

令和 2 年 6 月 9 日現在

機関番号：17401

研究種目：基盤研究(B) (一般)

研究期間：2016～2019

課題番号：16H04168

研究課題名(和文) MEMS加工デバイスにより大気中化学物質の気相/粒子間の相間移動を追跡する

研究課題名(英文) Transferring monitoring of atmospheric compounds between gas/particle by means of MEMS device

研究代表者

戸田 敬 (Toda, Kei)

熊本大学・大学院先端科学研究部(理)・教授

研究者番号：90264275

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 13,500,000円

研究成果の概要(和文)：私たちの健康に影響をもたらすPM2.5, 中でも二次有機エアロゾル(SOA)と呼ばれる大気中の微小粒子の形成には多くの有機化合物が関わっている。そこで、気体の有機化合物が粒子になっていく、あるいは取り込まれていく様子を明らかにする手法の確立を行った。そのための捕集デバイスの開発を行なったが、MEMSと呼ばれるシリコン基板の微細加工によって捕集デバイスの面修飾を行ったマイクロデバイスを開発した。また、いくつかの揮発性有機化合物が大気粒子へ移行していく振舞いについて明らかにしてきた。粒子の重金属についてもその水への溶出過程について探った。

研究成果の学術的意義や社会的意義

揮発性有機化合物は粒子に取り込まれた後逐次反応して粒子を形成する複雑な分子になっていく。しかし、従来のフィルター採取法では、粒子に含まれる揮発性有機化合物は、吸引される大気とともに揮散し、フィルターに残らないため測定できなかった。今回の研究によって、SOAを形成する化合物の粒子内の濃度はじめて調べることができるようになった。また粒子に含まれる重金属は生体で溶出することによって健康影響をもたらすが、この機構についても調査した。以上から粒子の健康影響をより正しく理解できるようになり、またSOA形成の機構についても正しい知見が得られるようになった。

研究成果の概要(英文)：Several kinds of volatile organic compounds contribute to production of secondary organic compounds, which may affect our health badly. In this work, we developed a method to investigate transferring behaviors of gaseous species between gas phase and particles. MEMS fabrication was applied to establish micro sampling device. We succeeded to show transferring of the volatile organic compounds in atmospheric particles for the first time. Also, elution of heavy metals from PM2.5 was investigated.

研究分野：大気化学・分析化学

キーワード：大気粒子 揮発性有機化合物 デニューダー 微細加工 ホルムアルデヒド カルボニル化合物 重金属

科研費による研究は、研究者の自覚と責任において実施するものです。そのため、研究の実施や研究成果の公表等については、国の要請等に基づくものではなく、その研究成果に関する見解や責任は、研究者個人に帰属されます。

## 1. 研究開始当初の背景

PM<sub>2.5</sub> など大気粒子の中国からの移流やその健康影響が取りざたされ、特に西日本は中国大陸から到来する気団のフロントラインに位置している。また、ローカルにもさまざまな揮発性有機化合物の発生源があり、国土の 6 割を占める森林も植物起源の化合物 (BVOCs) の広大な面ソースとなっている。BVOCs から二次生成する化合物も大気粒子の起源となったり二次有機粒子 (SOA) の形成に寄与している。このように大陸起源・森林起源の大気粒子にさらされている西日本では、人々の健康を考えるうえで、大気粒子の実態やその形成機構についてさらに研究をすすめる必要がある。

## 2. 研究の目的

(1)(2) 大気粒子の形成に寄与していると考えられる有機化合物は、気相と粒子との間で物質移動をしながら粒子内で重合したり他の物質に変換されたりしているが、粒子中に含まれる揮発性物質を正しく調べる手法は知られていない。そこで、VOCs を対象として気相と粒子それぞれの存在量を調べる手法を開発するとともに、その手法を駆使して大気観測を実施し、大気粒子に関わる化学をひも解いていく。また、フィールドで使用できる捕集装置を開発すべく MEMS 技術を駆使したデバイスの開発に臨む。

