

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 26 年 5 月 28 日現在

機関番号：13301

研究種目：基盤研究(A)

研究期間：2009～2013

課題番号：21256001

研究課題名(和文) 環日本海域の有害性多環芳香族炭化水素類の発生・輸送・反応と曝露の国際比較

研究課題名(英文) International Comparison of Emission, Transport, Secondary Formation and Exposure of Toxic Polycyclic Aromatic Hydrocarbons in Pan-Japan Sea Region

研究代表者

早川 和一 (Hayakawa, Kazuichi)

金沢大学・薬学系・教授

研究者番号：40115267

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 37,200,000円、(間接経費) 11,160,000円

研究成果の概要(和文)：東アジアの大気質は急激変化している。本研究では、強毒性でPM2.5の主要成分であるPAH, NPAHに焦点を合わせて、これ等とその反応(代謝)物の高性能分析法を開発し、実試料分析を行った。1990年代後半から日本では自動車排ガス規制の効果により大気中PAH, NPAH濃度が大幅に減少したが、中国やロシアでは濃度が増加傾向を示す都市もあった。測定結果から、この地域におけるPAHの排出インベントリと大気化学輸送モデルを開発し、長距離輸送も再現できた。また大気輸送中のPAH, NPAH二次生成物を同定し、これらと代謝物の中に変異原性や内分泌攪乱作用など、強い生物活性を示すものがある事を明らかにした。

研究成果の概要(英文)：East Asian countries surrounding Japan Sea, such as Japan, China, Korea and Russia, have shown significant change of atmospheric conditions with fast industrial development. Atmospheric behaviors of carcinogenic polycyclic aromatic hydrocarbon (PAH) and nitropolycyclic aromatic hydrocarbon (NPAH) were studied in this area. Their atmospheric concentrations decreased in Japanese cities by the effective countermeasures against automobile exhaust. However, several cities in China and Russia showed the increasing tendency of the concentrations. By using the analytical results, the emission inventory and the chemical transport model were newly developed. In the atmosphere, on the other hand, several oxidized derivatives of PAHs and NPAHs formed through secondary formation were identified. Several compound of metabolites and secondary formed derivatives of PAHs and NPAHs showed strong biological activities such as mutagenicity and endocrine disruption.

研究分野：医歯薬学A

科研費の分科・細目：環境系薬学

キーワード：日本海域 多環芳香族炭化水素 発生源 長距離輸送 曝露 ニトロ多環芳香族炭化水素 分析法 長距離輸送

1. 研究開始当初の背景

産業革命以後、世界のエネルギー消費量は飛躍的に増加した。先進国では主体は石炭から石油へ移行したが、発展途上国では依然石炭への依存が高い。また自動車は、主要交通輸送手段としてガソリンや軽油を大量消費している。これら化石燃料の大量消費は深刻な大気汚染を招き、日本では肺がんが死亡原因のトップとなり、中国では若年層に喘息が増加するなど、その対策は世界共通の重要課題である。

化石燃料の燃焼で大気中に放出される代表的な有害化学物質にベンゾ[a]ピレンに代表される発がん性の多環芳香族炭化水素(PAH)がある。PAHは、燃焼時に空気や燃料中の窒素と反応して、より毒性が強いジニトロピレンなどのニトロ多環芳香族炭化水素(NPAH)を生成するだけでなく、発生後に大気中で窒素酸化物と反応してNPAHを二次生成することもある。

日本、中国、韓国、極東ロシアなどから構成される東アジアは、世界の1/4以上の人口を擁し、一次エネルギー消費量も世界の1/4以上を占め、経済産業が急速に発展している。しかし、国によってエネルギーの種類や交通事情、生活様式などは大きく異なるため、大気汚染の内容も国や都市による違いが大きいと推定された。大気汚染物質のうち、硫黄酸化物や窒素酸化物については、国際的な共同体制で調査研究が行われてきたが、上述のPAHやNPAHなどの有害有機化合物については、高感度な分析方法がないことが障害になって、これまで手が付けられなかった。

代表者らは発がん性/変異原性を有するものが多い上述のPAH、NPAHについて高感度分析法を開発してきた。とりわけ毒性は強いものの環境中濃度が低く良い分析法がなかったNPAHについて、HPLC-化学発光検出法を用いた超高感度分析法を世界に先駆けて開発した。

