

三次喫煙による曝露経路に関する研究—接触による移動及び再放散について—

大貫 文^a, 齋藤 育江^a, 小西 浩之^a, 守安 貴子^b

受動喫煙の一つである三次喫煙の特徴は、4つのR、すなわち残留、反応、再放散及び再浮遊と定義される性質を持つことである。これに加えて、我々は接触による移動という性質を持つと考え、その実態を調査するための基礎的実験を行った。あわせて、再放散について、副流煙吸着後からの時間経過による再放散物質の変化や温度による再放散物質への影響を調査した。接触による移動に関する実験は、副流煙を吸着させた布と未吸着の布を接触させた後、未吸着の布におけるニコチン及びたばこ特異的ニトロソアミン (TSNA) の吸着濃度を経時的に測定した。再放散に関する実験は、副流煙を吸着させた布及び壁紙を、吸着後直ちにまたは1時間後に空気採取用バッグに入れ、20°Cまたは40°Cで再放散される化学物質濃度を測定した。調査の結果、接触による移動については、ニコチンは10分間接触後から、TSNAの一つである4-(メチルニトロソアミノ)-1-(3-ピリジニル)-1-ブタノンは1時間接触後から検出され、接触時間が長いほど濃度が増加した。再放散については、副流煙吸着直後からの再放散濃度及び物質数が多いこと、再放散時の温度が高い方が濃度及び物質数が多いことが確認された。以上の結果から、三次喫煙は4つのRのほか、接触により移動するという性質を有する可能性が示唆された。

キーワード：三次喫煙，移動，再放散，ニコチン，たばこ特異的ニトロソアミン

はじめに

三次喫煙 (Thirdhand Smoke, 以下THSと略す) とは2009年に初めて用語が報告された、新しい概念の受動喫煙である¹⁾。受動喫煙として知られる二次喫煙 (Second Hand Smoke) と異なるのは、THSが「4つのR」と定義される性質を持つことである^{2,4)}。すなわち、たばこ関連物質が喫煙後も室内等に残っていること (Remain)、大気中成分と反応すること (React)、残った物質や反応生成物質が室内に再放散すること (Re-emit) 及び再浮遊すること (Resuspension) である。

残留という性質については、2009年以前から、環境たばこ煙 (Environmental Tobacco Smoke, 以下ETSと略す) に曝露された喫煙室の内装にたばこ関連物質が吸着することが報告されていた⁵⁾。これに加え、最近の報告では、喫煙者が存在しない空間、例えば、現在の居住者が非喫煙者、前居住者が喫煙者という住宅室内や、非喫煙者が運転するレンタカーの車室内から、ニコチン等が検出されることが明らかになった⁶⁻⁸⁾。つまり、THSにおけるたばこ関連物質の残留は、喫煙者が利用したことのある住宅、オフィスビル、車内で認められ、長期間に及ぶ可能性があるということである。

反応については、特にたばこ特異的ニトロソアミン (Tobacco Specific Nitrosamine, 以下TSNAと略す) の生成が知られている。主な反応過程として、残留したニコチンと大気中の化学物質、例えば亜硝酸ガス等とが反応し、4-(メチルニトロソアミノ)-1-(3-ピリジニル)-1-ブタノン (以下NNKと略す) やN-ニトロソノルニコチン (以下NNNと

略す) 等が生成されることが報告されている^{2,9,10)}。喫煙者家庭におけるハウスダスト中のTSNA吸収による発ガンリスクがWHO推奨値 (1×10^{-5}) を超える可能性も試算されており、THSにおける懸念の一つとなっている¹¹⁾。

再放散については、布等に一度吸着した化学物質が再放散することが報告されている^{12,13)}。我々も以前、副流煙を吸着させた11種類の布から、ホルムアルデヒドやベンゼン等、多くの有害物質が再放散すること、布の種類や厚さにより再放散する物質の種類や量が変わること等を報告した¹⁴⁾。また、実態に近い家具付き室内における再放散実験も行われており、ニコチン等、揮発性が低い物質ほど、残留及び再放散が見られることが報告されている⁵⁾。

再浮遊については、ETSの粒子成分の再放散と考えられる。室内に堆積した微粒子は、歩行する、掃除をする、衣類や寝具を畳む等の人の活動によって再浮遊し、その強度が強いほど量が増加する^{15,16)}。再浮遊するETS由来微粒子の大きさは $0.15 \mu\text{m}$ で、これは主流煙よりも小さく、吸入した場合には肺深部への影響が危惧される^{17,18)}。

このように、長く残留する、有害物質へ変化する、再放散及び再浮遊するという性質を有するTHSであるが、我々はさらに「接触により移動する」という性質を持つと考えた。つまり、ETSに曝露された人や物が、次の非喫煙空間にたばこ関連物質を移動させるのである。その性質が推測できる研究結果として、喫煙者である親が訪問した新生児室のベビーベッドや家具からニコチンが検出されたというNorthrupらの報告がある¹⁹⁾。表面のニコチン濃度について、30日毎に交換されるベビーベッドよりも家具の方が高くな