(3) 燃焼過程では、化石燃料に含まれる重金属もカルボニルや水素化物の形態で気化して大気に放出される。しかし、燃焼排ガスの温度の低下により粒子に取り込まれ、さまざまな形態で大気粒子に含まれている。この重金属が地上に沈着した際、水に接すると再溶出する可能性がある。また、生体組織に直接沈着した場合、溶出した重金属は生体組織や細胞内に入り込んで健康影響をもたらす。つまり粒子中の重金属はどの程度溶出するかが重要であり、溶出過程や溶出の実態を明らかにする。

## 3. 研究の方法

(1)(2) 気体の分子拡散と粒子拡散の違いを利用して気体のみを選択的かつ連続的に捕集する wet denuder (WD) および粒子内から水溶性成分をリアルタイムに抽出する particle collector (PC) を利用し、同じ物質でも気相と粒子相に存在するものを別個に捕集する。WD や PC は元来無機系の酸性成分や塩基性成分を分別捕集するために開発されたものであるが、本研究では有機化合物に使用できるよう工夫する。また、フィールドで使用するため小型の wet denuder を開発する。WD は捕集面に吸収液を流すが、捕集面いっばいに安定して広がるように面の濡れ性を確保する必要がある。そのための小型のバージョンである micro wet denuder ( $\mu$ WD) は micro electromechanical system (MEMS) 技術を駆使して濡れ性の確保を行なう。

PC や WD を駆使して実際の大気観測を行ない、BVOCs や二次有機化合物の大気粒子と気相の各濃度の推移を明らかにし、粒子内の存在状態を見積もる。

(3) 大気粒子に含まれる重金属を溶出させ、その量を測定するとともにイオンクロマトグラフィーにて分離して ICP-MS で検出を行ない、溶出物の形態分析を行なう。

## 4. 研究成果

(1) MEMS を利用した  $\mu$ WD の開発に臨んだ。論文執筆中のため詳細の記載はできないが、まず、シリコン基板の表面を陽極酸化や異方性エッチングにて表面改質を行った。この表面に水を滴下すると水滴が盛りあがり球に近い形状となった。水と基板の接触角は 80~100° となり超撥水性の表面が得られた。続いてこの基板を水蒸気酸化すると接触角が 15° の超親水性の表面が得られた。最終的には異方性エッチングにより碁盤目状に 40~100  $\mu$ m の溝を形成して水蒸気酸化を施したシリコンチップを採用した。この基板には、ガス吸収面のみ MEMS による超親水性加工を施しているため、基板面上で吸収液が濡れる面の制御も行える。これを樹脂製のハウジングに設置し、実際に吸収液を MEMS 面に流しながらホルムアルデヒドやグリオキザールなど酸素原子を有する極性の VOC を導入するとほぼ定量的にこれらの化合物の気体を捕集することができた。

(2) WD および PC を駆使し、大気中のホルムアルデヒド (HCHO)、グリオキザール (Gly)、メチルグリオキザール (Mgly) などのカルボニル類の測定に臨んだ。これらは燃焼過程で発生するとともに BVOCs から二次的に生成する。まずこれらの化合物の蒸気を発生させて WD に導入し、WD でどの程度捕集されるか、すなわち捕捉率の確認を行った。捕捉率は導入する流量にも依存するが、3 L/min の大気導入量の場合ほぼ定量的に捕捉できることが確認された。また、大気中の HCHO、Gly、Mgly は WD や PC にて吸収液に取り込まれるが、これをフラクションコレクターにて 1 時間毎に分別した (図 1)。さらにそのうちの 1 mL を取り出してカルボニル化合物に特異的に反応する DNPH にて誘導体化し、質量分析での感度を向上した。誘導体化合物を HPLC-ESI-MS/MS という分析装置にかけると、 $\mu$ g/L オーダーの微量のカルボニル類の分析が可能になった。次に熊本大学のキャンパス内で大気観測を行なった。本採取・分析法にて ng/m<sup>3</sup> オーダーの HCHO、Gly、Mgly を 1 時間毎に気体と粒子に分けて分析できるようになった。

実際に大気観測を行なったところ、気相ばかりでなく大気粒子にもこれらの化合物が含まれていることが確認された (図 2)。粒子に含まれる Gly や Mgly の濃度を大気濃度 ng/m<sup>3</sup> で表すと

