

令和 2 年 6 月 9 日現在

機関番号：82101

研究種目：基盤研究(A) (一般)

研究期間：2017～2019

課題番号：17H00796

研究課題名(和文) 化学物質の包括的モニタリングを可能にする質量分析法の応用に関する研究

研究課題名(英文) Study on application of the mass spectrometry to enable the comprehensive monitoring of the chemical substances

研究代表者

橋本 俊次 (Hashimoto, Shunji)

国立研究開発法人国立環境研究所・環境計測研究センター・室長

研究者番号：80321719

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 30,500,000円

研究成果の概要(和文)：GCxGC/ToFMSによる前処理を省略した網羅的な測定法を、河川水や環境大気の連続測定に適用した。精密質量データをそのまま比較することでも差が検出できることをノンパラメトリックな多群比較などの統計的手法により確認した。データの各種のばらつきは、差の検出力に影響を与えることから、小さな差を検出するためには精度向上が必要であった。また、一般に普及しているGC/qMSによる測定データに、本研究で開発した非負値行列因子分解(NMF)を施すことにより、精度良いデコンボリューションが可能であった。LC用ToFMSのGC-APCI法により、有機ハロゲン化合物の選択的な同定・定量を可能にした。

研究成果の学術的意義や社会的意義

本研究で開発するモニタリング法は、前処理を行わない分、迅速で物質の取りこぼしが無い。測定データの直接比較により、処理時の情報損失がないといった特徴があり、サンプリングと測定の間自動化も可能となれば、化学物質の24時間完全自動監視の実用化に繋げることが出来る。欧州の大型プロジェクトと比較してもユニークかつ集中的な技術開発の取り組みといえ、我が国の科学技術力をアピールしながら世界的貢献が期待できるものである。

本研究で開発した分析・解析手法は、一般環境のモニタリングや処分場の適正管理の他、汚染源解明、上下水の監視、食品・工業製品の安全性管理、化学物質の網羅的疫学調査など多分野に応用可能である。

研究成果の概要(英文)：A comprehensive method without pretreatment by GCxGC/ToFMS was applied to the continuous measurement of river water and ambient air. Statistical methods, such as nonparametric multigroup comparisons, confirm that differences can be detected even by direct comparing precise mass data. Since the various variations in the data affect the power to detect differences, it was necessary to improve the accuracy to detect small differences. The GC-APCI method of ToFMS for LC enabled to selectively identify and quantify organohalogens.

研究分野：環境化学

キーワード：網羅分析 精密質量分析 統計解析 ノンターゲット分析 ソフトイオン化 次世代環境モニタリング

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。

様式 C - 19、F - 19 - 1、Z - 19 (共通)

1. 研究開始当初の背景

従来の環境汚染物質対策は、汚染が顕在化した後に原因物質の探索が行われるが、この間に相当の時間が経過し、対策の遅れによる被害の拡大を招くことも珍しくない。また、化学物質の環境基準項目は限定的であり、多様化する化学物質に対応しきれていない。このような状況を補うために、処理施設等の排水管理には全排水毒性試験 (WET) が導入されつつあるが、この方法はリスクの有無の検出には役立つ反面、リスク因子物質の特定は必ずしもその範疇に入っていない。従って、リスク管理の観点からも、常時流出している化学物質の全体像の解明や異常時に増える物質の種類や傾向を把握することが求められている。

従来の化学分析はターゲット分析が主流で、高精度な分析のため測定対象以外の物質を除去することが必須であり、その工程に時間と手間、費用が掛かっていた。また、通常、ターゲット物質毎に分析法が異なることから、測定物質数に比例して処理負担が増えるという課題があった。近年、このような課題への対応の一つとして、多様な物質を一括検出する「ノンターゲット分析」が注目されつつある。このノンターゲット分析の普及は、特に、飛行時間型質量分析計 (ToFMS) の進歩に負うところが大きい。今尚、全ての化学物質を検出できる万能な方法は実現していないものの、環境リスクの把握という観点から、ToFMS 等を用いたノンターゲット分析は、現時点では最も理想に近いといえる。