^a 東京都健康安全研究センター薬事環境科学部環境衛生研究科
169-0073 東京都新宿区百人町3-24-1

^b 東京都健康安全研究センター薬事環境科学部

った理由の一つとして、著者らは、喫煙者の衣類がTHSの残りを家具等に移した可能性を示唆している。この接触によって物質が移動するという性質をTHSが有する場合、THSによる物質の曝露は、喫煙に関係ない場所や人に及ぶ可能性があることを示唆している。

そこで本研究では、THSによる汚染が「接触により移動」する可能性を調査するため、布2種を試験体とし、これらに吸着させたたばこ関連物質の、別の試験体への移動について基礎的な実験を行った。調査物質は、Northrupらが調査したニコチンに加え、NNK及びNNNを含むTSNAも対象とした。また、以前報告した再放散実験について、布及び壁紙を試験体として、副流煙吸着直後からの時間経過による再放散物質の変化や再放散時の温度による再放散物質への影響を調査したので、併せて報告する。

実験方法

1. 試験体

試験体は、衣類を想定した布2種類と内装材である壁紙1種類を使用した。布の製品名はデニム（綿100%、黒色）及びファー（毛：アクリル100%、グラウンド：ポリエステル100%、白色）、壁紙は防カビ、抗菌、消臭、汚れ防止機能を有した塩ビ樹脂製品（白色）である。

2. 測定対象物質

接触による移動に関する実験は、ニコチン及びTSNA4物質を測定対象とした。TSNAは、NNK、NNN、N'-ニトロソアナタピン（以下NATと略す）及びN'-ニトロソアナバシン（以下NABと略す）である。

再放散に関する実験は、揮発性有機化合物（以下VOCと略す）、アルデヒド類及びTSNA、合計51物質を測定した。VOC及びアルデヒド類は、Indoor Air Standard（50成分、Sigma-Aldrich）及びAldehyde/ketone-DNPH Mix

（Sigma-Aldrich）に含まれる36物質と、ニコチン、3-エテニルピリジン、ナフタレン、アクリロニトリル、プロピオニトリル、1-メチルピロール、ピロール、ピリジン、フルフラール、酢酸及びイソプレンである。

3. 分析方法

接触による移動に関する実験では、ニコチン及びTSNAの試験体への吸着量を測定した。

方法は、各試験体に抽出溶液を加え振とう抽出後（240 rpm、30分間）、抽出液中のニコチンを高速液体クロマトグラフ（以下HPLCと略す）で、TSNAを液体クロマトグラフ質量分析計（以下LC-MSと略す）で分析した。抽出溶液は、デニム及びファーは30 mM酢酸アンモニウム/70%アセトニトリル溶液を、壁紙は100 mM酢酸アンモニウム水溶液を用いた。

ニコチンの分析条件は、カラム：Zorbax 300 SCX（150 mm×4.6 mm、粒径5 µm、アジレント・テクノロジー）、カラム温度：40°C、移動相A：50 mMギ酸アンモニウム水

溶液、移動相B：50 mMギ酸アンモニウム/メタノール溶液、グラジエント（B%）：80%（2 min）-16%/min-70%（2.4 min）、流速：1.0 mL/min、注入量：20 µL、検出波長：260 nmとした。

TSNAの分析条件は、カラム：Acquity UPLC BEH C18（50 mm×2.1 mm、粒径1.7 µm、Waters）、カラム温度：40°C、移動相A：5 mM酢酸アンモニウム/10%メタノール溶液、移動相B：5 mM酢酸アンモニウム/90%メタノール溶液、グラジエント（B%）：0.1%（1.5 min）-27%/min-99.9%（4.8 min）、流速：0.3 mL/min、注入量：5 µL、各物質のプレカーサーイオン及びプロダクトイオンは、NNKが208.0>122.1, 79.1, NNNが177.9>148.0, 120.1, NATが190.0>160.1, 79.1, NABが192.0>162.1, 106.1, NNK-*d*₃が210.9>122.0とした。

再放散に関する実験では、空気中のVOC、アルデヒド類及びTSNA濃度を測定した。

方法は、空気中の各物質を専用の捕集管で採取し、VOCは加熱脱着ーガスクロマトグラフィー質量分析計（以下TD-GC-MSと略す）¹⁴⁾、アルデヒド類はHPLC¹⁴⁾、TSNAは前述のLC-MSを用いた方法で分析した。各捕集管は、VOCはTenaxTA充填加熱脱着用ガラスチューブ

（Supelco）、アルデヒド類はSep-Pak XPoSure（Waters）、TSNAはガラス繊維フィルター（Whatman）を用いた。なお、VOCの中のフルフラール、酢酸及びイソプレンについてはトルエン換算によって濃度を算出した。