気体の濃度  $\text{ng/m}^3$  に比べると約 1/10 程度であった。また粒子内の濃度は、夏、日中に上昇し夜間に減少する明瞭な日内変動が得られた。光化学反応によって生成していることが示された。また、Gly の方が Mgly や HCHO よりも 3 倍粒子に移行しやすいこともわかった。これらの化合物については粒子内の濃度を見積もることができた。これは、粒子の各イオン性成分、ならびにそのときの大気気温と相対湿度から、どの程度水分が粒子化しているかを熱力学的に見積もり、その粒子水分量で各成分の粒子大気濃度を除して求めた。吸湿性粒子がこの際の大気粒子の主成分の場合は有効である。また、求めた粒子内濃度と気相中の濃度の比は粒子と気相との間の気液平衡を示しており、これから大気で成り立っている有効なヘンリー一定数  $\text{eff}K_H$  がも求められる。この実験的にもとめた大気中の  $\text{eff}K_H$  は  $K_H$  に比べると 3 桁以上大きく、この分は粒子内でオリゴマー化していることが示唆された。粒子内反応により対象の化合物同志、あるいは他の化合物と高度にかつ可逆的にオリゴマー化あるいは重合して存在していることが示された。

富士山の山頂でも本観測を行なうことができた。富士山では顕著な日内変動は見られなかったが、高層大気気団の影響を大きく受けていた。気相に対し粒子に存在する割合 (P/G 比) も高く、富士山では熊本に比べて顕著に高い P/G 比が得られた。富士山頂付近は Gly のソースに限りがあり、気相で浮遊している Gly は気相反応で消失したり粒子化したりしていることも考えられる。気温が低く湿度が高いので吸湿性粒子との分配がより粒子側に移行していることも要因と考えられる。いずれにせよ、富士山頂でも中規模都市の市街地とほぼ同じレベルで Gly や Mgly が検出され、自由対流圏でも大気はこのような化合物の影響を受けていることが示された。

