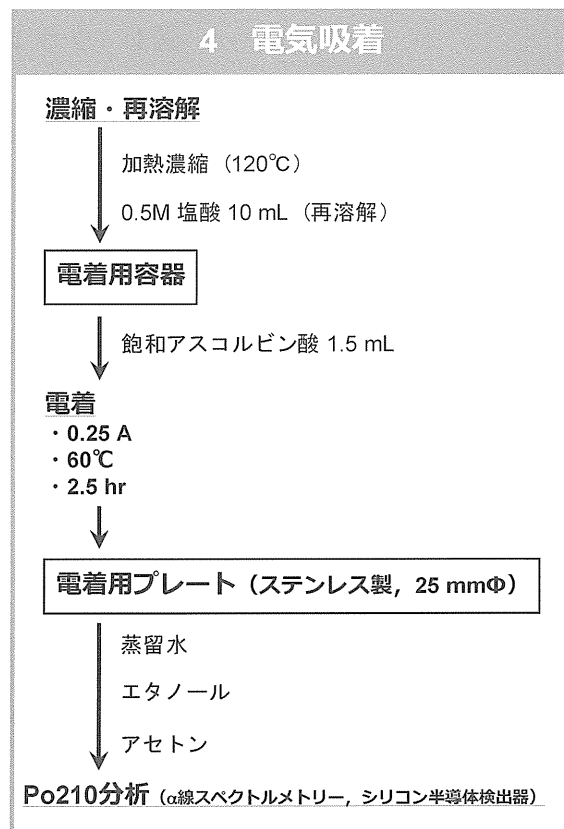
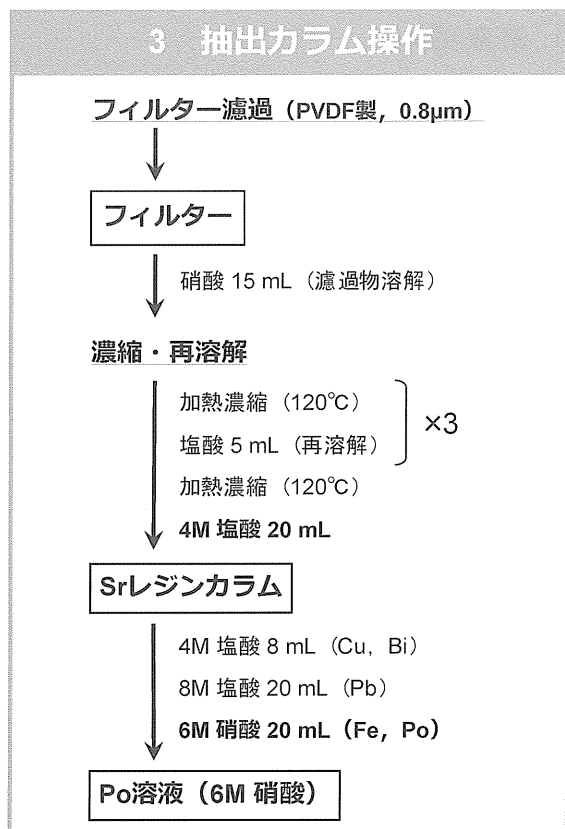
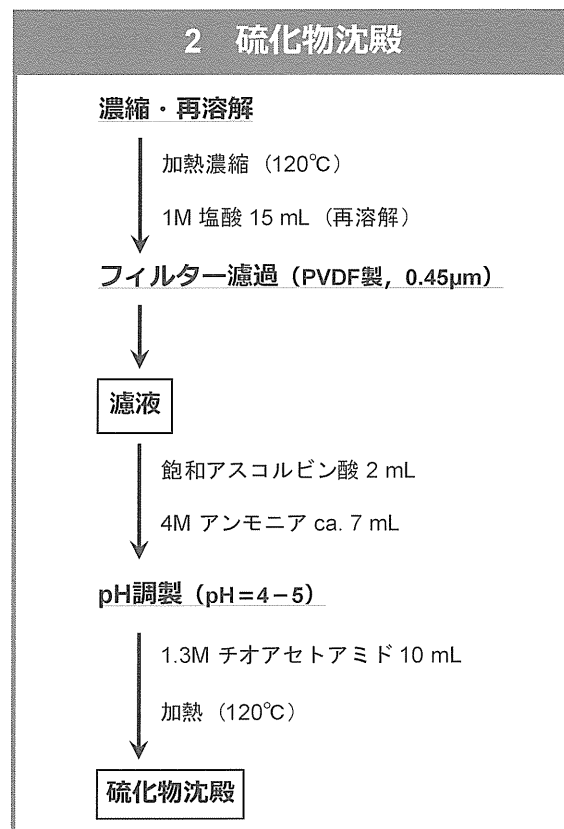