各分析装置は、HPLCはNexera X2シリーズ（島津製作所）、LC-MSはAcquity UPLC-Qtrap5500（Waters-AB Sciex）、TDはTurboMatrix650（Perkin-Elmer）、GC-MSはGCMS-QP2010 Ultra（島津製作所）を用いた。

なお、吸着ニコチン濃度、吸着TSNA濃度及び空気中TSNA濃度測定法については、妥当性評価を行った。

4. 妥当性評価

1) 吸着ニコチン濃度の測定

検量線は、ニコチン標準物質を精製水で0.05～10.0 ppmの範囲に希釈して求めた。

定量下限値は、ニコチン標準液（0.05 ppm）を繰り返し測定し、標準偏差の10倍から算出した（n=5）。

添加回収試験は、次のとおりに行った。ニコチンの標準物質（10～20 µg）を添加、10分間風乾させた後の試験体に抽出溶液を5～10 mL加え振とう抽出後、抽出液をHPLCで分析した（n=3）。

2) 吸着及び空気中TSNA濃度の測定

検量線は、TSNAの標準物質をメタノールで0.01～10.0 ppbの範囲に希釈して求めた。

定量下限値は、TSNA標準液（0.01 ppb）を繰り返し測定し、標準偏差の10倍から算出した（n=5）。

吸着濃度測定のための添加回収試験は次のとおりに行った。TSNAの標準物質（各10 ng）を添加、10分間風乾させた後の試験体に抽出溶液を5～10 mL加えて振とう抽出後、

抽出液に内部標準物質 (NNK-*d*₃) を添加し, LC-MSで分析した (n=3) .

空气中濃度測定のための添加回収試験は次のとおりに行った. TSNAの標準物質 (3 ng) を直径20 mmのガラス繊維フィルター (以下フィルターと略す) に添加し, 0.5 L/minの流速で約10分間, 室内空気を通気した. 通気後, フィルターに100 mM酢酸アンモニウム水溶液3 mLを加えて振とう抽出後, 抽出液に内部標準物質を添加し, LC-MSで分析した (n=5) .

また, 再放散物質に含まれるたばこ関連物質によるTSNAへの影響を確認するため, 標準物質を添加したフィルターに副流煙を通気した場合の回収率も算出した. TSNAの添加量は, 副流煙中のTSNA量を考慮して5~50 ngとし, 副流煙は0.5 L/minで約10分間通気した. 回収率は, 標準物質を添加, 副流煙を通気した場合のTSNA量から, 副流煙のみを通気した場合のTSNA量を減算して求めた (n=3) .

5. 接触による移動に関する実験方法

たばこ関連物質の接触による移動については, 副流煙を吸着させた試験体 (移動元) と未吸着の試験体 (移動先) を一定時間接触させた後, 試験体の化学物質濃度を測定することで調査した.

初めに, 移動元の試験体 (ファー) をビニル製チャンバー (約175 L) に入れた後, 点火したたばこ (2本) をチャンバーに入れ, 副流煙を約10分間吸着させた (Fig. 1) . 次に, 試験体をチャンバーから取り出し, 直ちに2枚の試験体で移動先の試験体 (デニム) を挟み, それらの上にガラス板及び重りを乗せて, 十分に接触させた (3.75 g/cm²) . 接触開始から10分~2時間後または2時間~28日後に, 移動先の試験体を抜き取り (1測定 : 2 cm²×4枚) , ニコチン及びTSNAの吸着濃度を測定した.

また, 副流煙吸着直後は試験体からの再放散が見られるため, 再放散による吸着の影響を除いた移動についても調査した. 移動元に用いたファーの場合, 副流煙吸着後から約1時間で, 再放散される化学物質の約9割が放散されると推計されており¹⁴⁾, したがって, チャンバー内で副流煙を吸着させた試験体 (ファー) を, チャンバーの外で1時間放散させたものを移染元とした. これを上記と同様に移動先の試験体 (デニム及びファー) に接触させ, 1~15日後

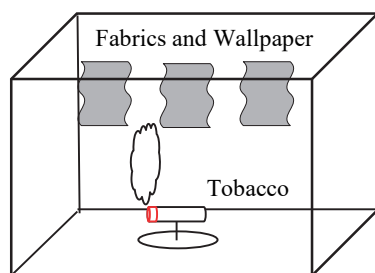


Fig. 1. Schematic of an Experimental Sidestream Smoke Exposure to Fabrics and Wallpaper

に, ニコチン及びTSNAの吸着濃度を測定した (1測定 : 2 cm²×4枚) .

6. 再放散に関する実験方法

たばこ関連物質の再放散については, 副流煙を吸着させた試験体から再放散される化学物質について, 副流煙吸着後からの経過時間や温度による変化を調査した.