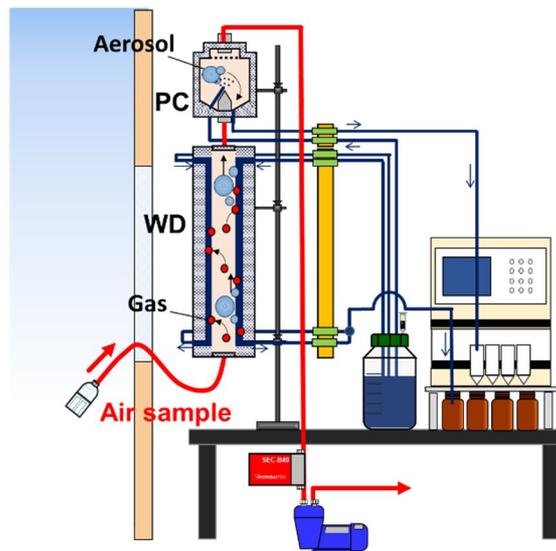


図1 気体・粒子双方に存在する化合物の状態別に分別するWD・PC捕集システム

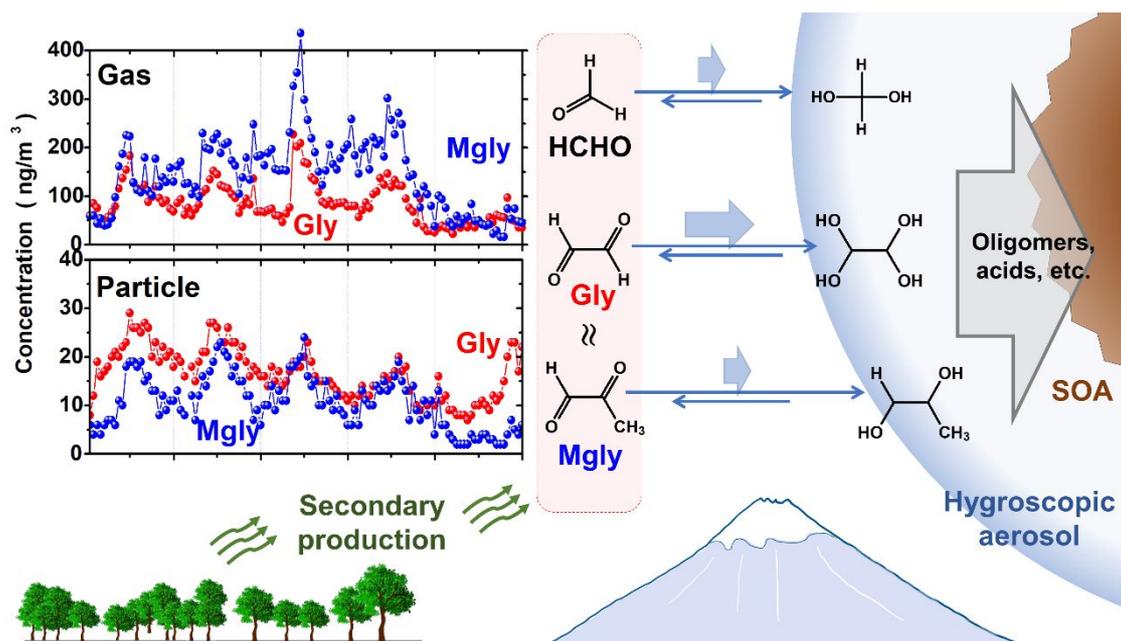


図2 気相・粒子に含まれる Gly と Mgly の濃度推移, 吸湿性粒子への取り込みと SOA への寄与

(3) 粒子に含まれるヒ素、セレン、アンチモン、バナジウム、クロムの 5 種類の重金属について、粒子から溶出する量や形態を測定した。もともとこれらの重金属は粗大粒子 ( $>2.5 \mu\text{m}$ ) より微小粒子 ( $<2.5 \mu\text{m}$ ) に多く含まれるが、粗大粒子からの溶出率は悪く、また微小粒子からはほとんどが溶出することが判明した。すなわち、微小粒子の重金属はほとんどがバイオアクセシブルであると言える (生体内に浸透しやすい)。また、これらの溶出は粒子の性質に関係しており、粒子に硫酸や硝酸が多く含まれるほど溶出しやすいことが分かった。これは粒子内の酸性度があがると、粒子内の重金属成分もフリーなイオンになりやすかったり、鉄・銅などの遷移金属や有機物のマトリックスに含まれていたものが、遷移金属の溶出促進にともなってヒ素なども

溶出したことも考えられる。水溶性のヒ素は主に 5 価のヒ酸, 3 価の亜ヒ酸に大別されるが, 3 価の割合は, 遷移金属の濃度に依存していることも判明した。Fe や Cu などの遷移金属は, 粒子内あるいは粒子が溶出した水溶液内で酸化還元サイクルによる過酸化物の生成を促す傾向があり, それによって 3 価の割合が減少したものと考えられる。ヒ素はその他有機ヒ素も検出されることもあったが, ヒ素全体からみると無視できるレベルで合った。クロムはほとんどが 3 価であり, かつ  $\text{Cr}(\text{OH})_2^+$  などのようなイオン錯体として検出され, 有害な 6 価のクロムは検出されなかった。粒子内あるいは溶出液は極度に酸性で Cr(VI)は容易に他の物質と反応して自己は還元されていると思われる。以上のように気化から発生した重金属が粒子内に取り込まれ, 地上に沈着した際の溶出過程についていくつかの事項を明らかにすることができた。

