

## 東アジアの有害大気汚染

—多環芳香族炭化水素とニトロ多環芳香族炭化水素—

東アジア地域では、急速な産業発展に伴って、環境問題も深刻化している。本稿では、筆者（早川）が拠点リーダーを務め平成 14～18 年度にわたって実施した文部科学省 21 世紀 COE プログラム「環日本海域の環境計測と長期・短期変動予測」の研究成果を含め、東アジアの有害大気汚染物質としてクローズアップされている多環芳香族炭化水素とニトロ多環芳香族炭化水素に焦点を合わせて、分析化学研究の現状を紹介し、今後の課題について展望する。

早川 和一，唐 寧，鳥 羽 陽，亀田 貴之

## 1 はじめに

産業革命は人類に生活の豊かさと利便さ、快適さをもたらし、世界の人口はそれ以後の 300 年間で 10 倍に増加して、65 億人（2007 年 12 月現在）を超えている。特に日本、中国、韓国、北朝鮮にロシアを加えた環日本海諸国は、世界人口の 26% 余を擁し、世界の一次エネルギーの 26% 余を消費する、世界で最も変貌している地域である。しかし、一次エネルギーの種類は国によって大きく異なり、中国では 68% が石炭であるが、日本や韓国では石油が 49～50% と最も多い。一方ロシアでは 54% が天然ガスである<sup>1)</sup>。これら化石燃料の燃焼は、二酸化炭素だけでなく種々の有害物質を生成し、大気汚染の大きな原因となっているが、その内容はそれぞれの国のエネルギー事情や交通、産業の状況、科学技術レベル等により大きく異なっている。

わが国では、高度成長期に石油コンビナートから放出される二酸化硫黄（SO<sub>2</sub>）による<sup>ぜんそく</sup>呼吸器系疾患の発生が大きな社会問題になった。その後、排煙脱硫装置の発明と普及によって、わが国の SO<sub>2</sub> の大気中濃度は激減した。しかし、自動車交通の急速な発達に伴って、都市や幹線道路周辺で自動車排ガス・<sup>ふんじん</sup>粉塵による大気汚染が深刻となり、喘息のみならず<sup>がん</sup>肺癌といった呼吸器系や<sup>こうそく</sup>心筋梗塞等の循環器系疾患との関連が指摘されている。最近、これらをめぐる各地の民事訴訟で立て続けに行政側が敗訴し、道路・自動車行政の変革が迫られている。自動車の中でもディーゼル車は、ガソリン車に比較して依然として粉塵や窒素酸化物の排出量が多い。このため、ディーゼル車への粉塵除去装置の装着義務化と通行税を課すという東京都の政策が大きな話題になった。

一方、中国でも自動車の保有台数が急増しているが、中国は世界一の石炭消費国であり、暖房や工場・発電所

等の石炭燃焼に伴って大量に発生する SO<sub>2</sub> は大きな都市公害を引き起こしている。こうした排出源の排煙処理の不備と相俟って、同時に放出される粉塵や多くの有害化学物質の影響も、健康影響の観点から無視できない状況にある。

筆者は、平成 14～18 年度にわたって実施した文部科学省 21 世紀 COE プログラム「環日本海域の環境計測と長期・短期変動予測—モニタリングネットワークの構築と人為的影響の評価—」の拠点リーダーを務めた。本稿では、それを通じて明らかになった事実と感じたことを交えながら、東アジアの有害大気汚染物質としてクローズアップされている多環芳香族炭化水素（polycyclic aromatic hydrocarbon; PAH）とニトロ多環芳香族炭化水素（nitropolycyclic aromatic hydrocarbon; NPAH）に焦点を合わせて、分析化学研究の現状を紹介し、今後の課題について展望したい。

## 2 PAH, NPAH の分析法と毒性

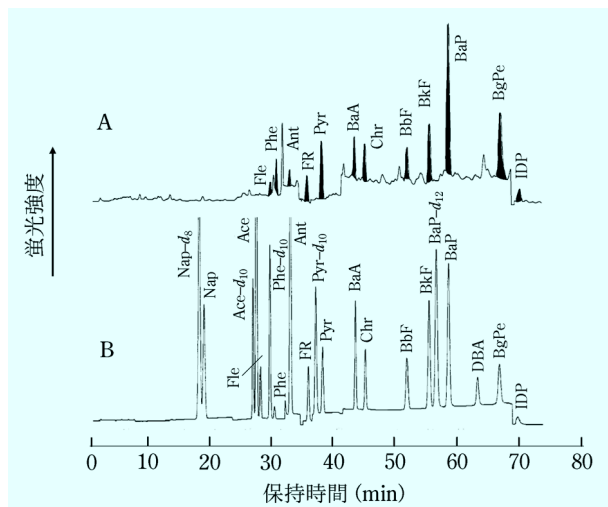
## 2.1 分析法

有機化合物が燃焼するとき、二酸化炭素や水等と一緒に、<sup>すす</sup>粉塵（煤）と二つ以上の芳香環が縮合した PAH も生成する。大気中の PAH は分子量が大きくなるほど煤に付着しやすい。PAH はさらに空気や有機化合物中の窒素（N<sub>2</sub>）と反応して NPAH が生成する。また PAH は、大気中で OH ラジカルあるいは NO<sub>3</sub> ラジカルとの反応で、新たな NPAH を二次生成することも知られている<sup>2)3)</sup>。都市大気中には極めて多くの種類の PAH, NPAH が検出されている。

多くの PAH は蛍光特性を有するので、それを検出に利用した高速液体クロマトグラフ-蛍光検出（HPLC-FL）法が環境試料の分析に用いられる。異性体を含めて類似構造を有するものが多い PAH の分離に優れるポリメリック型 ODS を充填したカラムが汎用されている。また、ガスクロマトグラフ-質量分析計（GC-MS）

Hazardous Atmospheric Pollutants in East Asia: Polycyclic Aromatic Hydrocarbons and Nitropolycyclic Aromatic Hydrocarbons.