副流煙吸着試験体は, 試験体 (デニム, ファー及び壁紙) をビニル製チャンバー (約175 L) に入れた後, 点火したたばこ (2本×2回) をチャンバーに入れ, 副流煙を約20分間吸着させて作製した (Fig. 1) . 次に, 副流煙吸着直後の試験体 (①) または室内 (20°C) で1時間放散させた試験体 (②, ③) を空気採取用バッグ (アナリティカルバリアバッグ, GLサイエンス) に入れ, 乾燥空気を約10 L封入し, 約1時間, 20°C (①, ②) または40°C (③) で静置した後, バッグ内空気中のVOC, アルデヒド類及びTSNA濃度を測定した (n=1) . 各捕集管での空気採取量は, VOCは0.2~0.3 L (0.1 L/min×2~3 min) , アルデヒド類は約4 L (0.5 L/min×8 min) , TSNAは約5 L (0.5 L/min×10 min) とした.

また, 再放散物質と比較するため, 副流煙中の化学物質についても測定した (n=3) .

結果及び考察

1. 妥当性評価結果

1) 吸着ニコチン濃度の測定

検量線について, 溶液濃度0.05~10.0 ppmの範囲において良好な結果が得られた (R=0.9999) .

繰り返し測定によって得られた定量下限値は, 溶液濃度0.06 ppmであった.

各試験体における回収率平均値及び変動係数は, それぞれ, デニムが106%及び5.2%, ファーが103%及び4.6%, 壁紙が94.0%及び2.2%で, いずれも良好な結果が得られた.

2) 吸着及び空气中TSNA濃度の測定

各TSNAの検量線について, 横軸はTSNA溶液濃度, 縦軸はNNK-*d*₃に対する面積比を求めた結果, いずれのTSNAについても良好な結果が得られた (R=1.000) .

繰り返し測定によって得られた各TSNAの定量下限値は, 溶液濃度0.01 ppbであった.

吸着濃度及び空气中濃度測定のための添加回収試験結果について, 平均回収率及び変動係数をTable 1に示す. 吸着濃度測定について, デニムにおけるNAB及びNATの変動係数が10%前後で, ややばらつきが見られたが, ファー及び壁紙については, 回収率, 変動係数ともに良好な結果が得られた.

空气中濃度測定については, たばこ関連物質によってフィルターに捕集されたTSNAが増減する可能性を考慮し, 通常空気の通気に加え, 副流煙を通気させる実験を行った. その結果, 副流煙 (Filter2) を通気した場合の方が, 室内空気 (Filter1) を通気した場合よりも回収率が5~25%低か

ったが、これが、副流煙による影響なのか、回収率算出の過程で副流煙中のTSNAを減算した影響なのかは不明である。しかし、両条件とも、回収率範囲は89.1~114%、変動係数は10%未満であり、本法は空气中TSNAの測定に適用可能と判断した。

2. 接触による移動に関する実験

副流煙吸着直後から接触させた場合（以下直後と略す）のニコチン濃度をFig. 2に、TSNA濃度をFig. 3に、副流煙吸着1時間後から接触させた場合（以下1時間放散後と略す）のニコチン濃度をFig. 4に、TSNA濃度をFig. 5に示す。また、直後及び1時間放散後の結果を比較するため、デニムにおけるニコチン濃度をFig. 6に、NNK濃度をFig. 7に示す。なお、Fig. 6及びFig. 7について、デニム（移動先）の各濃度はファー（移動元）に吸着した副流煙の濃度に依存する可能性が考えられた。そこで、直後及び1時間放散後の実験に使用したファーについて、副流煙吸着1日後のニコチン及びTSNA濃度を測定したところ、ニコチンが4.5 µg/cm²

及び5.0 µg/cm²、TSNAはいずれも同濃度で（NNK : 1.1 ng/cm²、NNN及びNAT : 0.2 ng/cm²、NAB : 0.05 ng/cm²）、移動元の濃度は同程度であったと判断した。

Fig. 2aより、ニコチンは最短で10分間接触後のデニムから検出された。吸着濃度は接触時間が長いほど増加し、28日間接触後のニコチン濃度は2時間接触後の約6倍高濃度になることが分かった（Fig. 2b）。

Fig. 3a及びFig. 3bより、NNKは1時間後から、NATは2時間後から、NNNは4時間後から、NABは2日後から検出され、いずれも接触時間が長いほど吸着濃度は高くなった。4物質中最も高濃度だったのはNNKで、28日後には他TSNAの3~10倍以上であった。

Fig. 4より、1時間放散後のニコチンは、デニム及びファアのいずれにおいても1日接触後から検出され、経時的な濃度増加が見られた。試験体によって濃度差が見られ、15日後のデニムはファアの約2倍高濃度であった。

Fig. 5より、NNK（デニム、ファー）及びNAT（デニム）は1日接触後から、NNN（デニム）は2日後から検出され

Table 1. Recovery Rate and Coefficient of Variation (%)

Method	Material	NNK		NNN		NAB		NAT	
		Ave.	CV	Ave.	CV	Ave.	CV	Ave.	CV
Adsorption	Denim	94.2	6.4	98.4	4.7	92.8	10.1	94.4	9.8
	Fur	88.6	1.1	92.5	0.9	86.4	2.3	88.1	1.2
	Wallpaper	98.3	1.2	101	0.6	98.0	2.6	99.0	2.0
Air	Filter 1*	112	5.0	114	3.2	111	2.8	105	2.7
	Filter 2*	98.6	5.9	89.1	4.4	99.1	6.8	100	8.6

*After the standard substance was added, room air was passed through Filter 1 and sidestream smoke was passed through Filter 2.