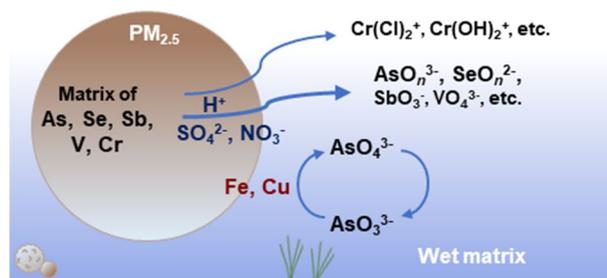


図 3.本研究から得られた  $\text{PM}_{2.5}$  から溶出する重金属の溶出促進機構, およびヒ素の酸化還元支配

## 5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計25件（うち査読付論文 25件／うち国際共著 6件／うちオープンアクセス 5件）

1. 著者名 Taira Misaiki, Sakakibara Kunio, Saeki Kentaro, Ohira Shin-Ichi, Toda Kei	4. 巻 22
2. 論文標題 Determination of oxoanions and water-soluble species of arsenic, selenium, antimony, vanadium, and chromium eluted in water from airborne fine particles (PM2.5): effect of acid and transition metal content of particles on heavy metal elution	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Environmental Science: Processes & Impacts	6. 最初と最後の頁 in press.
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1039/D0EM00135J	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -
1. 著者名 Okane Daiki, Koveke Edwin P., Tashima Koya, Saeki Kentaro, Maezono Seiya, Nagahata Takanori, Hayashi Norio, Owen Kylie, Zitterbart Daniel P., Ohira Shin-Ichi, Toda Kei	4. 巻 91
2. 論文標題 High Sensitivity Monitoring Device for Onboard Measurement of Dimethyl Sulfide and Dimethylsulfoniopropionate in Seawater and an Oceanic Atmosphere	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Analytical Chemistry	6. 最初と最後の頁 10484 ~ 10491
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acs.analchem.9b01360	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 該当する
1. 著者名 Adedapo Adebayo E., Benson Nsirik U., Williams Akan B., Toda Kei	4. 巻 1299
2. 論文標題 Field Assessment and determination of concentration levels of Dimethylsulphide in Tropical Seawater	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Journal of Physics: Conference Series	6. 最初と最後の頁 012132 ~ 012132
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1088/1742-6596/1299/1/012132	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 該当する
1. 著者名 Adedapo A. E., Benson N. U., Williams A. B., Toda K.	4. 巻 13
2. 論文標題 VAPOUR GENERATION CHEMILUMINESCENCE DETECTION SYSTEM FOR DETERMINATION OF DIMETHYLSULPHONIOPROPIONATE AND DIMETHYLSULPHIDE IN TROPICAL SEAWATER	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Rasayan Journal of chemistry	6. 最初と最後の頁 44 ~ 50
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.31788/RJC.2020.1315432	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 該当する

1. 著者名 OHIRA Shin-Ichi, TODA Kei	4. 巻 68
2. 論文標題 Universal Detection Methods in Ion Chromatography	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 BUNSEKI KAGAKU	6. 最初と最後の頁 153 ~ 162
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.2116/bunsekikagaku.68.153	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 -

1. 著者名 Adedapo E. A., Benson N. U., Williams A. B., Toda K.	4. 巻 1378
2. 論文標題 Modified VG-CL Detection System for Baseline Assessment of Dimethylsulphide and Dimethylsulphoniopropionate in Tropical Atlantic Seawater	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Journal of Physics: Conference Series	6. 最初と最後の頁 032027 ~ 032027
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1088/1742-6596/1378/3/032027	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 該当する

1. 著者名 Naoya Katsumi, Shuhei Miyake, Hiroshi Okochi, Yukiya Minami, Hiroshi Kobayashi, Shungo Kato, Ryuichi Wada, Masaki Takeuchi, Kei Toda, Kazuhiko Miura	4. 巻 17
2. 論文標題 Humic-like substances global levels and extraction methods in aerosols	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Environmental Chemistry Letters	6. 最初と最後の頁 1023-1029
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1007/s10311-018-00820-6	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 該当する

1. 著者名 K. Mitsuishi, M. Iwasaki, M. Takeuchi, H. Okochi, S. Kato, S.-I. Ohira, K. Toda	4. 巻 2
2. 論文標題 Diurnal variations in partitioning of atmospheric glyoxal and methylglyoxal between gas and particles at the ground level and in the free troposphere	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 ACS Earth and Space Chemistry	6. 最初と最後の頁 915-924
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acsearthspacechem.8b00037	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 N. Katsumi, S. Miyake, H. Okochi, Y. Minami, H. Kobayashi, S. Kato, R. Wada, M. Takeuchi, K. Toda, K. Miura	4. 巻 17
2. 論文標題 Humic-like substances global levels and extraction methods in aerosols	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Environmental Chemistry Letters	6. 最初と最後の頁 in press
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1007/s10311-018-00820-6	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 E. Deschaseaux, L. Stoltenberg, V. Hrebien, E.P. Koveke, K. Toda, B. D. Eyre	4. 巻 208
2. 論文標題 Dimethylsulfide (DMS) fluxes from permeable coral reef carbonate sediments	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Marine Chemistry	6. 最初と最後の頁 1-10
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.marchem.2018.11.008	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 該当する