もカラム温度上限以下で揮発可能な2~5環のPAHに用いられている。



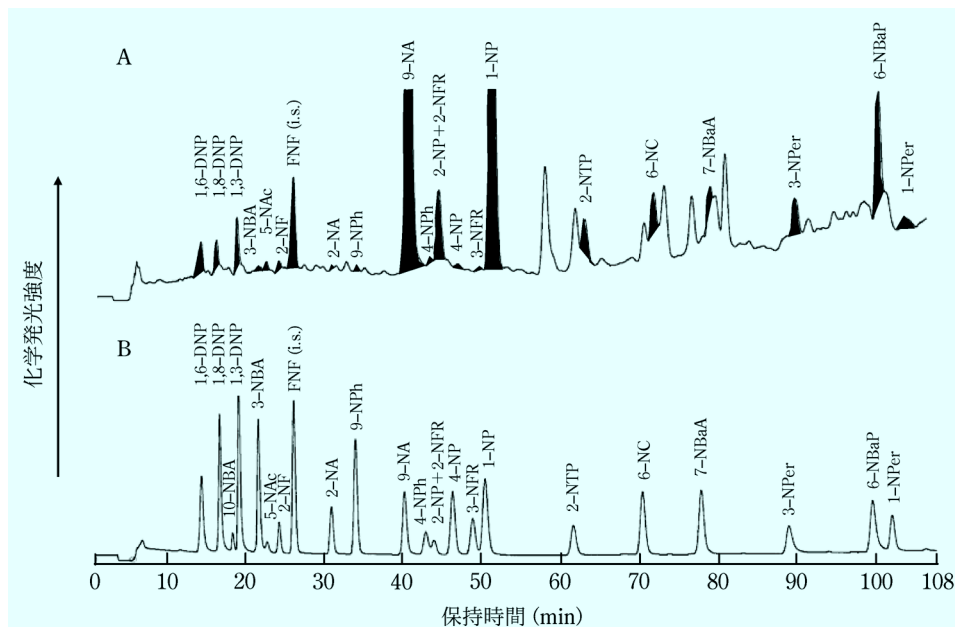
NaP: ナフタレン, NaP-d<sub>8</sub>: 重水素化ナフタレン (内標), Ace: アセナフテン, Ace-d<sub>10</sub>: 重水素化アセナフテン (内標), Fle: フルオレン, Phe: フェナントレン, Phe-d<sub>10</sub>: 重水素化フェナントレン (内標), Ant: アントラセン, FR: フルオランテン, Pyr: ピレン, Pyr-d<sub>10</sub>: 重水素化ピレン (内標), BaA: ベンツ[a]アントラセン, Chr: クリセレン, BbF: ベンゾ[b]フルオランテン, BkF: ベンゾ[k]フルオランテン, BaP: ベンゾ[a]ピレン, BaP-d<sub>12</sub>: 重水素化ベンゾ[a]ピレン (内標), DBA: ジベンツ[a,h]アントラセン, BgPe: ベンゾ[ghi]ペリレン, IDP: インデノ[1,2,3-cd]ピレン

図1 大気粉塵抽出物 (A) と PAH 標準物質のクロマトグラム (B)

一方, NPAHは後述するように PAHより強い変異原性を有するものが少なくないが, 大気中濃度は2~4桁も低い。NPAHのニトロ基をアミノ基に還元したアミノ PAHは蛍光特性を有するので, 還元後に HPLC-FL法を用いる方法が報告されているが, 大気試料には感度不足であった。このように実試料に適用できる分析法のないことが, NPAHの環境動態解析の大きな妨げになっていた。筆者らは, アミノ PAHが過シュウ酸エステル化学発光で蛍光より高感度検出できることから, Pd/Rh 充填カラムから成る還元部と化学発光検出部を組み込んだ HPLC-CLシステムを開発した。これにより HPLC-FLや GC-MSより約100倍高感度に NPAHの分離分析が可能になった。図1には, 米国環境保護庁 (USEPA) が優先的にモニタリングすべき汚染物質に定める16 PAHのうち, 筆者らが分析対象とした15種類の PAHと大気粉塵抽出物の分析クロマトグラム例を, 図2には, 20種類の NPAHと大気粉塵抽出物の分析クロマトグラム例を示した<sup>4)~8)</sup>。これらの PAH, NPAHはいずれも大気やディーゼル排ガス, 石炭燃焼排ガス中に検出されている。

## 2.2 毒性

国際癌研究機構 (IARC) のリストでは, 煤やタバコ煙がグループ1 (carcinogenic to humans)に, ベンゾ[a]ピレン (BaP)ほかに3種類の PAHがディーゼルエンジン排出物とともにグループ2A (probably carcinogenic