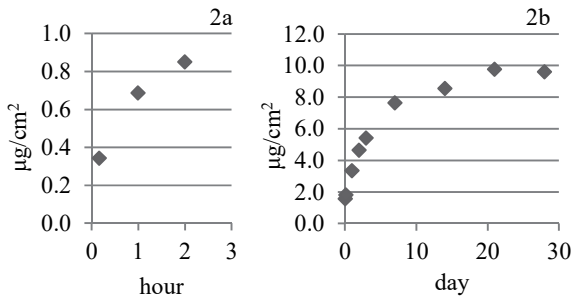


Fig. 2. Adsorption Amount of Nicotine in Denim

The denim was contact with fur immediately after adsorption of sidestream smoke.

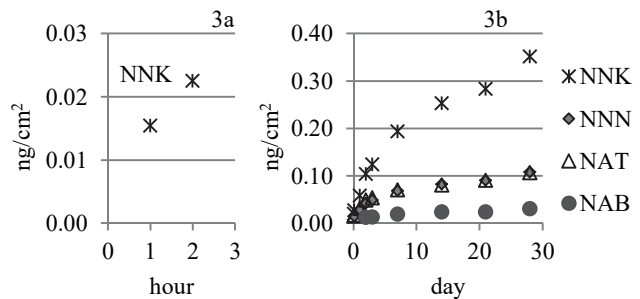


Fig. 3. Adsorption Amount of TSNA in Denim

The denim was contact with fur immediately after adsorption of sidestream smoke.

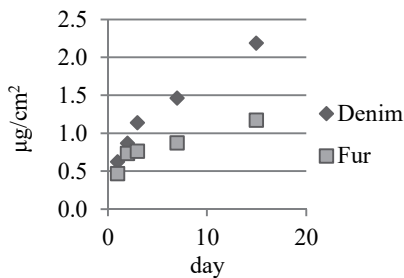


Fig. 4. Adsorption Amount of Nicotine in Fabrics

The denim and fur were contact with fur one hour later after adsorption of sidestream smoke.

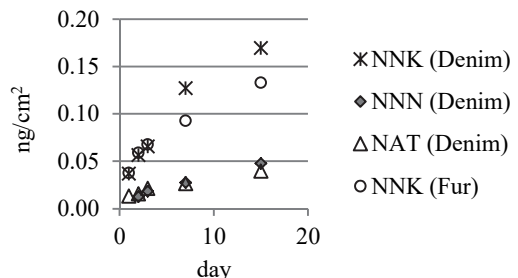


Fig. 5. Adsorption Amount of TSNA in Fabrics

The denim and fur were contact with fur one hour later after adsorption of sidestream smoke.

た. その他については, 15日後のみ検出または15日後も定量下限値未満であった(グラフには示していない). ニコチン同様, 経時的な濃度増加が見られ, ファーよりもデニムにおける吸着量が多かったが(NNK), 15日後の濃度差は1.2倍で, ニコチンほどの差は見られなかった.

Fig. 6より, ニコチンは1時間放散後に比べ直後の濃度が高く, 接触1日後では5.2倍, 2週間後では3.9倍の濃度差が見られた. NNK濃度についても直後の方が1時間放散後よりも高かったが, 接触1日後は1.6倍, 2週間後は1.5倍で, ニコチンよりも濃度差は小さかった(Fig. 7).

以上の結果から, 布に吸着したニコチン及びTSNAが接触によって違う布に移動すること, 移動先の素材によって移動量が変わること, 接触時間が長いほど移動量が増加すること, 特にニコチンは副流煙吸着直後の接触で移動量が多くなること等が分かった. したがって, THSは接触による移動という性質を持つ可能性が高いと考えられた.

THSによる影響を拡大させないためには, 曝露元, つまりETSが付着した物の化学物質濃度を下げる必要があるが, その低減法については二次喫煙に比べ困難であると言われている^{6,20}. そこで, 対策法の一つとしては, 明らかにETSが付着した物, 例えば家具や壁紙等には不必要に接触しないことが重要と考える. また, 本研究における実験手法でニコチンやTSNAを振とう抽出したことからも, 水洗いできるもの, 例えば衣類や布製品等に吸着した物質については, 洗濯することで, 化学物質濃度を低減できると考えられた^{9,20}.