これまでの研究で、多次元ガスクロマトグラフィ (GCxGC) における保持時間合わせ、ToFMS と組み合わせた場合のデータ解析の困難さ等、実用面における種々の課題も明らかになった。近年、大気圧化学イオン化 (APCI) や光イオン化 (PI) によるソフトイオン化技術の進歩により、特定物質の選択的かつ包括的で高感度な検出が可能になってきたことで、一般的な GC と ToFMS の使用が課題回避策の候補として浮上してきた。即ち、試料成分の大部分を占める炭化水素の除去や濃度の低い有機ハロゲン等の高感度検出が可能になると考えられるからである。これは、手法の普及という意味においても有望であるうえに、分子イオン質量情報を得られることから、化学組成式推定による物質同定が可能になることも期待される。

2. 研究の目的

本研究では、ガスクロマトグラフ-高分解能飛行時間型質量分析計を活用した高精度な網羅的分析法を応用し、物質組成や量の変化を迅速・高感度に検出・識別できる環境中化学物質の包括的モニタリングの実現と普及による安全安心な社会の実現のための科学技術の社会実装を目指し、手法の開発と改良、課題の解決・回避法の提案を行うことを目的とした。また、本手法の好例を示すことを目的に、モデル地域における大気および河川水の高頻度時系列モニタリングにより、基準監視だけでは見逃している多様な化学物質組成の変化の捕捉と主要物質の同定を試みた。

3. 研究の方法

(1) ノンターゲットモニタリングデータ (精密質量マスペクトル) における差の検出

埼玉県環境科学国際センターの協力を経て小河川のモニタリング地点から採取した 6 日分の水試料を用いて、開発した網羅分析法の再現性と試料間差 (群間差) の検出可能性について評価した。

6 日分の水試料から、それぞれ 5 つの分割試料 (n=5) を作成し、計 30 試料について、攪拌子固相抽出 (SBSE) -加熱脱着 (TD) -GCxGC-HRToFMS (アジレント製 7200B) による網羅分析を行った。使用した攪拌子は、ポリジメチルシロキサン (PDMS) 皮膜を施したゲステル製 Twister (長さ 20mm、膜厚 0.5mm)、加熱脱着はゲステル製 TDU2 を用いた。測定には、Zoex2006 GCxGC モジューレーターを内蔵したアジレント製 7890GC と 7200B QTOF を使用した。主な条件は、質量分解能: 10,000 (半値幅)、データ採取周期: 33Hz、イオン化電圧: 70eV、イオン化電流: 600 μ A の EI 法により測定した。一次元目のカラムは、GL サイエンス製 InertCap 5MS/Sil (長さ 45 m、内径 0.25 mm、膜厚 0.1 μ m) とし、二次元目のカラムは、SGE 製 BPX-50 (長さ 1.5m、内径 0.1 mm、膜厚 0.1 μ m) とした。

(2) GC-MS によるノンターゲット分析における成分分離

NMF には、Hsieh ら 2) が提案した Newton 法による一般化 Kullback-Leibler 情報量基準のアルゴリズムを用いた。これにピークの検出におけるカラムブリード等からの悪影響を軽減するための工夫、計算時間の短縮等を図るために NMF で得られた結果は因子数を 1 つ増加させて NMF を行う際の初期値の一部として利用するなどの工夫を加えた。また、最適な因子数は、推算値の実測値との差で評価して決定するようにした。これらは Microsoft Visual Studio 2017 を用いてコーディングし、Intel Core i9-9900K CPU, 48GB RAM, Microsoft Windows 10 Pro (64bit) OS を搭載した PC 上で実行した。

河川水は、星川の榎戸橋 (埼玉県加須市) で採取した。河川水試料からの化学物質の吸着は、スターバー抽出法で行った。50mL の試料水にポリジメチルシロキサンをコーティングした攪拌子 (Gerstel Twister, 長さ 20mm、膜厚 0.5mm) を 20 で 2 時間、1200rpm で回転させて接触させた。この攪拌子を加熱脱着ユニット (ゲステル製 TDU) で加熱して吸着した化学物質を脱着させ、クールドインジェクションシステム (ゲステル製 CIS4) を取り付けたガスクロマトグラフ - 高分解能飛行時間型質量分析計 (アジレント製 7890, ウォータース製 GCT Premier) に導入し、スキ