1,3-, 1,6-, 1,8-DNP: 1,3-, 1,6-, 1,8-ジニトロピレン, 3-, 10-NBA: 3-, 10-ニトロベンツアントロン, 5-NAc: 5-ニトロアセナフテン, 2-NF: 2-ニトロフルオレン, FNF (i.s.): 2-フルオロ-7-ニトロフルオレン (内標), 2-, 9-NA: 2-, 9-ニトロアントラセン, 4-, 9-NPh: 4-, 9-ニトロフェナントレン, 1-, 2-, 4-NP: 1-, 2-, 4-ニトロピレン, 2-, 3-NFR: 2-, 3-ニトロフルオランテン, 2-NTP: 2-ニトロトリフェニレン, 6-NC: 2-ニトロクリセレン, 7-NBaA: 7-ニトロベンツ[a]アントラセン, 1-, 3-NPer: 1-, 3-ニトロペリレン, 6-NBaP: 6-ニトロベンゾ[a]ピレン

図2 大気粉塵抽出物 (A) と NPAH 標準物質のクロマトグラム (B)

to humans) に入っている。さらに 10 種類の PAH 及びその酸化体と 1-ニトロピレン (1-NP) や 1,8-ジニトロピレン (1,8-DNP) を含む 8 種類の NPAH が Group 2B (possibly carcinogenic to humans) に入っている<sup>9)</sup>。このように発癌性を示す PAH, NPAH 関連化合物は少なくなく、今後研究報告が進むとともにその数は増加すると予想される。

発癌性試験のスクリーニング法として、ネズミチフス菌 *Salmonella typhimurium* のヒスチジン要求性変異株の復帰突然変異を観察する Ames 試験が汎用される<sup>10)</sup>。BaP などの PAH は S9mix (動物の肝ホモジネート 9000×g 上清に補酵素等を加えたもの) の添加により変異原性を示す。一方、1,8-DNP 等いくつかの NPAH は S9mix を添加せずに変異原性を示す<sup>11)</sup>。Ames 試験は変異原性を確認する方法であるが、定量分析では、NPAH の直接変異原測定に PAH が抑制作用を示す等、共存化合物の影響の除去が課題である。一方、上述の機器分析法についても課題がある。例えば、大気中の USEPA 16PAH の間接変異原性を合わせても大気間接変異原性の数% にしかならず、ほとんどの間接変異原が見逃されている。一方、HPLC-CL で測定できる 20 種類の NPAH の直接変異原性を合わせると大気直接変異原性の 30~50% に達するが、依然半分以上は分析されない。

また、筆者らは、PAH の代謝物の中にエストロゲン受容体に結合しやすい構造を有するものがあることに着目して、E-screening test や酵母 two-hybrid 法を用いて PAH 関連化合物の内分泌かく乱作用 (いわゆる環境ホルモン作用) を調べた結果、PAH 自体には活性がなかったが、PAH の水酸化体 (OHPAH) の中にエストロゲン様活性、あるいは抗エストロゲン活性や抗アンドロゲン活性を示すものがあり、それらの構造と活性の強さとの間に相関があることを見いだした<sup>13)~18)</sup>。更に、従来から PAH キノン体 (QPAH) の中に活性酸素種を生成する作用があることが報告されていたが、筆者らは QPAH の中でオルトキノン体のみには作用があることを見いだした。これらの結果は、PAH や NPAH の曝露が生殖や胎児、乳幼児の成長に影響する可能性があるだけでなく、循環器系の疾患にも関連する可能性を指摘している。現在、上述の PAH, NPAH の構造活性相関が現れる理由を追及中である。

以上のように、PAH, NPAH の物理化学的測定法と生物活性との間の溝は大きく、PAH の代表としてしばしば引用される BaP のみの定量で、大気や排ガス中の有害性 PAH, NPAH 類全体を論じることは到底無理である。これらの活性体は体内で代謝生成するだけでなく、大気中でも存在が確認されているものも多い。その生体影響を明らかにするためには、OHPAH, QPAH や NPAH の水酸化体、キノン体を高感度に分離定量でき

る方法も必要である。

### 3 東アジアの大気中 PAH 及び NPAH

#### 3.1 存在様態

大気中 PAH, NPAH は、それぞれの蒸気圧に依存して粒子相/ガス相に分布する。常温付近では、ナフタレンやアントラセン等 2, 3 環 PAH は主にガス相に、4 環 PAH は両相に存在するが、BaP 等 5 環以上の PAH 及び 3 環以上の NPAH は主に粒子相に存在する。

また、大気粉塵はその大きさによって体内への侵入の程度が異なる。大きな粒子は鼻や喉頭にとどまるが、微細になればなるほど肺の奥まで侵入し、そこに沈着される割合は高くなる。従って、有害物質が微細な粉塵に含まれているほど健康影響は大きくなると懸念される。大気粉塵を粒子の大きさ別に分画捕集する方法の一つに、アンダーセンハイボリウムエアースンプラーがある。このサンプラーを金沢市内の幹線道路脇にセットし、大気粉塵を粒径別に 5 分画に分けて捕集すると、粉塵質量は最も細かな粒子 (1.1 μm 以下) 分画と最も大きな粒子 (7 μm 以上) 分画とに大きく 2 極分布した (図 3A)<sup>19)</sup> が、1,3-, 1,6-, 1,8-DNP や 1-NP, BaP はいずれも最も細かな 1.1 μm 以下の分画に集中していた (図 3B)。この結果は、大気中の NPAH や PAH が健康影響を及ぼしやすい存在様態にあることを意味している。図 3A の微粒子分画は、更に直径が数十 nm のいわゆるナノ粒子と、それが凝集して生成する直径が数百 nm の二つに分かれると言われている<sup>20)</sup>。最近の自動車エンジンは性能が向上し、粉塵の排出量は減少する一方で、微粒子化が進んでナノ粒子の個数は増加しているのではないかとの疑いが持たれている。粒子の直径が小さくな