開発した方法を駆使して1990年代から国内の4都市で大気中PAH、NPAHを追跡し、次のことを明らかにした：1) 汚染の現状とその主要因が自動車、主としてディーゼル車である。2) 粗大粒子(7 μm 以上)と微小粒子(1.1 μm 以下)に二極分布する都市大気粉塵のうち、PAH、NPAHは後者に局在し、肺胞まで侵入しやすい存在様態である。次いで2000年代当初から東アジア諸国(日本、中国、韓国、極東ロシア)の国際共同研究体制を組織して、大気汚染が深刻なこの地域の10都市でエアロゾルを継続捕集し、PAH、NPAHの汚染実態の調査研究を開始した。そして本研究課題の開始までに、次のことを明らかにした：3) 中国のPAH、NPAH濃度は著しく高く、上記4カ国の中で最も低い日本の20~300倍にも達する。4) [NPAH]/[PAH]比の違いから、日本の主要発生源は自動車(特にディーゼル車)であるが、中国の主要発生源は石炭燃焼施設(暖房、発電所、工場など)と判明した。5) 能登半島先端で大気を捕集して分析した結果、冬季

に、中国からPAHがわが国まで長距離輸送されることが証明できた。

2. 研究の目的

東アジア諸国、とりわけ中国や極東ロシアは目覚ましい経済産業発展を遂げつつあるが、大気汚染が著しい中国では、最近、古い暖房施設や工場の煙突撤去など厳しい環境対策が講じられ、北京オリンピックを契機に一段と加速している。一方、自動車の排ガス対策技術の進歩が著しいだけでなく、自動車交通の規制も進められている。このため東アジア諸国の大気汚染の状況は急速に変化していると推定される。今後のこの地域の都市大気の推移を予測し、適切な対策を講じるためには、その変化状況を正確に把握する必要がある。また、PAH、NPAHの反応や曝露・毒性発現については、まだ全容が明らかになっていないわけではない。そこで、上述の研究背景を踏まえ、本研究は東アジアのPAH、NPAH環境汚染と健康影響に関する次のことを目的に定める。

(1) 大気及び海洋・河川中のPAH、NPAHの動態並びにそれ等のヒト・動物曝露・代謝活性化研究に必要な高性能分析法の開発を引き続き継続し、開発した分析法を以下の研究に適用する。

(2) 国際共同研究体制で、東アジアの主要都市及びバックグラウンド地点で大気を継続捕集し、PAH、NPAH汚染の経過と特徴を他地域の都市とも比較して明らかにする。さらに、東アジアの将来予測に必要なモデリング手法を開発する。

(3) 中国都市域並びに能登半島先端において、黄砂との関連も視野に入れながら、PAH、NPAHの大気輸送とその間の二次反応を解析する。

PAH、NPAHの反応(代謝)生成物であるニトロ体、水酸化体及びキノン体の環境中濃度を明らかにするとともに、新たに獲得する変異原性、内分泌攪乱作用、活性酸素産生作用を明らかにする。

3. 研究の方法

(1) 大気及び排出源

1) サンプルング：これまでの調査結果との比較ができるように、サンプルング地点はできるだけ同一の地点を継続。

・国内：金沢、東京、札幌、北九州。これらの都市は大気・海洋科学的に異なる特徴を有する。しかも、都市規模が大きく異なり、いずれも自動車が主要交通手段であるが、ディーゼル車の割合が異なり、工業、商業、観光など主要産業も異なる。東京以外は、環日本海域に位置する。また、能登半島は、国内の発生源の影響を受けずにアジア大陸からの輸送物質を捕集できる。

・ロシア：ウラジオストク。中国：北京、瀋陽、上海。韓国：釜山。これらの都市の主要エネルギー源は天然ガス、石炭或いは石油と大きく異なり、主要産業も異なる。

2) サンプルング方法：これまでの調査結果との比較ができるように、従来方法条件を継続。
・ 捕集装置はハイボリュームエアサンプラーに石英フィルターを装着。分粒目的にはアンダーセンエアサンプラー（5段以上）、またローボリュームエアサンプラー及びパーソナルサンプラーも使用。