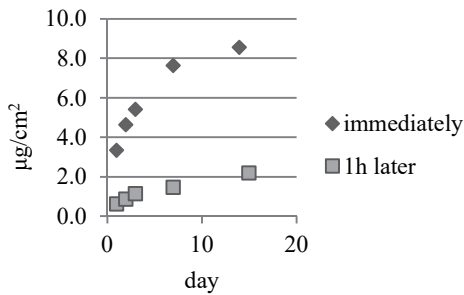


Fig. 6. Adsorption Amount of Nicotine in Denim

The denim was contact with fur immediately or one hour later after adsorption of sidestream smoke.

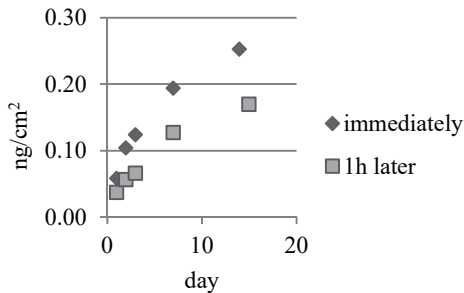


Fig. 7. Adsorption Amount of NNK in Denim

The denim was contact with fur immediately or one hour later after adsorption of sidestream smoke.

3. 再放散に関する実験結果

再放散物質について, 副流煙吸着直後から20°Cで再放散させた場合(①), 副流煙吸着1時間後から20°Cで再放散させた場合(②)及び副流煙吸着1時間後から40°Cで再放散させた場合(③)の合計濃度をFig. 8に, 各物質または物質群の割合をFig. 9に示す. Fig. 9には副流煙中の化学物質濃度割合も併せて示した. VOC及びアルデヒド類濃度の定量下限値は, 空気採取用バッグ中のブランク値を考慮し, 各物質10 ng/バッグ, TSNAについてはバッグブランクが検出されなかったため, 抽出溶液濃度の定量下限値より算出し, 0.06 ng/バッグを定量下限値とした.

また, 各試験体における物質濃度及び物質割合については, 副流煙の曝露回数やチャンバー内の換気状態によってばらつきが見られたが, おおむね類似した結果が得られた

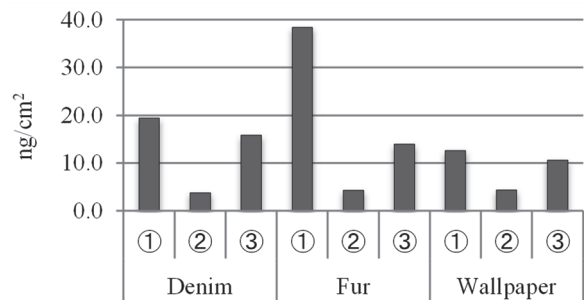


Fig. 8. Concentration of the Chemicals Re-emitted from Fabrics and Wallpaper

The sampling time and temperature of the re-emitted chemicals are ①: 0 to 1 hour after sidestream smoke adsorption at 20°C, ②: 1 to 2 hours at 20°C, and ③: 1 to 2 hours at 40°C.

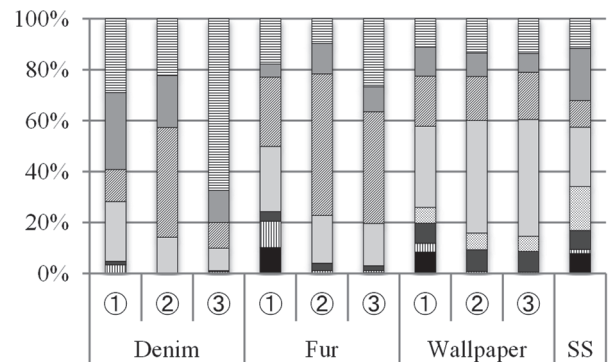


Fig. 9. Composition of the Chemicals Re-emitted from Fabrics and Wallpaper

SS: Sidestream.

3-EP: 3-Ethenylpyridine.

VOCs: The Sum of the VOCs except Nicotine, 3-EP, Toluene and Isoprene.

Aldehydes: The Sum of the Aldehydes and Acetone except Formaldehyde and Acetaldehyde.

① to ③ refer to the explanation of Fig. 8.

ため、Fig. 8及びFig. 9には1回測定の結果を示した。

再放散物質について、VOC及びアルデヒド類のべ32物質が検出され、TSNAは全て定量下限値未満であった。それぞれの検出物質数は、デニムの①が28物質、②が11物質、③が21物質、ファアの①が29物質、②が13物質、③が24物質、壁紙の①が25物質、②が17物質、③が23物質で、いずれの試験体においても①が最も多く、次いで③、②の順であった。

合計濃度についても検出物質数と同様、全ての試験体において①が高く、1時間放散させた後からの再放散については、温度が高い③の方が②よりも2~3倍以上高くなることが分かった。①の結果について、各試験体を比べると、ファアの濃度が最も高く、デニムの約2倍、壁紙の約3倍高濃度であった。しかし、1時間放散後の②の各濃度は3.8~4.4 ng/cm²、③は10.6~15.8 ng/cm²で、副流煙吸着から時間が経過すると試験体間の濃度差が小さくなることが分かった。