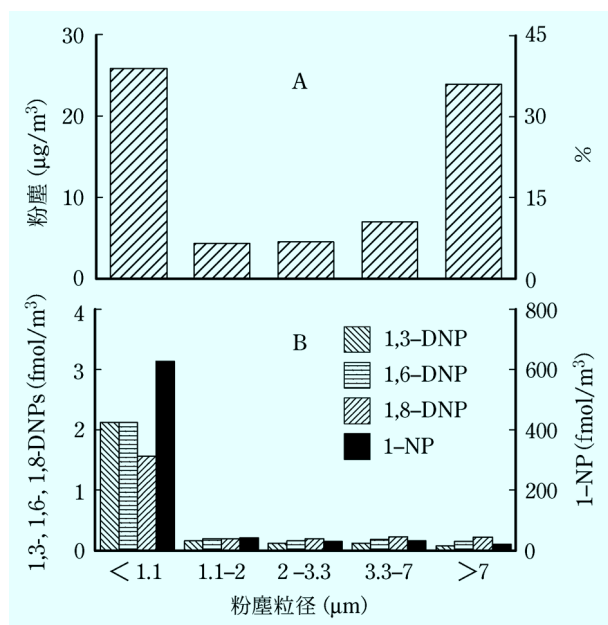


図3 大気粉塵 (A) と 1,3-, 1,6-, 1,8-DNPs, 1-NP の粒径分布 (B)

れば、膜透過が容易になって血管内に移行しやすくなる可能性があり、新たな生体影響に関する研究が必要である。

### 3・2 発生源

石油や石炭等の化石燃料や薪<sup>まき</sup>の燃焼は PAH, NPAH の主要排出源である。このように組成に違いが生じる原因の一つとして、化石燃料の燃焼温度の違いがある。すなわち、不完全燃焼は燃焼温度が低いほど生じやすいが、ニトロ化反応は燃焼温度が高いほど進むので PAH に対する NPAH の濃度比 ([NPAH]/[PAH] 比) は大きくなる。ディーゼルエンジンと石炭ストーブの燃焼温度は、それぞれ 2700°C 程度、1100°C 程度であり、燃焼温度が高いディーゼルエンジンから排出された粉塵のほうが [NPAH]/[PAH] 比が大きい。従って、燃焼温度が 500~600°C の薪ストーブから出た煙では、[NPAH]/[PAH] 比は石炭ストーブから出た煙より更に小さい。以上の理論に基づいて、発生源特定の指標としての 1-NP とピレン (Pyr) や 6-NC とクリセン (Chr) 等、いくつかの [NPAH]/[PAH] 比の有用性が報告されている<sup>21)</sup>。表 1 は、ディーゼル車と石炭ストーブから排出された粉塵の PAH, NPAH 組成を比較しているが、

[NPAH]/[PAH] 比は、燃焼温度が高い前者のほうが大きいことがわかる。しかも、これまでに報告されている PAH 同士の組成比を用いる方法に比較して、発生源の違いによる差が大きく、より有効な発生源特定の指標である。

### 3・3 わが国の主要排出源

わが国では、大気汚染が深刻な社会問題になった高度成長期以後、工場排煙を浄化する技術が発明されて、その普及が進み、大気質は著しく改善した。しかし、交通の発達とともに、自動車排ガスによる大気汚染が深刻になった。筆者らは、今から 15 年余前に、わが国の都市大気中 PAH, NPAH の濃度レベルと主要排出源を明らかにするために、これらの日内変動を追跡した。すなわち、金沢市内の幹線道路脇にハイボリュームエアサンプラーを設置して、2 時間ごとにフィルターを交換しながら大気粉塵を連続捕集し、粉塵に含まれる PAH, NPAH を、上述の HPLC-CL 及び HPLC-FL を用いて測定した。その結果、いずれの化合物の大気中濃度も、朝、晩に高く深夜に低い日内変動が観察された。図 4 には 1,3-, 1,6-, 1,8-DNP と 1-NP を示した。これらの濃度の推移は、交通量の推移と良く相関しただけでな

表 1 PAH, NPAH の濃度比

比	瀋 陽		ウラジオストク		金 沢	石炭 ストーブ	ディーゼル エンジン
	サイト 1	サイト 2	サイト 1	サイト 2			
[1-NP]/[Pyr]	0.005	0.005	0.033	0.044	0.178	0.001	0.564
[6-NC]/[Chr]	0.004	0.006	0.011	0.018	0.045	0.008	0.034
[6-NBaP]/[BaP]	0.002	0.002	0.002	0.014	0.035	0.003	—
[BaA]/[Chr]	0.72	0.69	0.89	0.82	0.68	1.2	0.64
[FR]/[Pyr]	1.1	1.0	1.3	1.2	0.94	1.2	1.0
[BgPe]/[BaP]	0.73	1.0	1.1	1.3	1.9	1.2	1.1