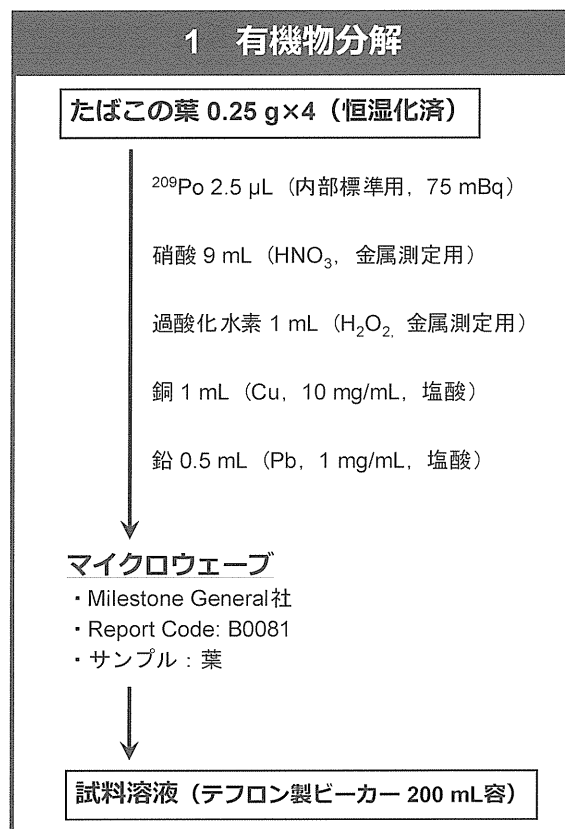
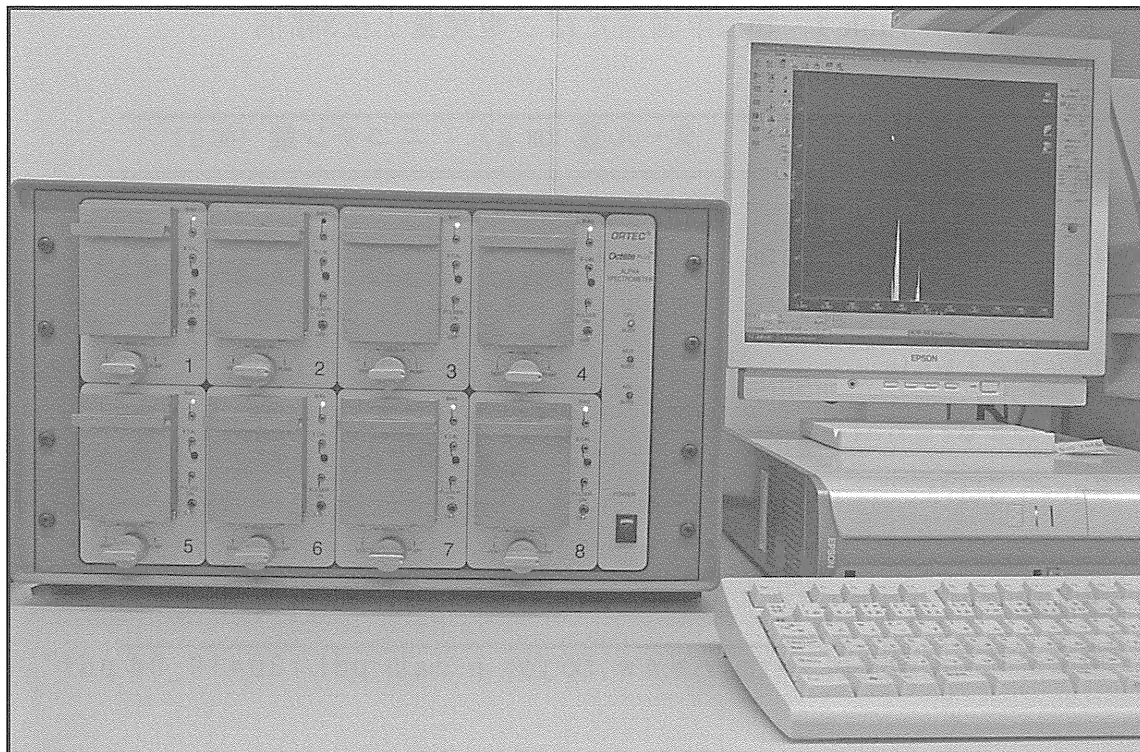
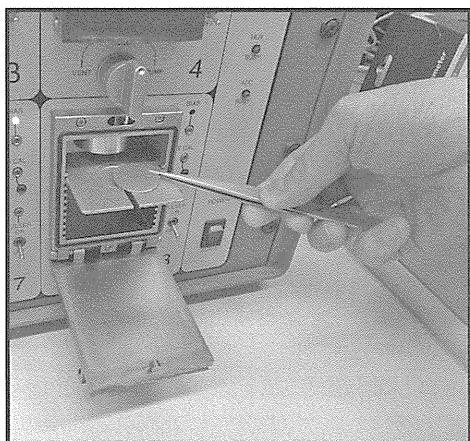