・ 大気粉塵は、原則毎季節2週間ずつ、毎日フィルターを交換して連続捕集。

・ 排出源：モーターバイク及び自動車（ディーゼル車、ガソリン車）、シャーシダイナモを使用して所定の方法で排ガス粉塵を捕集。

(2) 海洋及び河川

1) サンプルング：国内外研究機関（北海道大学、長崎大学、ロシア科学アカデミー極東支部、釜慶大学校）所属調査船、並びに篤志商業船（飛鳥）に採水装置を搭載して、日本海及び東シナ海の表層海水を10 L/地点ずつ採取。また、金沢市河川の表層水を採水。

2) 前処理：ガラスフィルター（0.4 μm）で粒子分画と溶液分画に分け、後者はさらにODSディスクに捕集した。これらを有機溶媒で抽出し、大気粉塵の場合と同様の方法で、洗浄してHPLC分析用の試料を得た。その他は、下記分析法参照。

(3) 分析

1) 抽出・精製方法：フィルターに捕集された粒子状成分とカートリッジに捕集されたガス状成分は、それぞれ超音波溶媒抽出又はソックスレー抽出により可溶性画分と不溶性画分（主として元素状炭素）とに分け、前者はさらに、アルカリ、酸洗浄を行ってクリーンアップ。

2) PAH、NPAH：代表者らが開発したPAH/NPAHの一斉分析法を使用して、NPAH20種類、PAH14種類を測定。

3) PAH水酸化体及びNPAH水酸化体：いずれも代表者らが開発した、2~5環PAH水酸化体のHPLC-蛍光検出法並びにニトロピレン水酸化体のLC-MS法を使用。これらの方法は、尿を用いたヒト曝露測定法としても使用。

4) PAHキノン体：開発中のHPLC-蛍光検出法並びにGC-MS法を完成させる。

5) 未知化合物の同定：LC-MS、GC-MSを組み合わせる。

4. 研究成果

(1) 環境試料中のPAH、NPAH及び反応（代謝）物の高性能分析法

これまでのHPLC-化学発光法では大気中の主要NPAHの一斉分析は可能だが、バックグラウンド地点における極低濃度NPAH、とりわけ大気輸送中の二次生成の追跡に可能な分析は不可能であった。そこで、従来の前処理及びHPLC条件を改良して、二次生成NPAHである2-nitropyrene、2-nitrofluorantheneと一次生成NPAHである1-nitropyreneの同時超高感度分析法を開発した。これにより、能

登半島先端でこれらの大気中濃度の変化を追跡できるようになった。さらに、pyreneの酸化体である1-hydroxypyrene並びにbenzo[a]pyreneの酸化体であるbenzo[a]pyrene-7, 10-quinoneにそれぞれ特異的なHPLC-化学発光法を開発し、これらの大気中濃度の測定を可能にした（文献、 、 、 21、27）。

(2) 都市大気中の動態

日本・金沢市の最近12年間の大気中PAH、NPAH濃度が大幅に減少していることを明らかにした。発生源メーカーである[6-benzo[a]pyrene]/[benzo[a]pyrene]濃度比も減少していることから、排出源としての自動車の寄与が小さくなっていることがわかった。その要因として、自動車排ガス規制の効果が最も大きいと考察できた。一方、中国やロシアの都市の中には、大気中PAH、NPAH濃度が増加傾向を示すところもあった（文献、 ）。

東南アジアの国々では都市の主要交通手段がモーターバイクであり、これによる都市大気汚染が深刻である。そこで、代表的なモーターバイク都市であるベトナム・ハノイで大気粉塵並びにモーターバイクからの排ガス粉塵を捕集してPAH、NPAHを分析した。その結果、単位排気量当たりのPAH、NPAH排出量を比較すると、モーターバイクの方が自動車1桁程度大きく、都市大気汚染に及ぼすモーターバイクの寄与が大きいことを明らかにした。さらに、その違いが、モーターバイクエンジンには粒子状物質や炭化水素、窒素酸化物等を軽減するための触媒が装着されていないことに起因することを初めて明らかにし、有効対策への大きな情報を提供できた（文献、 ）。一方、タイ・チェンマイ市内も大気汚染が激しいことで知られており、その要因が自動車と疑われていた。しかし、市内大気及び山岳民住居の室内空気を捕集・分析した結果、汚染の主要因が周辺地域の焼畑であり、山岳民は室内で炊事から出るPAH、NPAHに高濃度に曝露されている事実も明らかにし、この地域の肺がん死亡率が高い原因に繋がる有用な知見を提供できた。さらにアフリカ・カイロ市内の大気粉塵を捕集・分析した結果、カイロのPAH、NPAH汚染レベルは中国の都市より低いが日本の都市より高かった。しかし、粒子状物質濃度は中国の都市に匹敵する高いレベルであり、その要因としてサハラ砂漠からの砂塵が考えられた。このように、地域によってPAH、NPAH大気汚染レベルと発生源は大きく異なり、適切な対策はそれぞれに異なることがわかった。