ヤンモード(EI+, m/z 50-800, 1Hz)で測定した。GC カラムには、GLサイエンス製 InertCap 5MS/Sil(長さ 45m, 内径 0.25mm, 膜厚 0.1 μ m)を用いた。

GC-MS で採取された既存データを用い、データの読み込み機能、表示機能、スペクトルのデコンボリューション機能、スペクトルサーチ機能の処理プログラムを R にて作成した。デコンボリューションは非負値因子分解法(NMF)をベースとしており、ツールにおいてはマトリクス距離の算出法、初期マトリクスの生成法を選択することができ、状況に応じたデコンボリューションが可能となるよう設計した。スペクトルサーチ機能については、オープンデータとして公開されているマススペクトルのデータベースを利用し、オリジナルピークのマススペクトルの構造推定、デコンボリューションしたピークの構造推定などがシームレスに可能となるよう設計した。ツールの実際場面での機能性について調べるため、道路塵埃の抽出液を調製し各種開発機能の適用を行った。

(3) 各種測定情報を統合した物質検索と未知物質の同定

本課題では包括的モニタリングのために、質量・シグナル強度・保持時間データ、あるいはさらに二段階の質量分析 (MS/MS) によるフラグメンテーションから得られるフラグメント質量を直接比較する。質量分析計はサイエックス社の四重極・飛行時間型のタンデム質量分析計 X500R を用いた。飛行時間型質量分析計は質量分解能が高く、精密質量を測定しているために質量分析のデータのファイルサイズは大きく、さらに MS/MS や多次元クロマトグラフィーを適用することで膨大なものとなる。膨大なデータの処理のために、理化学研究所のグループが開発している MS-DIAL を使用した。11 河川水試料について装置が検出できた化合物をアラインメントし、測定される質量・シグナル強度・保持時間、あるいはフラグメンテーションを化合物の特性 (Feature) で表し、Feature-Based Molecular Networking (FBMN) により構造類縁物の同定を行った。

(4) 手法の改良と大気圧イオン化法の検討

セミアクティブエアサンプラーの改良

先行研究「精密質量データ解析法の開発と環境化学物質モニタリングへの応用」科研費研究 (H26-28) において明らかになった手法上の課題としてあった、環境大気モニタリング手法の改良を行った。

柴田科学製 DAS 100 セミアクティブエアサンプラーを以下の問題を解決する対策を講じた

1) 電源供給を確実にする。2) 測定風量を調整可能にする。3) 消費電力を抑えた仕様とし、電池を交換せずに 1 週間以上連続で動作するようにする。4) サンプリング中の吸引量の記録を可能にする。

大気圧ソフトイオン化法の検討

環境分析分野にも普及している LC 用 ToFMS を大気圧イオン化インターフェースにより GC と接続し、特定の化学物質 (主に有機ハロゲン化合物) の選択的検出を試みた。用いた装置はアジレント 7890GC、アジレント 6530QTOFMS、アジレント 3212APCI インターフェースであった。APCI インターフェースの温度は 320 に設定した。乾燥ガスの温度と流量は 360 と毎分 5L に設定した。コロナ電流は 0.5 μ A、キャピラリー電圧は 2500V に設定した。

4. 研究成果

(1) ノンターゲットモニタリングデータ (精密質量マススペクトル) における差の検出

環境ノンターゲットモニタリングでは、従来の環境モニタリングのように特定の物質が環境基準を超えているかどうかを監視するのではなく、「異常」、言い換えれば、いつもとは異なる状態を検出することが肝心である。そのためには、日常 (平常) の状態を知る必要があると同時に、日常と定義された状態との差を検出できる手法を確立することが重要になる。環境ノンターゲットモニタリングにおける測定値の誤差が小さければ、異常の検出感度と精度が高くなると予想される。