各試験体における物質濃度の割合については、デニム①ではアセトアルデヒドが最も多く、合計濃度の約3割(5.8 ng/cm²)を占めることが分かった。一方、デニム②ではホルムアルデヒドが約4割(1.6 ng/cm²)、デニム③ではアルデヒド類の一つであるノナールが約3割(6.2 ng/cm²)で、再放散時の条件によって主要物質が変化することが分かった。ニコチン及び3-エテニルピリジンを含むVOCについても、デニム①では約3割を占めていたが、デニム②及び③は約1割で、物質濃度の割合に変化が見られた。

ファアについては、主要物質はいずれもホルムアルデヒド(①10.4 ng/cm²、②2.4 ng/cm²、③6.1 ng/cm²)でデニムのような違いは見られなかった。VOCの割合については、①では約5割と多かったが、②及び③では約2割に減少した。

壁紙についても、主要物質はいずれもホルムアルデヒド(①2.5 ng/cm²、②0.7 ng/cm²、③2.0 ng/cm²)で、再放散条件による変化は見られなかった。VOCについても、①でニコチン及び3-エテニルピリジンの再放散が見られた以外は各条件とも約6割を占めており、条件が変わっても、物質濃度割合はあまり変化しなかった。

なお、副流煙については、アセトアルデヒド、イソプレン、ホルムアルデヒド、ニコチン、アセトン及びトルエン濃度が高かった。特にアセトアルデヒド及びイソプレンは、合計濃度のそれぞれ約2割を占めており、各試験体における再放散物質の割合と異なっていた。しかし、ニコチン：VOC：アルデヒド類で大まかに分けると、約1：5：4となり、壁紙①の割合が類似することが分かった。

以上の結果から、副流煙吸着直後の再放散物質濃度が高いこと、副流煙吸着から1時間経過しても再放散が確認されること、布等の素材によって放散量が変わること、同じ素材であっても再放散の条件により主要物質や物質濃度の割合が変化すること、TSNAの再放散は確認されないこと等が分かった。

再放散物質はVOC及びアルデヒド類のべ32物質が検出

され、このうち13物質はアメリカ食品医薬品局が示す、たばこ煙に含まれる有害または潜在的有害物質(HPHCs)で、そのうち8物質はIARCグループ1または2Bに区分される物質¹⁸⁾、5物質は特定悪臭物質²¹⁾であった。なかでも、IARCグループ1のホルムアルデヒドについては、ファア、壁紙及びデニム②の主要物質であり、副流煙吸着から1時間後でも再放散されることから吸入曝露への注意が必要である。

また、副流煙と再放散物質の濃度割合は異なっていたが、比較的、壁紙①の結果が類似することが分かった。これは、壁紙からの再放散物質合計濃度がデニム及びファアに比べ低かったことから、壁紙の表面に吸着した物質が保持されにくく、吸着した副流煙がそのまま再放散されたと考えられた。壁紙などの表面には汚れ防止加工等が施されていたため、たばこ関連物質が吸着しにくかったと推測された。しかし、再放散が見られなかった物質、例えばTSNAは、副流煙を繰り返し曝露させた場合、壁紙への吸着量が増加することが確認されている(実験データは示していない)。したがって、揮発性の低いあるいは吸着しやすい物質については、壁紙のように表面加工された素材においても徐々に蓄積されていくと考えられる。

ま と め

THSの曝露経路については、二次喫煙がETSの吸入曝露であることに對し、吸入、摂取、皮膚吸収の経路を持つことが知られている²²⁾。これは、THSが「残留」、「再放散」及び「再浮遊」という性質を持つためである。この3つと「反応」という性質を持つTHSであるが、我々は「接触による移動」という性質をも有すると考え、布2種を試験体とし、これらに吸着させたたばこ関連物質が、別の試験体に移動するかについての基礎的な実験を行った。その結果、ニコチン及びTSNA4種の移動が確認され、THSが「接触による移動」という性質を持つ可能性が示唆された。特にTHSで危惧されるTSNAについては、再放散に関する実験では検出されなかったが、移動に関する実験で他の布に移動すること、接触時間が長いほど濃度が増加することが確認された。

また、再放散について、副流煙吸着直後からの時間経過による再放散物質の変化や温度による再放散物質への影響を調査した結果、吸着直後からの再放散量及び物質数が多いこと、吸着1時間後からも再放散が見られること、再放散時の温度が高い方が再放散量及び物質数が増加すること等が分かった。特に、アルデヒド類の再放散速度は遅いため、ホルムアルデヒドなどの有害物質が長時間にわたって再放散され続ける可能性が高く、吸入曝露への注意が必要である。

文 献

- 1) Winickoff, J. P., Friebely, J., Tanski, S. E., et al. : *Pediatrics*, 123(1), e74-79, 2009.