(3) 大気動態モデリング

北東アジアにおけるPAHの排出インベントリ（REAS-POP）および大気化学輸送モデル（RAQM2-POP）を開発した。また、発生源としての中国（北京）と越境大気汚染の影響を受ける日本（能登）のPAHsの観測値と

計算値の時間変動とがおおむね一致し、モデルシミュレーションは PAH の変動を再現しているものと考えられた。さらに、能登半島先端における大気中 benzo[a]pyrene 濃度についてモデル解析を行ったところ、冬季～春季には中国北部～中部で排出されたバイオ燃料燃焼と石炭燃焼由来の寄与が支配的になり、冬季の PAH の日本への越境大気汚染の重要性が示された(文献、)。

(4) 長距離輸送と二次反応

能登半島先端で継続捕集した大気粉塵について、開発した NPAH 超高感度分析法を適用して、1-、2-nitropyrene 及び 2-nitrofluoranthene を追跡した結果、これらの組成比が発生源の中国都市大気中の組成比と近似することから、2-nitropyrene 及び 2-nitrofluoranthene は中国の都市域で発生直後に二次生成し、そのまま 1-nitropyrene と同様に粉塵に付着した状態で日本に長距離輸送されていると考えられた。また、大気中光反応により 1-nitropyrene から hydroxynitropyrene が、2-nitrofluoranthene から hydroxynitrofluoranthene がそれぞれ二次生成すること、各種 PAH から PAH キノン体が二次生成することを明らかにした(文献、 、25)。

(5) ヒト曝露と毒性

タクシー運転手の尿中 hydroxynitropyren 抱合体などの NPAH 代謝物の濃度が高いことから、NPAH は自動車排出の良いマーカーであることを裏付けた。また、自動車排出粉塵、石炭燃焼粉塵、薪燃焼粉塵の抽出物について、直接、間接変異原性が PAH、NPAH 組成と関連すること、中国・北京の大気の方が日本・金沢の大気より AhR 活性化能が高く、両者の PAH、NPAH 濃度の違いに由来することを明らかにした。さらに、hydroxynitropyrene に比較的強い変異原性と抗エストロゲン作用があること、NPAH キノン体の中にも比較的強い抗エストロゲン作用を示すものがあることなどを明らかにした(文献、 、22、23)。

5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文](計34件)

Pham, C. T., Tang, N., Toriba A., Hayakawa, K., Polycyclic aromatic hydrocarbons and nitropolycyclic aromatic hydrocarbons in soil and atmospheric particles at a traffic site in Hanoi, Vietnam, *Polycycl. Aromat. Comp.* in press. 査読有

DOI: 未定

Tang, N., Sato, K., Tokuda, T., Tatematsu, M., Hama, H., Suematsu, T., Kameda, T., Toriba, A., Hayakawa, K., Factors affecting atmospheric 1-, 2-nitropyrenes and 2-nitrofluoranthene in winter at Noto peninsula, a remote background site, Japan.

Chemosphere, in press. 査読有

DOI: 未定

Li, Y., Tang, N., Inagaki, F., Mukai, C., Hayakawa, K., Characterization and functionality of imidazolium ionic liquids modified magnetic nanoparticles. *J. Chem.*, Article ID 861021, 7page (2013). 査読有

DOI: 10.1155/2013/861021

Chondo, Y., Ying, Li., Makino, F., Tang, N., Toriba, A., Kameda, T., Hayakawa, K., Determination of selected nitropolycyclic aromatic hydrocarbons in waters samples. *Chem. Pharm. Bull.*, **61** (12), 1269-1274 (2013). 査読有

DOI: 10.1248/cpb.c13-00547

Inomata, Y., Kajino, M., Sato, K., Ohara, T., Kurokawa, J., Ueda, H., Tang, N., Hayakawa, K., Akimoto, H., Source contribution analysis of surface particulate polycyclic aromatic hydrocarbon concentrations in Northeastern Asia by source-receptor relationships. *Environ. Pollut.*, **182**, 324-334 (2013). 査読有