1. 著者名 佐伯健太郎, 山崎大, 溝口俊介, 梶原英貴, 大平慎一, 戸田敬	4. 巻 67
2. 論文標題 花粉マーカーの探索を目的とした加熱脱着-GC/MSによる花粉由来揮発性有機化合物の同定	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 分析化学	6. 最初と最後の頁 323-331
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.2116/bunsekikagaku.67.323	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Y. Imoto, H. Nishiyama, Y. Nakamura, S.-I. Ohira, K. Toda	4. 巻 181
2. 論文標題 Electrodialytic extraction of anionic pharmaceutical compounds from a single drop of whole blood using a supported liquid membrane	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 Talanta	6. 最初と最後の頁 197-203
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.talanta.2018.01.008	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 S.-I. Ohira, T. Yamasaki, T. Koda, Y. Kodama, K. Toda	4. 巻 180
2. 論文標題 Electrodialytic in-line preconcentration for ionic solute analysis	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 Talanta	6. 最初と最後の頁 176-181
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.talanta.2017.12.054	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 S.-I. Ohira, K. Kaneda, T. Matsuzaki, S. Mori, M. Mori, K. Toda	4. 巻 90
2. 論文標題 Universal HPLC detector for hydrophilic organic compounds by means of total organic carbon detection	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 Analytical Chemistry	6. 最初と最後の頁 6461 ~ 6467
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acs.analchem.7b04849	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 S.-I. Ohira, N. Nakamura, M. Endo, Y. Miki, Y. Hirose, K. Toda	4. 巻 34
2. 論文標題 Ultra-sensitive trace-water optical sensor with In situ- synthesized metal organic framework in glass paper	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 Analytical Sciences	6. 最初と最後の頁 495 ~ 500
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.2116/analsci.17P453	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 s.-I. Ohira, C. Okazaki, K. Toda	4. 巻 67
2. 論文標題 Electrodialytic matrices isolation for determination of heavy metals in soil extracts by anodic stripping voltammetry	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 BUNSEKI KAGAKU	6. 最初と最後の頁 761 ~ 766
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.2116/bunsekikagaku.67.761	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 S.-I. Ohira, K. Toda	4. 巻 68
2. 論文標題 Universal detection methods in ion chromatography	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 BUNSEKI KAGAKU	6. 最初と最後の頁 153 ~ 162
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.2116/bunsekikagaku.68.153	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Imoto Yurika, Nishiyama Hiroka, Nakamura Yukihide, Ohira Shin-Ichi, Toda Kei	4. 巻 181
2. 論文標題 Electrodialytic extraction of anionic pharmaceutical compounds from a single drop of whole blood using a supported liquid membrane	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 Talanta	6. 最初と最後の頁 197 ~ 203
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.talanta.2018.01.008	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Ohira Shin-Ichi, Yamasaki Takayuki, Koda Takumi, Kodama Yuko, Toda Kei	4. 巻 180
2. 論文標題 Electrodialytic in-line preconcentration for ionic solute analysis	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 Talanta	6. 最初と最後の頁 176 ~ 181
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.talanta.2017.12.054	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Ohira Shin-Ichi, Nakamura Koretaka, Chiba Mitsuki, Dasgupta Purnendu K., Toda Kei	4. 巻 164
2. 論文標題 Matrix isolation with an ion transfer device for interference-free simultaneous spectrophotometric determinations of hexavalent and trivalent chromium in a flow-based system	5. 発行年 2017年
3. 雑誌名 Talanta	6. 最初と最後の頁 445 ~ 450
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.talanta.2016.08.079	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 佐伯健太郎, 溝口俊介, 山崎大, 梶原英貴, 大平慎一, 戸田敬	4. 巻 67
2. 論文標題 花粉飛散マーカの探索を目的とした加熱脱着 - ガスクロマトグラフィー / 質量分析による花粉由来揮発性有機化合物の同定	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 分析化学	6. 最初と最後の頁 印刷中
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) なし	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 -