環境ノンターゲットモニタリングでは、GCxGC-HRToFMS 測定データの時系列的比較を行った。従来の方法では、物質同定できない成分が多数ある (むしろ、同定できない成分がほとんど) うえに、物質の同定までのデータ解析に時間がかかることが問題であったが、新しい方法は、迅速で解析によるデータの取りこぼしや誤同定がない、自動化がし易いといった利点がある。

分析の結果、何れの試料からも 2,000 を超す成分が検出された。その中から 80 成分について個々に定性・定量再現性と試料間差を評価した。

まず、検出成分のうち、80 成分について、分割試料 (n=5) の測定再現性を評価した。再現性が高ければ、手法の信頼性が高いといえ、異常の検出を敏感かつ精度よく行える可能性がある。再現性の評価は、次のような 3 つの基準を設け、全ての基準を満たす成分についてのみ、試料間の比較 (群間差、異常検出) に用いることを考えた。

基準 1: GC1 および 2 における保持時間がそれぞれ ± 0.25 、 ± 2.5 % の範囲内。

基準 2: マススペクトルが同じ (NIST ライブラリサーチによる第一候補名が同じ)。

基準 3: 総イオン強度の相対標準偏差 (RSD) が 15% 以下、あるいは強度値が ± 25 % の範囲内。

今回、6 日分の水質の網羅分析結果について、各基準の通過率を 80 成分 \times 分割数 5 の総数 400

に対する比として求めたところ、それぞれ、51-75%、39-53%、22-43%となった。この時、基準 2 と 3 には、外れ値を除外した残りの数が 4 以上で、かつ当該基準を満たせば救済するという措置を採ったところ、基準 1、2 の通過率は 66-89%、56-78%となった。3 つの基準をすべて満たす成分は、全体 (80 成分) の 2-4 割ほどしかなかったことになり、使用した網羅分析法の再現性には改善の余地が認められた。

当初設定した RSD15%以下という基準 3 を通過可能なものは、154/480 と 3 割ほどであったが、基準を RSD50%以下とすると、323/480 で約 6 割が通過可能となった。また、RSD が大きい (再現性が悪い) 成分には偏りがみられた。例えば、成分 ID : chk09、10、13、34、67 などは、6 日分のどの試料でも RSD が大きく、極めて検出が不安定な成分であることが分かった。

次に、基準 2 まで通過した成分 (救済措置を含む通過率は 56-78%) について、試料間差が検出可能か評価した。試料間差の評価には、ノンパラメトリックな群間差検定法の一つであるクラスカルウォリス検定を用いた。基準 2 まで通過しなかった成分は、検定不能であった。p 値が 0.01 未満のものは 40 成分あり、検定した成分の半数超となった。p 値 0.05 未満とした場合、53/75 と約 7 割となった。このことから、今回の網羅分析の再現性は必ずしも高くはないが、多くの成分で試料間差が検出可能であることが確認できた。

検定で有意差がみられた成分の中には、経時的に増加・減少傾向がみられるものがあった。これらの成分について、NIST14 および NIST17 によるライブラリ検索を行ったところ一致係数 (MF) 700 以上で、増加傾向にあったものの例として、butylhydroxytoluene (CAS No. 128-37-0)、2,2,4-Trimethyl-1,3-pentanediol diisobutyrate (CAS No. 6846-50-0)、methyl 2-benzoylbenzoate (CAS No. 606-28-0) などが、減少傾向にあったものとして 2,3,4,5,6-Pentachloroaniline (CAS No. 527-20-8)、p-Isopropenylphenol (CAS No. 4286-23-1)、benzo[k]fluoranthene (CAS No. 207-08-9) などが挙げられた。

(2) 汎用型 GC-MS によるノンターゲット分析における成分分離

河川水試料のガスクロマトグラフ-質量分析法 (GC/MS) スキャン測定データに改良した NMF を適用した結果を示す。

保持時間が 36.35 分から 36.96 分の 38 スキャンデータに対して NMF を行った結果の TIC クロマトグラムを図 1 に示す。最適な因子数は 9 となった。各因子の TIC クロマトグラムをみると、良好な形状のピークが得られたことがわかる。