DOI: 10.1016/j.envpol.2013.07.020

唐 寧, 伊崎陽彦, 徳田貴裕, 季 若男, 薫 麗君, 呉 慶, 周 志俊, 黄 蓉, 林 振宇, 亀田貴之, 鳥羽 陽, 鳥 正之, 早川和一, 中国の瀋陽, 上海及び福州における大気中多環芳香族炭化水素類の地域間差. 分析化学, **62** (4), 267-273 (2013). 査読有

DOI: 10.2116/bunsekikagaku.62.267

Chizhova, T., Hayakawa, K., Tischenko, P. Nakase, H., Koudryashova, Yu., Distribution of PAHs in the northwestern part of the Japan Sea. *Deep-Sea Research II*, **86-87**, 19-24 (2013). 査読有

DOI: 10.1016/j.dsr2.2012.07.042

Miller-Schulze, JP., Paulsen, M., Kameda, T., Toriba, A., Tang, N., Tamura, K., Dong, L., Zhang, X., Hayakawa, K., Yost, MG., Simpson, CD., Evaluation of urinary metabolites of 1-nitropyrene as biomarkers for exposure to diesel exhaust in taxi drivers of Shenyang, China. *J. Expo Sci. Environ. Epidemiol.*, **23** (2), 170-175 (2013). 査読有

DOI: 10.1038/jes.2012.40.

Pham, C. T., Kameda, T., Toriba, A., Hayakawa, K., Polycyclic atmospheric polycyclic hydrocarbons and nitropolycyclic aromatic hydrocarbons in particulates emitted by motorcycles. *Environ. Pollut.*, **183** (1), 175-183 (2013). 査読有

DOI: 10.1016/j.envpol.2013.01.003

Pham, C. T., Kameda, T., Toriba, A., Tang, N., Hayakawa, K., Characteristics of atmospheric polycyclic aromatic hydrocarbons and nitropolycyclic aromatic hydrocarbons in Hanoi-Vietnam, as a typical motorbike city. *Polycycl. Aromat. Comp.*, **32** (2), 296-312