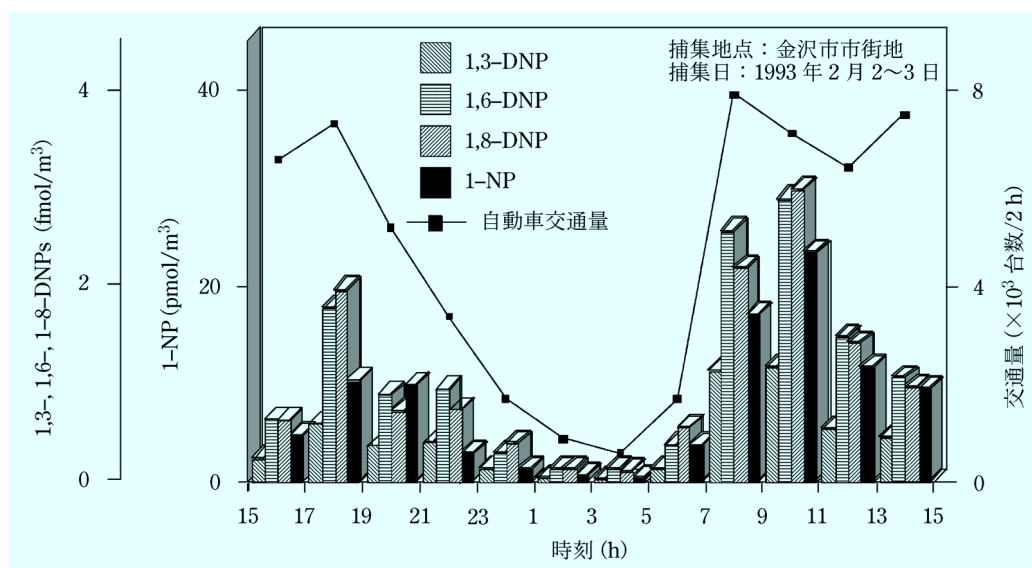
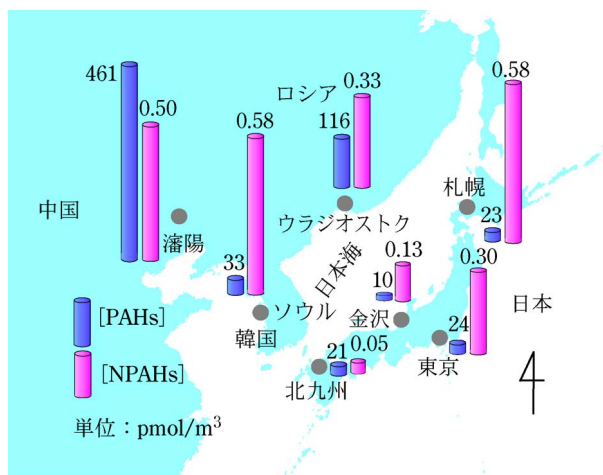


図 4 都市大気中 1,3-, 1,6-, 1,8-DNPs, 1-NP 濃度と交通量の日内変動

く、自動車为主要排出源であることが知られている一酸化炭素や一酸化窒素の推移とも強く相関した。しかも大気粉塵の捕集地点周辺には工場や焼却施設等のめばしい発生源はないことから、この測定地点の大気中のDNP類や1-NPの主要排出源は自動車であることが明らかになった。一般にわが国の都市では、PAH, NPAHの濃度レベルに差はあるものの、同様の交通量に依存した日内変動を呈する<sup>22)</sup>。次いで、ディーゼル車及びガソリン車からの排ガスについて、特に直接変異原性が強い1,3-, 1,6-, 1,8-DNPと1-NPを測定すると、いずれの化合物の排出量もディーゼル車からのほうが多く、組成の違いに基づく試算の結果、金沢市内の幹線道路周辺の大気中に存在するDNPの約85%, 1-NPの99%以上がディーゼル車から排出されていることになり、これら有害化学物質の都市大気汚染におけるディーゼル車の寄与が極めて大きいことがわかった。ディーゼルエンジンの性能は日々向上している。ディーゼルエンジンからの粉塵の排出量がガソリンエンジンと同レベルになれば、燃費が良くて二酸化炭素排出量の少ないディーゼル車のほうが地球環境には優しいということになるのだが……。

### 3.4 環日本海域諸国の比較

以上述べたことは、わが国の状況である。はたして、日本以外の環日本海域諸国でも同じことが言えるであろうか？ アジア諸国の主要都市では、東京や大阪に比較して浮遊粒子状物質や二酸化硫黄の濃度が高いことが報告されている<sup>23)</sup>。図5は、わが国の主要都市（東京都、札幌市、金沢市、北九州市）と中国東北地方の大都市である瀋陽市、ロシアのウラジオストク市、それに韓国のソウル市の大気中PAH, NPAH濃度を比較している。まず、大気中のPAH濃度は瀋陽市やウラジオストク市のほうが日本や韓国の都市に比較して3~40倍以上も



$$[PAHs] = [Pyr] + [FR] + [Chr] + [BaA] + [BkF] + [BbF] + [BaP] + [BgPe] + [IDP]$$