NMF を適用して得られた保持時間 36.50min のピークの質量スペクトルを NIST 17 質量スペクトルデータベースを用いて検索したところ、除草剤成分である Pretilachlor が最上位の候補として挙げられ、確率も 92.7%と高かった。一方、処理前の質量スペクトルでも、Pretilachlor が最上位の候補として挙げられたが、確率は比較的に低く 36.4%であった。また、本ピークの保持時間と質量スペクトルは、Pretilachlor の標準物質のものとも良好に一致した。

NMF を適用して得られた保持時間 36.81min のピークの質量スペクトルについても NIST 17 質量スペクトルデータベースを用いて検索したところ、除草剤成分である Oxadiazon が最上位の候補として挙げられ、確率も 89.0%と高かった。一方、処理前の質量スペクトルでは、他の物質が候補として挙げられ、確率も 11.7%と低かった。

このように、環境試料の GC/MS スキャン測定データに、改良を加えた NMF (非負値行列因子分解) を行うことで、試料中に含まれていた化学物質の質量スペクトルとクロマトグラムを良好に得ることができた。TIC クロマトグラムでは複数の化学物質のピークが重なって検出が困難な場合でも、本法を適用することにより、ピークを単独で得ることが期待できることから、本法は化学物質の包括的なモニタリングに有効であると考えられる。

また、本法で得られたピークの質量スペクトルを NIST ライブラリで化学物質を検索すると、候補物質との適合度が向上することから、本法を応用することによりコンピュータ上で測定データから妨害物質の影響を低減させて定量性を向上できるものと期待される。

本課題で作成した GC-MS デコンボリューションツールにより、対象データについてトータルクロマトグラムのピーク形状を認識し、分割してピークリストを作成することが可能となった。また、任意のピーク中のマススペクトルの組成パターンの変化に基づき、重なり合ったピークをデコンボリューションにより分離するが可能となった。スペクトルサーチ機能も実装に成功し、オリジナルピーク及びデコンボリューションピークのマススペクトルの構造推定が可能となり、簡単にデコンボリューションの妥当性評価を行う事が可能となった。道路塵埃の抽出液に構造既知の標準物質を添加した試料を GC-MS で分析した。このデータを本ツールで読み込んだところ、正常にクロマトグラムを読み込むことができ、任意に選択したピークを各種設定条件でデコンボリューションできた。添加した標準物質の 1-Octanol が溶出する保持時間のピークを選択し、デコンボリューションを行いそのスペクトルを実装したデータベースに照会しサーチを実施した所、確かに 1-Octanol がヒットする事を確認した。またデコンボリューションを実施しないオリジナルのマススペクトルと 1-Octanol とのマッチファクターよりも、デコンボリューションしたマススペクトルのマッチファクターの方が高く、デコンボリューションによって純度の高いマススペクトルを抽出できた。

本ツールはウェブアプリケーションとして実装し、下記の URL からアクセスすることができ、フリーで利用可能な状態となっている。尚、本ウェブアプリケーションは利用性や機能改良のた

め予告なく改変されることがある。

(3) 各種測定情報を統合した物質検索と未知物質の同定

正イオンモードについて約 3200 個の Feature がアラインメントされた。そのうち、1753 個について MS/MS が取得され、25 個についてライブラリヒットがあった。負イオンモードでは約 2300 個のイオンがアラインメントされた。そのうち、1477 個に MS/MS が取得され、36 個についてライブラリヒットがあった。使用したライブラリは正イオンで 7 万、負イオンで 3 万以上のスペクトルが含まれるが、ライブラリ上の化合物数は 1 万程度であり、明らかに足りていないことが示されているといえる。