- (2012). 査読有
DOI: 10.1080/10406638.2012.679015
Kameda, T., Akiyama, A., Toriba, A., Tang, N., Hayakawa, K., Atmospheric formation of hydroxynitrofluoranthene from photochemical reactions of 2-nitrofluoranthene. *Polycycl. Aromat. Comp.*, **32**, 177-187 (2012). 査読有
DOI: 10.1080/10406638.2011.654307
Inomata, Y., Kajino, M., Sato, K., Ohara, T., Kurokawa, J., Ueda, H., Tang, N., Hayakawa, K., Ohizumi, T., Akimoto, H., Emission and transport of particulate PAHs in Northeast Asia. *Environ. Sci. Technol.*, **46**(9), 4941-4949 (2012). 査読有
DOI: 10.1021/es300391w
Li, R., Kameda, T., Toriba, A., Hayakawa, K., Lin, J.-M., Determination of benzo[a]pyrene-7, 10-quinone in airborne particulates by using a chemiluminescence reaction of hydrogen peroxide and hydrosulfite. *Anal. Chem.*, **84** (7), 3215-3221 (2012). 査読有
DOI: 10.1021/ac2032063
濱 寛貴, 徳田貴裕, 伊崎陽彦, 大野友子, 渡辺有梨, 神田哲雄, 唐 寧, 亀田貴之, 鳥羽 陽, 早川和一, 金沢市内における大気粉塵中多環芳香族炭化水素類および二ト口多環芳香族炭化水素類の最近 12 年間の変遷. 大気環境学会誌, **47** (1), 1-8 (2012). 査読有
https://www.jstage.jst.go.jp/article/taiki/47/1/47_1/pdf
Tang, N., Tokuda, T., Izzaki, A., Tamura, K., Ji, R., Zhang, X., Dong, L., Kameda, T., Toriba, A., Hayakawa, K., Recent change in atmospheric polycyclic aromatic hydrocarbons (PAHs) and nitropolycyclic aromatic hydrocarbons (NPAHs) in Shenyang, China. *Environ. Forensics*, **12**, 342-348 (2011). 査読有
DOI: 10.1080/15275922.2011.622347
Hayakawa, K., Tang, N., Sato, K., Izaki, A., Tatematsu, M., Hama, H., Li, Y., Kameda, T., Toriba, A., Development of HPLC determination method for trace levels of 1-, 2-Nitropyrenes and 2-Nitrofluoranthene in airborne particulates and its application to samples collected at Noto peninsula. *Asian J. Atmos. Environ.*, **5** (3), 146-151 (2011). 査読有
http://asianjae.org/browse_sub.html?class_no2=24
Kameda, T., Akiyama, A., Yoshita, M., Tachikawa, C., Toriba, A., Tang, N., Hayakawa, K., Mutagenicities and endocrine-disrupting activities of 1-hydroxy-2-nitropyrene and 1-hydroxy-5-nitropyrene. *J. Health Sci.*, **57** (4), 372-377 (2011). 査読有
DOI: 10.1248/jhs.57.372
- Hayakawa, K., Bekki, K., Yoshita, M., Tachikawa, C., Kameda, T., Tang, N., Toriba, A., Hosoi, S., Estrogenic/antiestrogenic activities of quinoid polycyclic aromatic hydrocarbons. *J. Health Sci.*, **57** (3), 274-280 (2011). 査読有
DOI: 10.1248/jhs.57.274
Kameda, T., Akiyama, A., Toriba, A., Tang, N., Hayakawa, K., Atmospheric formation of hydroxynitropyrenes from a photochemical reaction of particle-associated 1-nitropyrene. *Environ. Sci. Technol.*, **45** (8), 3325-3332 (2011). 査読有
DOI: 10.1021/es1042172
戸次加奈江, 滝上英孝, 鈴木 剛, 唐 寧, 鳥羽 陽, 亀田貴之, 早川和一, 中国・北京及び日本・金沢の大気を示す AhR 活性化作用への PAH 類及びダイオキシン類の寄与. 環境化学, **21** (1), 27-33 (2011). 査読有
<http://www.j-ec.or.jp/publication/journal/vol21.html>
- 21 片山裕規, 後藤知子, 亀田貴之, 唐 寧, 松木 篤, 鳥羽 陽, 早川和一, 日本および中国における大気粒子中多環芳香族炭化水素キノンの観測 - 濃度レベルの把握と発生要因の検討 -. 大気環境学会誌, **46** (1), 20-29 (2011). 査読有 DOI: 10.11298/taiki.46.20
- 22 Yang, X.-Y., Igarashi, K., Tang, N., Lin, J.-M., Wang, W., Kameda, T., Toriba, A., Hayakawa, K., Indirect- and direct-acting mutagenicity of diesel, coal and wood burning-derived particulates and contribution of polycyclic aromatic hydrocarbons and nitropolycyclic aromatic hydrocarbons. *Mutation Res.*, **695** (1-2), 29-34 (2010). 査読有
DOI: 10.1016/j.mrgentox.2009.10.010
- 23 Miller-Schlze, J. P., Toriba, A., Tang, N., Hayakawa, K., Tamura, K., Dong, L., Simpson, C. D., Exposures to particulate air pollution and nitro-polycyclic aromatic hydrocarbons among taxi drivers in Shenyang, China. *Environ. Sci. Technol.*, **44** (1), 216-221 (2010). 査読有
DOI: 10.1021/es802392u
- 24 Tang, N., Araki, Y., Tamura, K., Dong, L., Zhang, X., Lu, Q., Ji, R., Kameda, T., Toriba, A., Hayakawa, K., Distribution and source of atmospheric polycyclic aromatic hydrocarbons and nitropolycyclic aromatic hydrocarbons in Tieling city, Liaoning province, a typical local city in northeast China. *Asian J. Atmos. Environ.*, **3**(1), 52-58 (2009). 査読有
DOI: 10.5572/ajae.2009.3.1.052
- 25 Kameda, T., Goto, T., Toriba, A., Tang, N., Hayakawa, K., Determination of airborne particle-associated benz[a]anthracene-7, 12-quinone using high-performance liquid