1. 著者名 S. Iyadomi, K. Ezoe, S. Ohira, and K. Toda*	4. 巻 18
2. 論文標題 Monitoring variations of dimethyl sulfide and dimethylsulfoniopropionate in seawater and the atmosphere based on sequential vapor generation and ion molecule reaction mass spectrometry	5. 発行年 2016年
3. 雑誌名 Environmental Science: Processes and Impacts	6. 最初と最後の頁 464-472
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1039/c6em00065g	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 A. Yanaga, N. Hozumi, S. Ohira, A. Hasegawa, and K. Toda*	4. 巻 148
2. 論文標題 Formaldehyde Vapor Produced from Hexamethylenetetramine and Pesticide: Simultaneous Monitoring of Formaldehyde and Ozone in Chamber Experiments by Flow-Based Hybrid Micro-Gas Analyzer	5. 発行年 2016年
3. 雑誌名 Talanta	6. 最初と最後の頁 649-654
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.talanta.2015.05.060	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 K. Ezoe, S. Ohyama, M.A. Hashem, S. Ohira, and K. Toda	4. 巻 148
2. 論文標題 Automated Determinations of Selenium in Thermal Power Plant Wastewater by Sequential Hydride Generation and Chemiluminescence Detection	5. 発行年 2016年
3. 雑誌名 Talanta	6. 最初と最後の頁 609-616
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.talanta.2015.06.085	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Ryo Furue, Edwin P. Koveke, Shotaro Sugimoto, Yuta Shudo, Shinya Hayami, Shin-Ichi Ohira, Kei Toda	4. 巻 240
2. 論文標題 Arsine gas sensor based on gold-modified reduced graphene oxide	5. 発行年 2017年
3. 雑誌名 Sensors and Actuators B	6. 最初と最後の頁 657-663
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.snb.2016.08.131	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

〔学会発表〕 計19件（うち招待講演 7件 / うち国際学会 4件）

1. 発表者名 戸田 敬
2. 発表標題 大気物質の動態を明らかにする分析化学
3. 学会等名 日本分析化学会第67年会（東北大学）学会賞受賞講演（招待講演）
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 戸田 敬
2. 発表標題 自然起因の大気中酸性硫黄化合物やその前駆体のモニタリング：火山ガスのモバイル分析，dimethyl sulfideの大気へのフラックス変動
3. 学会等名 第59回大気環境学会年会（九州大学筑紫キャンパス）（招待講演）
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 戸田 敬
2. 発表標題 PM2.5などの大気粒子に含まれる二次生成化学物質の推移を探る
3. 学会等名 第78回分析化学討論会（山口大学）（招待講演）
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 戸田 敬
2. 発表標題 大気粒子や雲水の低分子有機化合物について
3. 学会等名 富士山大気観測2018データ検討会
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 戸田敬, 光石夏澄, 佐伯健太郎, 竹内政樹, 大河内博
2. 発表標題 富士山頂の大気粒子や雲水中の極性有機化合物の検出
3. 学会等名 富士山測候所を活用する会 第12回富士山成果報告会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Kei Toda
2. 発表標題 Analysis of atmospheric carbonyls in gaseous and particulate phases by using flow-based parallel plate wet denuder and particle collector: On site analysis in Kumamoto and on the top of Mt. Fuji
3. 学会等名 International conference of flow injection analysis (ICFIA2017) (国際学会)
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 Kei Toda, Masakazu Iwasaki, Kasumi Mitsuishi, Shin-Ichi Ohira, Masaki Takeuchi, Hiroshi Okochi
2. 発表標題 Analysis of atmospheric carbonyls in gaseous and particulate phases by using parallel plate wet denuder and particle collector: On site analysis in Kumamoto and on the top of Mt. Fuji
3. 学会等名 Asia/ CJK symposium on analytical science 2017 (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 戸田 敬, 岩崎真和, 光石夏澄, 大平慎一
2. 発表標題 MEMSとflow-based環境分析デバイス
3. 学会等名 第54回フローインジェクション分析講演会
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 Kei Toda, Masakazu Iwasaki, Kasumi Mitsuishi, Shin-Ichi Ohira, Masaki Takeuchi, Hiroshi Okochi
2. 発表標題 Dicarbonyl Compounds in Hygroscopic Aerosols and Cloud Waters Sampled at the Top of Mt. Fuji
3. 学会等名 2017 Symposium on Atmospheric Chemistry & Physics at Mountain Sites (ACPM 2017) (国際学会)
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 Kei Toda
2. 発表標題 Environmental applications of sequential injection vapor generation coupled with chemiluminescence detection and mass spectrometry
3. 学会等名 Asianalysis XIII (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2016年