ライブラリヒットの結果を見ると、農薬、医薬品、リン系難燃剤、脂質、界面活性剤等の名前が見られた。一方で、複数のアダクトイオンやインソースフラグメンテーションを起こしている化合物については正しいとは考えられない候補をヒットさせているものが多かった。FBMN の情報と併せて MS/MS のデータを手動で読み直すと多くの化合物は予測することができた。FBMN は分子式や MS/MS のデータから各 Feature の相関関係を可視化するが、保持時間情報も組み合わせるとより効果的なデータ処理が期待できる。

(4) 手法の改良とソフトイオン化法の検討

セミアクティブサンプラーの改良

セミアクティブサンプラー DAS-300 の改良により、風速 0.38 ~ 0.50 m/s (可変量約 0.5L/min) の範囲で調整可能であることを確認した。また、単一電池 1 本において、1 週間連続での動作が可能となった。

このセミアクティブ大気サンプラーを用いて大気中 PCB 類とヘキサクロロベンゼンの捕集試験を実施した。2 週間の連続捕集により 100m³ の大気をサンプラー内に設置したポリジメチルシロキサン層の捕集剤に通気させた結果、3 塩素化 PCBs、4 塩素化 PCBs およびヘキサクロロベンゼン (HCB) 濃度は、それぞれ 50 pg/m³、68 pg/m³ および 30 pg/m³ を示した。過去の環境省データとの比較ではほぼ同程度の濃度である一方で、その濃度は 10 ~ 20% の変動係数を示したことから、捕集剤をサンプラーに対して垂直に設置するなど変動要因を削減した。また、千葉県市原市内においてセミアクティブ大気サンプラーを用いた一般環境大気中の HCB モニタリングを実施した結果、HCB 濃度は 90 ~ 270 pg/m³ の範囲であった。検出された HCB は PM10 と高い相関関係 ($r = 0.71$) を示す一方で、化石燃料に起因した一酸化炭素や二酸化硫黄とは相関性が得られなかった。

大気圧イオン化法の検討

PBDE、HBCD、HFR、OPFR、SCCP、MCCP、PBDD/DF の標準液を用いて GC-APCI/ToFMS 測定を行ったところ、PBDE 11 異性体、HFR 17 物質、PBDD/DF 14 異性体は、正イオンモードでラジカルカチオンとして検出され、HFR 2 物質はプロトン付加分子、HFR 6 物質は臭化物イオン脱離分子として検出された。これらの分子イオンは、LC-ESI-MS 法および GC-APCI-MS 法による先行研究で検出された分子イオンとよく一致した。また、SCCP については、GC-APCI/ToFMS 測定の正イオンモードでもフラグメンテーションが起こり、複数の塩化物イオン脱離分子として検出されることが確認された。このことから、GC-APCI/ToFMS 法により PBDE、HBCD、HFR、OPFR、SCCP、MCCP、PBDD/DF の選択的な同定・定量が可能であると判断した。

先行研究「精密質量データ解析法の開発と環境化学物質モニタリングへの応用」科研費研究 (H26-28) を含むこれまでの研究で開発した、前処理を大幅に省略する GCxGC/ToFMS による迅速かつ網羅的な測定法を、実際の河川水や環境大気の連続測定に適用した。GCxGC/ToFMS 測定で得られる精密質量データを物質同定することなく、生データのまま比較することでも差の検出が可能であることをノンパラメトリックな多群比較などの統計的手法により確認した。データの各種 (保持時間、質量、強度) のばらつきは、差の検出力に影響を与えることから、小さな差を検出するためにはそれぞれの精度向上が必要であった。

大気の中長期ノンターゲットモニタリングに対応するため、セミアクティブサンプラー DAS-300 の改良を行い、風速 0.38 ~ 0.50 m/s (可変量約 0.5L/min) の範囲で調整可能であることを確認した。また、単一電池 1 本において、1 週間連続での動作が可能となった。

また、一般に普及している GC/qMS による測定データに、本研究で開発した非負値行列因子分解 (NMF) を施すことにより、精度良いデコンボリューションが可能であることを確認した。河川水への応用では、データ分解前には確認できなかった数十種の農薬成分を同定することに成功した。化学分析において普及している LC 用 ToFMS の応用法として GC-APCI 法を検討し、PBDE、HBCD、HFR、OPFR、SCCP、MCCP、PBDD/DF などの有機ハロゲン化合物の選択的な同定・定量が可能であると判断した。