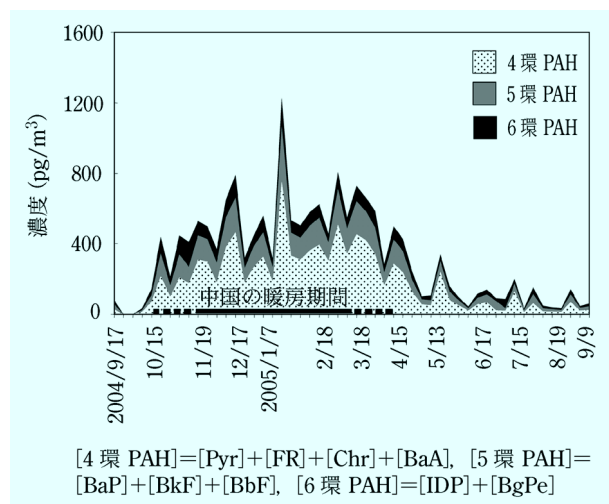
$$[NPAH] = [1,3-DNP] + [1,6-DNP] + [1,8-DNP] + [1-NP]$$

図5 東アジアの都市の大気中PAH, NPAH濃度

高い。しかし、瀋陽市とウラジオストク市の大気中NPAH濃度は札幌市や東京都、ソウル市等とも大差ない。この組成の違いは発生源の違いを意味している。そこで、表1の[NPAH]/[PAH]比を用いると、瀋陽市の主要発生源は、この値が小さい石炭燃焼施設であり、ウラジオストク市も石炭燃焼の寄与が小さくないことが明らかになった<sup>24)~27)</sup>。冬季の中国では、暖房に使用する石炭ボイラーから大量の排煙が出る。しかも、PAH濃度は高いが、NPAH濃度は低い。このことが中国と日本の間で、都市大気汚染の内容が大きく異なる原因になっている<sup>28)</sup>。中国の自動車の増加は目覚しく、石炭暖房を使用しない夏に限って見ると、瀋陽市やウラジオストク市でも自動車排ガス粉塵の影響が顕著であり、今後の大気質の変化を追跡して行く必要がある。

### 3.5 長距離輸送

わが国では、中国で発生した硫酸化物(SO<sub>x</sub>)の飛来による酸性雨雪が広範囲に観測されたことを契機に、東アジアの関係国のネットワークとして1998年に東アジア酸性雨ネットワーク(EANET)が設立され、調査と情報収集・交換が継続されている。また春にはゴビ砂漠から飛来する黄砂も観測され、その量は年々増加傾向にある。これらの飛来物質と同様に、中国で大量に発生する粉塵やPAH, NPAHの少なくとも一部が、長距離輸送されて日本海を渡って来ると予想するに難くない。そこで、21世紀COEプログラムで整備した金沢大学輪島観測ステーション(石川県能登半島先端の輪島市郊外に位置する旧環境省酸性雨観測所)で、1年間にわたって大気粉塵を連続捕集してPAHを分析した結果、中国の石炭暖房の使用期間(中国東北地方は10月15日~4月15日、その他多くの地域は11月15日~3月15日)のみ、大気中の3~6環PAHの濃度が上昇していた(図6)。



$$[4 \text{ 環 PAH}] = [Pyr] + [FR] + [Chr] + [BaA], [5 \text{ 環 PAH}] = [BaP] + [BkF] + [BbF], [6 \text{ 環 PAH}] = [IDP] + [BgPe]$$

図6 輪島観測ステーションにおける大気中PAH濃度の年間変動

一般に、冬季の北東アジアは典型的な西高東低の気圧配置となるので、中国で発生したSO<sub>2</sub>は北西風に乗ってわずか3日間で日本列島まで運搬される<sup>29)30)</sup>。しかし、夏は小笠原高気圧が支配的になるため、アジア大陸の空気団が日本に直接運搬される機会は極めて少ない。後方流跡線解析法を用いて、図6のPAH濃度が高かった期間(すなわち、中国の石炭暖房期間)に能登半島上空に流入した空気塊の軌跡を辿ると、大部分が中国東北地方を通り抜けていたが、非暖房期間では大部分が中国国内すら通らなかつた。更に、中国東北地方の代表的な大都市である瀋陽市と金沢市、輪島観測ステーションの大気中PAH組成を用いて主成分分析を行ったところ、輪島観測ステーションのこの時期のPAH組成は瀋陽市の冬季と類似していた。輪島大気観測ステーションの近くには主要なPAH発生源はないことから、輪島観測ステーションで濃度が上昇したPAHのほとんどは中国東北部から飛来したことが明らかになった<sup>31)32)</sup>。

輪島観測ステーションの冬季の大気中PAH濃度(図6)は、瀋陽市の1/300以下、金沢市の約1/10であるが、輪島観測ステーションの暖房期以外の濃度レベルの5~10倍にも達する。輪島観測ステーションでは、この時期にいくつかのNPAHの濃度も上昇していることが観察されている。中国からわが国まで長距離輸送される間に、PAH、NPAHが日本海上空でどんな化学反応を受けているかはまだ明らかではない。従って、単純に中国で発生したPAH、NPAHの1/300が日本列島に降下し、日本のバックグラウンドレベルを5~10倍に押し上げていると言うことはできない。仮に長距離輸送中にPAHが化学変化することを考慮すれば、日本列島に降下するPAH関連化合物の量はもっと多いことになる。こうした長距離輸送とその間の反応の追跡には、上空大気試料の捕集と微量な試料でも可能な更に高感度な分析法が必要である。