- 2) Matt, G. E., Quintana, P. J. E., Destailats, H., *et al.* : *Environ. Health Perspect.*, **119**(9), 1218-1226, 2011.
- 3) Hang, B., Wang, P., Zhao, Y., *et al.* : *Int. J. Mol. Sci.*, **18**(932), doi 10.3390, 2017.
- 4) Jacob III, P., Benowitz, N. L., Destailats, H., *et al.* : *Chem. Res. Toxicol.*, **30**, 270-294, 2017.
- 5) Singer, B. C., Hodgson, A. T., Nazaroff, W. W. : *Atmos. Environ.*, **37**, 5551-5561, 2003.
- 6) Matt, G. E., Quintana, P. J. E., Zakarian, J. M., *et al.* : *Tob. Control*, **20**(e1), doi 10.1136, 2011.
- 7) Matt, G. E., Fortmann, A. L., Quintana, P. J. E., *et al.* : *Tob. Control*, **22**, 201-207, 2013.
- 8) Matt, G. E., Hoh, E., Quintana, P. J. E., *et al.* : *Environ. Res.*, **168**, 206-210, 2019.
- 9) Bahl, V., Jacob III, P., Havel, C., *et al.* : *PLoS ONE*, **10**(10), e108258, 2014.
- 10) Sleiman, M., Gundel, L. A., Pankow, J. F., *et al.* : *PNAS*, **107**(15), 6576-6581, 2010.
- 11) Ramirez, N., Özel, M. Z., Lewis, A. C., *et al.* : *Environ. Int.*, **71**, 139-147, 2014.
- 12) Ueta, I., Saito, Y., Teraoka, K., *et al.* : *Anal. Sci.*, **26**, 569-574, 2010.
- 13) Chien, Y. C., Chang, C. P., Liu, Z. Z. : *J. Hazard. Mater.* **193**, 139-148, 2011.
- 14) 大貫 文, 斎藤育江, 保坂三継, 他 : 東京健安研七 年 報, **65**, 209-215, 2014.
- 15) Licina, D., Nazaroff, W. W. : *Indoor Air*, **28**, 404-414, 2018.
- 16) Qian, J., Ferro, A. R., Fowler, K. R. : *J. Air & Waste. Manag. Assoc.*, **58**, 502-516, 2008.
- 17) Becquemain, M. H., Bertholon, J. F., Bentayeb, M., *et al.* : *Tob. Control*, **19**(4), 347-348, 2010.
- 18) 厚生労働省 喫煙の健康影響に関する検討会 : 喫煙の健康影響に関する検討会報告書, 55-81, 平成28年8月.
- 19) Northrup, T. F., Khan, A. M., Jacob III, P., *et al.* : *Tob. Control*, **25**(6), 619-623, 2016.
- 20) Canterbury District Health Board : Third-hand tobacco smoke exposure and implications for public health, 2016.
- 21) 環境省 : 悪臭防止法, 昭和41年6月1日法律第91号.
- 22) Ferrante, G., Simoni, M., Cibella, F., *et al.* : *Monaldi Arch. Chest Dis.*, **79**(1), 38-43, 2013.

Exposure to Nicotine and Nitrosoamines from Thirdhand Smoke : Transfer by Contact and Re-emissionAya ONUKI ^a, Ikue SAITO ^a, Hiroyuki KONISHI ^a, and Takako MORIYASU ^a

Thirdhand smoke, a type of passive smoking, is characterized by four R's: tobacco chemical remain, react, re-emit, and resuspension. In addition to these characteristics, thirdhand smoke may be transferred by contact. Basic experiments were conducted to evaluate this hypothesis. Thirdhand smoke re-emissions were also investigated through the analysis of the influence of time and temperature after sidestream smoke adsorption. For transfer by contact experiments, we measured the adsorption amounts of nicotine and tobacco-specific nitrosamine (TSNA) on clean fabrics after they were in contact with fabrics adsorbed with sidestream smoke. The re-emission experiments were performed by exposing fabric and wallpaper samples to sidestream smoke for adsorption; the samples were placed in an air collection bag for 1 hour, sealed and allowed to stand at either 20°C or 40°C. Next, the concentration of chemicals in the bag was measured. As a result of measuring the amount of adsorption, nicotine was detected 10 min after contact, and 4-(methylnitrosamino)-1-(3-pyridyl)-1-butanone, a type of TSNA, was detected 1 h after contact from clean fabrics. The adsorption amount increased with the contact time. As a result of measuring the re-emitted chemicals, it was confirmed that the chemical concentration and number of chemicals were high when the temperature increased immediately after sidestream smoke adsorption and at the time of re-dissipation. These results suggest that thirdhand smoke may have the property of transferred by contact in addition to the four Rs.

Keywords: thirdhand smoke, transfer, re-emit, nicotine, tobacco specific nitrosamine

^a Tokyo Metropolitan Institute of Public Health,
3-24-1, Hyakunin-cho, Shinjuku-ku, Tokyo 169-0073, Japan