以上、GC/MS 法による迅速かつ包括的な環境モニタリング法について、課題を明らかにしつつ、実用化に向けての道筋を示すことができた。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計4件（うち査読付論文 4件/うち国際共著 3件/うちオープンアクセス 0件）

1. 著者名 Ljeevi Marija, Gojgi-Cvijovi Gordana, Ieda Teruyo, Hashimoto Shunji, Nakano Takeshi, Bulatovi Sandra, Ili Mila, Bekoski Vladimir	4. 巻 363
2. 論文標題 Biodegradation of the aromatic fraction from petroleum diesel fuel by Oerskovia sp. followed by comprehensive GC×GC-TOF MS	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Journal of Hazardous Materials	6. 最初と最後の頁 227 ~ 232
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1016/j.jhazmat.2018.10.005	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 Ieda Teruyo, Hashimoto Shunji, Isobe Tomohiko, Kunisue Tatsuya, Tanabe Shinsuke	4. 巻 194
2. 論文標題 Evaluation of a data-processing method for target and non-target screening using comprehensive two-dimensional gas chromatography coupled with high-resolution time-of-flight mass spectrometry for environmental samples	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Talanta	6. 最初と最後の頁 461 ~ 468
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1016/j.talanta.2018.10.050	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 Rostkowski P., Matsukami H., Yang C. et al.	4. 巻 411
2. 論文標題 The strength in numbers: comprehensive characterization of house dust using complementary mass spectrometric techniques	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Analytical and Bioanalytical Chemistry	6. 最初と最後の頁 1957 ~ 1977
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1007/s00216-019-01615-6	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 Zushi, Y., Gros, J., Tao, Q., Reichenbach, S.E., Hashimoto, S., Arey, S.J.	4. 巻 1508
2. 論文標題 Pixel-by-pixel correction of retention time shifts in chromatograms from comprehensive two-dimensional gas chromatography coupled to high resolution time-of-flight mass spectrometry	5. 発行年 2017年
3. 雑誌名 J.Chromatogr. A	6. 最初と最後の頁 121-129
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1016/j.chroma.2017.05.065	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