#### 4 おわりに

東アジア地域の気象環境問題はもはや一国だけでは解決できない。今後の予測と有効施策のためには、政府間の合意に基づく研究ネットワークを設立して、次の観点を踏まえた研究を進める必要がある。

- 1) PAH、NPAHと一緒に長距離輸送する硫黄酸化物や黄砂等の共存物質が、大気内反応やヒトの疾病にどのように関連しているかはほとんど明らかになっていない。これらの課題の解明には、より有効な分析法が必要である。
- 2) 中国では最近20年程度の間で大気質が急速に悪化した。PAH、NPAHの長期曝露による住民の健康影響はこれから現れてくるのではないかと危惧されている。兆候をいち早く検出して、影響を最小限に食い止めるために、毒性に関する生物学的研究を進めると

ともに個人曝露量の測定を含めた疫学調査を実施することが大切である。

- 3) 国や都市によって大気中PAH、NPAHの濃度レベルだけでなく、発生源も異なっている事実は、有効な汚染対策も異なることを意味している。

#### 文 献

- 1) BP Statistical Report (2004).
- 2) R. Atkinson, J. Arey: *Environ. Health Perspect.*, **102** (Suppl. 4), 117 (1994).
- 3) J. Arey, B. Zielinska, R. Atkinson: *Atmos. Environ.*, **20**, 2339 (1986).
- 4) K. Hayakawa, R. Kitamura, M. Butoh, N. Imaizumi, M. Miyazaki: *Anal. Sci.*, **7**, 573 (1991).
- 5) K. Hayakawa, K. Noji, N. Tang, A. Toriba, R. Kizu: *Anal. Chim. Acta*, **445**, 205 (2001).
- 6) N. Tang, N. Tang, A. Toriba, R. Kizu, K. Hayakawa: *Anal. Sci.*, **19**, 249 (2003).
- 7) N. Tang, R. Taga, T. Hattori, K. Tamura, A. Toriba, R. Kizu, K. Hayakawa: *Anal. Sci.*, **20**, 119 (2004).
- 8) N. Tang, R. Taga, T. Hattori, A. Toriba, R. Kizu, K. Hayakawa: "Bioluminescence and Chemiluminescence Progress and Perspective", ed. by A. Tsuji et al., pp. 441 (World Science, London).
- 9) IARC Monographs on the Evaluation of Carcinogenic Risks to Humans: <http://monographs.iarc.fr/ENG/Classification/index.php>
- 10) B. N. Ames, J. McCann, E. Yamasaki: *Mutat. Res.*, **31**, 347 (1975).
- 11) T. Enya, H. Suzuki, T. Watanabe, T. Hirayama, Y. Hisamatsu: *Environ. Sci. Technol.*, **31**, 2772 (1997).
- 12) Task group on lung dynamics: *Health Phys.*, **12**, 173 (1966).
- 13) T. Hirose, K. Morito, R. Kizu, A. Toriba, K. Hayakawa, S. Ogawa, S. Inoue, M. Murahashi, Y. Masamune: *J. Health Sci.*, **47**, 552 (2001).
- 14) K. Okamura, R. Kizu, A. Toriba, C. M. Klinge, K. Hayakawa: *Polycycl. Aromat. Comp.*, **22**, 747 (2002).
- 15) R. Kizu, K. Okamura, K. Ishii, A. Toriba, H. Kakishima, E. Koh, M. Namiki, K. Hayakawa: *Arch. Toxicol.*, **77**, 335 (2003).
- 16) R. Kizu, K. Okamura, A. Toriba, A. Mizokami, K. L. Burnstein, C. M. Klinge, K. Hayakawa: *Toxicol. Sci.*, **76**, 299 (2003).
- 17) K. Okamura, R. Kizu, A. Toriba, T. Murahashi, A. Mizokami, K. L. Burnstein, C. M. Klinge, K. Hayakawa: *Toxicology*, **195**, 243 (2004).
- 18) R. Kizu, N. Otsuki, Y. Kishida, A. Toriba, A. Mizokami, K. L. Burnstein, C. B. Klinge, K. Hayakawa: *Anal. Sci.*, **20**, 55 (2004).
- 19) K. Hayakawa, Y. Kawaguchi, T. Murahashi, M. Miyazaki: *Mutat. Res.*, **348**, 57 (1995).
- 20) J. C. Chow, J. P. Engebrecht, N. C. Freeman, J. H. Hashim, M. Jantenen, J. P. Michaud, S. S. deTjada, J. G. Watson, W. Wei, W. F. Wilson, M. Yasuno, T. Zhu: *Chemosphere*, **49**, 873 (2002).
- 21) N. Tang, T. Hattori, R. Taga, K. Igarashi, X. Yang, K. Tamura, H. Kakimoto, V. F. Mishukov, A. Toriba, R. Kizu, K. Hayakawa: *Atmos. Environ.*, **39**, 5817 (2005).