- chromatography with in-line reduction and fluorescence detection. *J. Chromatogr. A*, **1216** (39), 6758-6761 (2009). 査読有
DOI: 10.1016/j.chroma.2009.08.009
- 26 Yang, X.-Y., Yamada, M., Tang, N., Lin, J.-M., Wang, W., Kameda, T., Toriba, A., Hayakawa, K., Long-range transport of fluoride in East Asia monitored at Noto Peninsula, Japan. *Sci. Total Environ.*, **407** (16), 4681-4686 (2009). 査読有
DOI: 10.1016/j.scitotenv.2009.05.005
- 27 Ohno, T., Toriba, A., Kameda, T., Tang, N., Hayakawa, K., Determination of 1-nitropyrene in low volume ambient air samples by high-performance liquid chromatography with fluorescence detection. *J. Chromatogr. A*, **1216** (21), 4625-4628 (2009). 査読有
DOI: 10.1016/j.chroma.2009.03.070

(他7編)

[学会発表](計92件)

Chuesaard, T., Influence of biomass burning on the levels of atmospheric polycyclic aromatic hydrocarbons and their nitrated derivatives in Chiang Mai, Thailand. 2nd Annual meeting of the international society of exposure science (ISES2012), 2012. 10. 28-11. 2, Westin Seattle.

Inomata, Y., Newly developed emission inventory, REAS-POP: particulate PAHs in Northeast Asia. Third international workshop on emission Inventory in Asia, 2012. 2. 24-25, 三好記念ホール.

Hayakawa, K., Change of air pollution in Japan during last 14 years from view point of polycyclic aromatic hydrocarbons and nitropolycyclic aromatic hydrocarbons. The 14th Beijing Conference and Exhibition on Instrumental Analysis (BCEIA2011), 2011.10. 12-15, Beijing Exhibition Center.

Kameda, T., Atmospheric formation of hydroxynitrofluoranthene from a photochemical reaction of particle-associated 2-nitrofluoranthene. 23rd International Symposium on Polycyclic Aromatic Compounds (ISPAC 23), 2011. 9. 4-8, University of Munster.

Hayakawa, K., Change of atmospheric polycyclic aromatic hydrocarbons and nitropolycyclic aromatic hydrocarbons in last 12 years of Kanazawa. International Network of Environmental Forensics (INEF) Conference, 2011. 7. 24-27, St John's College.

Hayakawa, K., Determination of atmospheric polycyclic aromatic hydrocarbons/nitropolycyclic aromatic hydrocarbons in East Asia and its long-range transport to Japan. IUPAC International

Congress on Analytical Sciences 2011 (ICAS 2011), 2011.5.22-26, Kyoto International Conference Center.

Pham, C. T., Polycyclic aromatic hydrocarbons and nitropolycyclic aromatic hydrocarbons in urban air particulates of Hanoi capital – Vietnam. The 52nd Meeting of Korean Society for Atmospheric Environment (2011), 2011. 5. 12-14, National Institute of Environmental Research.

Hayakawa, K., Atmospheric pollution of polycyclic aromatic hydrocarbons and nitropolycyclic aromatic hydrocarbons in East Asia. 2010 International Chemical Congress of Pacific Basin Societies, 2010.12.15-20, Hawaii Convention Center.

Hayakawa, K., Behaviors of polycyclic aromatic hydrocarbons in East Asia. The 4th International Symposium on Environment of Rim of the Japan/East Sea. The 4th International Symposium on Environment of Rim of the Japan/East Sea, 2010. 10. 18-19, Seogwipo KAL Hotel.

Hayakawa, K., Polycyclic aromatic hydrocarbons and metabolites: determination methods, atmospheric behavior and human exposure in East Asia. BCEIA 2009, 2009. 11. 25-28, Beijing Exhibition Center.

Tang, N., Recent change in contributors to atmospheric polycyclic aromatic hydrocarbons and nitropolycyclic aromatic hydrocarbons in Shenyang. China. International Network of Environmental Forensics Conference 2009 in Calgary, 2009. 8. 30-31, California Polytechnic State University.

(他国際学会11件、国内学会70件)

6. 研究組織

(1) 研究代表者

早川 和一 (HAYAKAWA, Kazuichi)
金沢大学・薬学系・教授
研究者番号：40115267

(2) 研究分担者

鳥羽 陽 (TORIBA, Akira)
金沢大学・薬学系・准教授
研究者番号：50313680

亀田 貴之 (KAMEDA, Takayuki)
京都大学・大学院エネルギー科学研究科・准教授
研究者番号：50398426

唐 寧 (TANG, Ning)
金沢大学・薬学系・助教
研究者番号：90372490