図2 たばこ葉中ポロニウム分析の流れ

(A) α 線スペクトロメーター



(B) 分析用セルと電着板



(C) Po-210及びPo-209のスペクトル

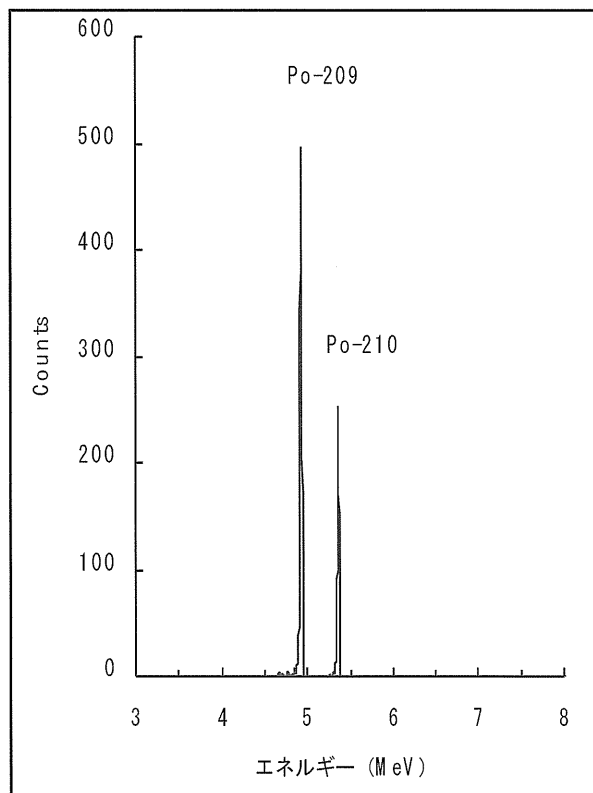


図3 α 線スペクトロメーターとスペクトルの例

Table 1 2012年国産たばこ販売量上位8銘柄

	タール量 (m g)	ニコチン量 (m g)
M EV IUS ONE	1	0.1
M EV IUS Extra Lights	3	0.3
M EV IUS Super Lights	6	0.5
M EV IUS Lights	8	0.6
M EV IUS Original	10	0.8
Seven Stars	14	1.2
echo	15	1.0
わかば	19	1.4

日本たばこ協会発表 : http://www.tio.or.jp/data/pdf/130419_04.pdf

Table 2 標準たばこ葉中のポロニウム-210の分析結果

Standard Cigarette		Polonium-210				
Brand	No.	(m Bq/g)	(m Bq/本)	Mean	*SD	**CV (%)
3R4F	1	13.7	10.1	11.4 ± 1.50	13.2	
	2	14.4	10.7			
	3	14.9	11.0			
	4	18.9	14.0			
	5	15.1	11.2			
1R5F	1	10.5	5.8	5.6 ± 0.39	6.7	
	2	9.6	5.3			
	3	11.2	6.2			
	4	9.6	5.2			
	5	10.4	5.7			
CM6	1	23.3	17.5	17.0 ± 1.05	6.2	
	2	23.2	17.5			
	3	21.9	16.5			
	4	23.9	18.0			
	5	20.4	15.4			

*SD : standard deviation, **CV : coefficient of variation