- 22) K. Hayakawa, T. Murahashi, M. Butoh, M. Miyazaki: *Environ. Sci. Technol.*, **29**, 928 (1995).
- 23) World Bank: World Development Report (1992).
- 24) H. Kakimoto, M. Kitamura, Y. Matsumoto, S. Sakai, F. Kanoh, T. Murahashi, K. Akutsu, K. Kizu, K. Hayakawa: *J. Health Sci.*, **46**, 5 (2000).
- 25) N. Tang, M. Tabata, V. F. Mishukov, V. Sergienko, A. Toriba, R. Kizu, K. Hayakawa: *J. Health Sci.*, **48**, 30 (2002).
- 26) H. Kakimoto, Y. Matsumoto, S. Sakai, F. Kanoh, K. Arashidani, N. Tang, K. Akutsu, A. Nakajima, Y. Awata, A. Toriba, R. Kizu, K. Hayakawa: *J. Health Sci.*, **48**, 370 (2002).
- 27) N. Tang, S. Oguri, Y. Watanabe, M. Tabata, V. F. Mishukov, V. Sergienko, A. Toriba, R. Kizu, K. Hayakawa: *Bulletin of the Japan Sea Research Institute, Kanazawa University*, **33**, 77 (2002).
- 28) K. Hayakawa, M. Butoh, M. Miyazaki: *Anal. Chim. Acta*, **266**, 251 (1992).
- 29) H. Terada, H. Ueda, Z. Wang: *Atmos. Environ.*, **36**, 503 (2002).
- 30) I. Uno, T. Ohara, A. Mori, A. Utsunomiya, S. Wakamatsu, K. Murano: *J. Jpn. Soc. Atmos. Environ.*, **32**, 267 (1997).
- 31) X. Y. Yang, Y. Okada, N. Tang, S. Matsunaga, K. Tamura, J. M. Lin, T. Kameda, A. Toriba, K. Hayakawa: *Atmos. Environ.*, **41**, 2710 (2007).

- 32) S. Tamamura, T. Sato, Y. Ota, X. L. Wang, N. Tang, K. Hayakawa: *Atmos. Environ.*, **41**, 2580 (2007).



早川和一 (Kazuichi HAYAKAWA)

金沢大学大学院自然科学研究科 (薬) (〒920-1192 金沢市角間町)。東京大学大学院薬学系研究科博士課程1年終了退学。薬学博士。《現在のテーマ》多環芳香族炭化水素類の毒性と東アジアにおける動態。《主な著書》“Past, Present and Future Environments of Pan-Japan Sea Region” (Maruzen)。《趣味》冬はスキー、それ以外はテニス。  
E-mail : hayakawa@p.kanazawa-u.ac.jp

唐 寧 (Ning TANG)

金沢大学大学院自然科学研究科 (薬) (〒920-1192 金沢市角間町)。金沢大学大学院自然科学研究科博士後期課程2年修了退学。博士 (薬学)。

鳥羽 陽 (Akira TORIBA)

金沢大学大学院自然科学研究科 (薬) (〒920-1192 金沢市角間町)。東京大学大学院薬学系研究科博士後期課程3年中途退学。博士 (薬学)。

亀田貴之 (Takayuki KAMEDA)

金沢大学大学院自然科学研究科 (薬) (〒920-1192 金沢市角間町)。大阪府立大学大学院工学研究科博士後期課程修了。博士 (工学)。

### 日本分析化学会研究懇談会の御案内

日本分析化学会の研究懇談会に入会御希望の方は下記に照会ください。

- |                          |  |
|--------------------------|--|
| ① ガスクロマトグラフィー研究懇談会       | ⑥ : 〒293-8522 千葉市稲毛区弥生町1-33 千葉大学分析センター 関 宏子〔電話: 043-290-3810〕              |
| ② 高分子分析研究懇談会             | ⑦ : 〒152-8551 東京都目黒区大岡山2-12-1 東京工業大学大学院理工学研究科化学専攻 岡田哲男〔電話: 03-5734-2612〕   |
| ③ X線分析研究懇談会              | ⑧ : 〒223-8522 横浜市港北区日吉3-14-1 慶應義塾大学理工学部応用化学科分析化学研究室 鈴木孝治〔電話: 045-566-1568〕 |
| ④ 液体クロマトグラフィー研究懇談会       | ⑨ : 〒615-8510 京都大学大学院工学研究科材料化学専攻有機材料化学講座材料解析化学分野 大塚浩二〔電話: 075-383-2447〕    |
| ⑤ 分析試薬研究懇談会 (旧有機試薬研究懇談会) | ⑩ : 〒739-8529 東広島市鏡山1-5-1 広島大学大学院国際協力研究科 村上彰子〔電話: 082-424-6927〕            |
| ⑥ 有機微量分析研究懇談会            | ⑪ : 〒470-0392 豊田市八草町八千草1247 愛知工業大学応用化学科 酒井忠雄〔電話: 0565-48-8121 内線2206〕      |
| ⑦ 溶液界面研究懇談会 (旧非水溶媒研究懇談会) | ⑫ : 〒376-8515 桐生市天神町1-5-1 群馬大学大学院工学研究科 角田欣一〔電話: 0277-30-1254〕              |
| ⑧ 化学センサー研究懇談会            |  |
| ⑨ 電気泳動分析研究懇談会            |  |
| ⑩ イオンクロマトグラフィー研究懇談会      |  |
| ⑪ フローインジェクション分析研究懇談会     |  |
| ⑫ 環境分析研究懇談会              |  |
- ◇照会先
- ①～④ : 〒141-0031 東京都品川区西五反田1-26-2 五反田サンハイツ304号 社団法人日本分析化学会〔電話: 03-3490-3351〕
- ⑤ : 〒102-8554 東京都千代田区紀尾井町7-1 上智大学理工学部化学科分析化学研究室 橋本 剛〔電話: 03-3238-3370〕