1. 発表者名 戸田 敬
2. 発表標題 シーケンシャル反応気化質量分析により海水/大気間の物質移動を探る
3. 学会等名 第53回フローインジェクション分析講演会
4. 発表年 2016年

1. 発表者名 戸田 敬
2. 発表標題 大気観測におけるイオンクロマトグラフィーの新しい活用
3. 学会等名 第33回イオンクロマトグラフィー講演会（招待講演）
4. 発表年 2016年

1. 発表者名 戸田 敬
2. 発表標題 イオン分子反応質量分析による海水 / 大気界面における硫黄フラックスの動的解析
3. 学会等名 第53回 化学関連支部合同九州大会（招待講演）
4. 発表年 2016年

1. 発表者名 戸田 敬, 岩崎真和, 井本ゆりか, 光石夏澄, 大平慎一
2. 発表標題 大気中ジカルボニル化合物の気相 / 大気粒子間の分配
3. 学会等名 日本分析化学会 第65年会
4. 発表年 2016年

1. 発表者名 戸田 敬, 彌富 聡, 江副健太郎, 大平慎一
2. 発表標題 水から大気への硫化ジメチルDMS放出のダイナミクスを探る分析化学： シーケンシャル反応気化 - イオン分子反応質量分析による溶存および大気中ジメチル硫黄化合物の変動解析
3. 学会等名 第76回分析化学討論会
4. 発表年 2016年

1. 発表者名 大河内博, 勝見尚也, 中野孝教, 皆巳幸也, 米持真一, 戸田敬, 竹内政樹
2. 発表標題 富士山を用いた自由対流圏および大気境界層における越境大気汚染の観測
3. 学会等名 第1回大気科学シンポジウム
4. 発表年 2016年

1. 発表者名 岩崎真和, 井本ゆりか, 光石夏澄, 大平慎一, 戸田敬
2. 発表標題 大気中のガス状および粒子状カルボニル類の追跡
3. 学会等名 日本分析化学会 第65年会
4. 発表年 2016年

1. 発表者名 溝口俊介, 佐伯健太郎, 山崎大, 杉浦直人, 大平慎一, 戸田敬
2. 発表標題 ポウランの香気成分物質の探索 溶媒抽出と捕集加熱脱着によるガスクロマトグラフィー質量分析
3. 学会等名 日本分析化学会 第65年会
4. 発表年 2016年

1. 発表者名 井本ゆりか, 西山寛華, 大平慎一, 戸田敬
2. 発表標題 血液1滴からがん窒素代謝物を抽出するデバイス
3. 学会等名 日本分析化学会 第65年会
4. 発表年 2016年

〔図書〕 計1件

1. 著者名 角田欣一, 戸田敬	4. 発行年 2017年
2. 出版社 丸善	5. 総ページ数 142
3. 書名 クリスチャン Excelで解く分析化学	

〔産業財産権〕

〔その他〕

戸田研究室 <a href="http://www.sci.kumamoto-u.ac.jp/~todakei/">http://www.sci.kumamoto-u.ac.jp/~todakei/</a> 大気粒子の化学 <a href="http://www.sci.kumamoto-u.ac.jp/~todakei/research.html">http://www.sci.kumamoto-u.ac.jp/~todakei/research.html</a>
--

6. 研究組織

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
研究分担者	大平 慎一  (Ohira Shin-Ichi)  (60547826)	熊本大学・大学院先端科学研究部(理)・准教授   (17401)	
研究協力者	佐伯 健太郎  (Saeki Kentaro)	熊本大学・自然科学研究部   (17401)	
連携研究者	長谷川 麻子  (Hasegawa Asako)  (80347004)	熊本大学・先端科学研究部(工学系)・准教授   (17401)	

## 6. 研究組織（つづき）

	氏名 (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
連携研究者	中島 雄太 (Nakashima Yuta)  (70574341)	熊本大学・先端科学研究部（工学系）・准教授   (17401)	