〔学会発表〕 計18件（うち招待講演 3件 / うち国際学会 6件）

1. 発表者名 Hashimoto S., Matsukami H., Ieda T., Suzuki G.
2. 発表標題 Comprehensive analysis of halogenated compounds in discharge water samples by GC×GC/ToFMS
3. 学会等名 38th International Symposium on Halogenated Persistent Organic Pollutants (国際学会)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 Matsukami H., Hashimoto S., Suzuki G.
2. 発表標題 GC-APCI/LC-ESI/QTOF-MS for the determination of brominated dioxins and brominated flame retardants released from flame-retarded product handling plants
3. 学会等名 38th International Symposium on Halogenated Persistent Organic Pollutants (国際学会)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 Atsushi Yamamoto
2. 発表標題 Accurate Mass Spectra Worth Reading for Food and Environmental Analysis
3. 学会等名 66th American Mass Spectrometry Society Conference SCIEX Users Meeting (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 Atsushi Yamamoto
2. 発表標題 Screening and quantitative analysis of non intentionally added substances eluted from polyethylene terephthalate bottle by high-resolution mass spectrometry
3. 学会等名 22nd International Mass Spectrometry Conference (国際学会)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 Atsushi Yamamoto
2. 発表標題 Non-target analysis with high-resolution mass spectrometry for environmental samples
3. 学会等名 Environmental Protection, Prevention, Monitoring and Remediation (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 橋本俊次、松神秀徳、家田曜世、鈴木剛
2. 発表標題 ハロゲン化ダイオキシン類及びその関連物質の包括的迅速検出法の開発～GCxGC-ToFMSを用いた多成分網羅分析法の検討～
3. 学会等名 第27回環境化学討論会
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 頭土泰之、林彬勲、羽成修康
2. 発表標題 混合物リスク評価のための基盤技術開発
3. 学会等名 産総研安全科学研究部門講演会
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 松神秀徳、橋本俊次、鈴木剛
2. 発表標題 ハロゲン化ダイオキシン類及びその関連物質の包括的迅速検出法の開発～工場排水の自動固相抽出法及びUHPLC/APGC/QTOFMSを用いた多成分網羅分析法の検討～
3. 学会等名 第27回環境化学討論会
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 大塚宜寿、蓑毛康太郎、橋本俊次
2. 発表標題 非負値行列因子分解によるGC/MSスキャンクロマトグラムデータからの化合物ピークの検出
3. 学会等名 第21回日本水環境学会シンポジウム
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 大塚宜寿、野尻喜好、橋本俊次
2. 発表標題 非負値行列因子分解によるGC/MSスキャンクロマトグラムデータからの化合物ピークの検出
3. 学会等名 第2回日本環境化学会北海道・東北地区部会
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 家田曜世、橋本俊次、田邊潔
2. 発表標題 環境試料ノンターゲット分析のための不活性ガスを用いたソフトイオン化法 基礎検討
3. 学会等名 日本分析化学会第67年会
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 Deedar Nabi, Yasuyuki Zushi, Saer Samanipour, F. Ahmad, Samuel Arey, C. Aeppli
2. 発表標題 Passive sampling and GC×GC: When two marry to give better understanding of transport behaviour and fate of micropollutants in environmental waters
3. 学会等名 9th International Passive Sampling Workshop and Symposium (国際学会)
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 橋本俊次, 家田曜世, 高澤嘉一, 頭士泰之, 大塚宜寿
2. 発表標題 GC×GC-HRTOFMS によるノンターゲットモニタリングのための各種ソフトウェアの改良
3. 学会等名 第26回環境化学討論会
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 橋本俊次
2. 発表標題 多次元分離技術による環境ノンターゲットモニタリングの試み
3. 学会等名 統計数理研究所共同研究集会 (29-共研-5004)
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 頭士泰之, 橋本俊次
2. 発表標題 逆解析アプローチによる環境混合物評価手法の検討 - 混合物分析画像のパターン認識による分類と因果解析
3. 学会等名 第26回環境化学討論会
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 高澤嘉一
2. 発表標題 NISTデータベースを用いた網羅的定性法の紹介
3. 学会等名 第2回緊急時環境調査手法研修会 (招待講演)
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 頭士泰之
2. 発表標題 各種質量分析データに適用可能なNMFによるクロマトピークデコンボリューション手法
3. 学会等名 統計学的アプローチによる問題解決のための環境化学分析の最適化・高度化に関する研究集会
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 橋本俊次
2. 発表標題 GC×GC-TFMSによるノンターゲットモニタリングにおける差の検出について.
3. 学会等名 計数理研究所共同研究「統計学的アプローチによる問題解決のための環境化学分析の最適化・高度化に関する研究集会」
4. 発表年 2017年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

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	高澤 嘉一 (Takazawa Yoshikatsu) (40391122)	国立研究開発法人国立環境研究所・環境計測研究センター・主任研究員 (82101)	
研究分担者	松神 秀徳 (Matsukami Hidenori) (10639040)	国立研究開発法人国立環境研究所・資源循環・廃棄物研究センター・研究員 (82101)	
研究分担者	頭士 泰之 (Zushi Yasuyuki) (80611780)	国立研究開発法人産業技術総合研究所・エネルギー・環境領域・研究員 (82626)	

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
研究分担者	柏木 宣久 (Kashiwagi Nobuhisa) (50150032)	統計数理研究所・モデリング研究系・名誉教授 (62603)	
研究分担者	山本 敦史 (Yamamoto Atsushi) (40332449)	公立鳥取環境大学・環境学部・准教授 (25101)	
研究分担者	大塚 宜寿 (Ohtsuka Nobutoshi) (30415393)	埼玉県環境科学国際センター・化学物質・環境放射能担当・担当部長 (82405)	